Service de Toxicologie

PROGRAMME DE BIOMONITORING HUMAIN WALLON – BMH-WAL

VALEURS DE RÉFÉRENCE

PHASE 1 : nouveau-nés, adolescents et adultes 20-39 ans (2019-2020)
PHASE 2 : enfants 3-11 ans (2020-2021)

Résultats des dosages des marqueurs urinaires de bisphénols, d'Hydrocarbures Aromatiques Policycliques (HAPs), de pesticides pyréthrinoïdes et organophosphorés, du glyphosate, du mercure ; et des PCBs et pesticides organochlorés sanguins.

Janvier 2023 (version 3)

Professeure Corinne Charlier

Cheffe de Service

Toxicologie clinique, médico-légale, de l'environnement et en entreprise, CHU Liège

Catherine Pirard

Responsable scientifique

Toxicologie clinique, médico-légale, de l'environnement et en entreprise, CHU Liège

TABLE DES MATIERES

TABLE DES ACRONYMES 5
1. Introduction 6
2. Présentations des biomarqueurs 8
2.1 Le mercure urinaire 8
2.2 Les bisphénols 8
2.3 Les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAPs) 9
2.4 Le glyphosate et l'acide aminométhylphosphonique (AMPA) 9
2.5 Les métabolites de pesticides organophosphorés (spécifiques et non spécifiques) 10
2.6 Les métabolites de pesticides pyréthrinoïdes (spécifiques et non spécifiques) 11
2.7 Les pesticides organochlorés et PCBs 12
3. Analyses STATISTIQUES 13
4. STATISTIQUES DESCRIPTIVES ET VALEURS DE RÉFÉRENCE pour la phase 1 (2019-2020): adolescents (12-19 ans), jeunes adultes (20-39 ans) et nouveau-nés 16
4.1. Biomarqueurs urinaires 16
4.1.1. Le mercure urinaire 29
4.1.2. Les bisphénols 29
4.1.3. Les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAPs) 29
4.1.4. Le glyphosate et l'acide aminométhylphosphonique (AMPA) 30
4.1.5. Les métabolites de pesticides organophosphorés (spécifiques et non spécifiques) 30
4.1.6. Les métabolites de pesticides pyréthrinoïdes (spécifiques et non spécifiques) 30
4.2. Biomarqueurs sanguins 31
4.2.1. Les pesticides organochlorés et PCBs 31
5. COMPARAISON AVEC D'AUTRES ÉTUDES NATIONALES ET INTERNATIONALES pour la phase 1 (2019-2020): adolescents (12-19 ans) et jeunes adultes (20-39 ans) 34
5.1. Biomarqueurs urinaires 34
5.1.1. Le mercure 34
5.1.2. Les bisphénols 35
5.1.3. Les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAPs) 38
5.1.4. Le glyphosate et l'acide aminométhylphosphonique (AMPA) 45

5.1.5. Les métabolites de pesticides organophosphorés (spécifiques et non spécifiques) 47
5.1.6. Les métabolites de pesticides pyréthrinoïdes (spécifiques et non spécifiques).... 52
5.2. Biomarqueurs sanguins 55
5.2.1. Les pesticides organochlorés et PCBs 55
6. STATISTIQUES DESCRIPTIVES ET VALEURS DE RÉFÉRENCE pour la phase 2 (2020-2022): enfants (3-5 ans et 6-11 ans) 60
6.1. Mesure de la créatinine urinaire 60
6.2. Biomarqueurs urinaires 60
6.2.1. Le mercure urinaire 72
6.2.2. Les bisphénols 72
6.2.3. Les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAPs) 73
6.2.4. Le glyphosate et l'acide aminométhylphosphonique (AMPA)..... 74
6.2.5. Les métabolites de pesticides organophosphorés (spécifiques et non spécifiques)..... 74
6.2.6. Les métabolites de pesticides pyréthrinoïdes (spécifiques et non spécifiques) 75
7. COMPARAISON AVEC D'AUTRES ÉTUDES NATIONALES ET INTERNATIONALES pour la phase 2 (2020-2022): enfants (3-5 ans et 6-11 ans) 77
7.1. Biomarqueurs urinaires..... 77
7.1.1. Le mercure..... 77
7.1.2. Les bisphénols 78
7.1.3. Les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAPs) 81
7.1.4. Le glyphosate et l'acide aminométhylphosphonique (AMPA)..... 87
7.1.5. Les métabolites de pesticides organophosphorés (spécifiques et non spécifiques) 88
7.1.6. Les métabolites de pesticides pyréthrinoïdes (spécifiques et non spécifiques).... 93
8. Conclusions..... 96
RÉFÉRENCES 102
ANNEXES..... 110
Annexe 1 : Histogrammes des distributions de valeurs mesurées dans la population étudiée lors de la phase 1 (adolescents et jeunes adultes) 111
Annexe 2 : Histogrammes des distributions de valeurs mesurées dans la population étudié lors de la phase2 (enfants 3-11 ans) 118

Annexe 3 : Statistiques descriptives pour les biomarqueurs urinaires mesurés lors de la phase 1 ajustés par rapport à la créatinine..... 127

Annexe 4 : Statistiques descriptives pour les biomarqueurs urinaires mesurés lors de la phase 2 ajustés par rapport à la créatinine..... 131

TABLE DES ACRONYMES

BMH Wal: Biomonitoring Humain Wallon
HAPs : hydrocarbures aromatiques polycycliques
PCBs : polychlorobiphényls
Hg : mercure
BPA : bisphénol-A
BPS : bisphénol-S
BPZ : bisphénol-Z
BPF : bisphénol-F
BPP : bisphénol-P
AMPA : acide aminométhylphosphonique
DEP : diéthylphosphate
DETP : diéthylthiophosphate
DEDTP : diéthyldithiophosphate
DMTP : diméthylthiophosphate
DMDTP : diméthyldithiophosphate
TCPY : 3,5,6-trichloro-2-pyridinol
c- DCCA : acide cis-3-(2,2-dichlorovinyl)-2,2-diméthylcyclopropane-1-carboxylique
t-DCCA : acide trans-3-(2,2-dichlorovinyl)-2,2-diméthylcyclopropane-1-carboxylique
3-PBA : acide 3- phénoxybenzoïque
DBCA : cis-3(2,2-dibromovinyle)-2,2-diméthylecyclopropanoïque
4-F-3-PBA : acide 4-fluoro-3- phénoxybenzoïque
a-HCH : alpha -hexachlorohexane
b-HCH: beta-hexachlorohexane
g-HCH: gamma- hexachlorohexane
HCB: hexachlorobenzène
4,4'-DDE: 4,4'- dichlorodiphényldichloroéthylène
DDT : dichlorodiphenyltrichloroethane
SVHC : substance extrêmement préoccupante
OPs : pesticides organophosphorés
DAPs : dialkylphosphates
LOQ : limite de quantification
P5, P25, P50, P75, P90, P95 : percentile 5, 10, 25, 75, 90 et 95 respectivement
RV_{95} : valeur de référence
N: Nombre de participants
MG : moyenne géométrique

1. INTRODUCTION

Le premier programme de Biomonitoring Humain Wallon, financé par le Gouvernement Wallon, a démarré en 2019 avec pour objectif principal l'obtention de données de référence sur l'exposition des Wallons à diverses substances polluantes rencontrées dans l'environnement.

Les données obtenues via le biomonitoring ont pour objectifs de permettre :

- de déterminer les concentrations de référence spécifiques de la population wallonne,
- de déterminer si certaines classes d'âge sont plus exposées,
- de déterminer si l'imprégnation est la même pour les deux sexes,
- de déterminer l'influence de la typologie du lieu de résidence (urbaine/rurale/ agricole/industrielle), en fonction des critères retenus pour la sélection des aires géographiques d'études,
- de déterminer si l'exposition des Wallons aux substances est similaire ou différente de l'exposition dans les autres pays (européens) de niveau socio-économique similaire,
- lorsque des valeurs limites d'exposition sont disponibles, d'évaluer si les concentrations sanguines ou urinaires atteintes posent un problème pour la santé et nécessitent des mesures de prévention ou d'intervention particulières.

En fonction de la taille de l'échantillon et sur base d'une enquête complémentaire, des associations entre le niveau d'imprégnation et des sources d'exposition potentielles aux substances /polluants, le statut socio-économique des participants ou certaines habitudes de vie pourraient être recherchées.

La phase 1 de ce programme s'est focalisée sur une population couvrant 3 tranches d'âge : les nouveau-nés, les adolescents (12-19 ans) et les jeunes adultes (20-39 ans). Les prélèvements biologiques ont été collectés entre décembre 2019 et juillet 2020. Les substances sélectionnées dans un premier temps sont des métaux et éléments traces, des plastifiants (bisphénols), des HAPs, plusieurs familles de pesticides et des PCBs.

La phase 2 de ce programme s'est quant à elle concentrée sur une population d'enfants de 2 tranches d'âge différentes : 3 à 5 ans et 6 à 11 ans. Le recrutement et la collecte des échantillons se sont déroulés entre décembre 2020 et juin 2021. Seuls des prélèvements urinaires ont été récoltés (pas de prise de sang). Les pesticides organochlorés et les PCBs ne seront donc pas dosés pour cette population.

Les enfants sont souvent considérés comme particulièrement vulnérables de par l'immaturité de leur système de détoxification, leurs plus faibles poids et volume sanguin, et leurs activités comportementales (comme les gestes main-bouche, les jeux au niveau du sol, etc) qui peuvent résulter en une plus grande charge corporelle de polluants environnementaux. Cette deuxième phase aura donc aussi pour objectif de déterminer si les enfants wallons sont plus

ou moins exposés aux polluants sélectionnés que le reste de la population, et de comparer leur exposition aux enfants d'autres pays.

Le présent rapport concerne les résultats obtenus pour les biomarqueurs analysés par le Service de Toxicologie du CHU.

Dans l'urine :

- Le mercure (Hg) ;
- Des bisphénols dont le bisphénol-A (BPA) et quelques substituts (BPS, BPZ, BPF et BPP) ;
- Des métabolites d'hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAPs) dont les 1- et 2-naphtols (métabolites du naphtalène), les 2-, 3- et 9-hydroxyfluorènes (métabolites du fluorène), les 1-, 2-, 3-, et 4-hydroxyphénanthrènes (métabolites du phénanthrène) et le 1-hydroxypyrène (métabolite du pyrène et souvent utilisé comme marqueur représentatif d'une exposition globale aux HAPs) ;
- Le glyphosate et son métabolite l'acide aminométhylphosphonique (AMPA) ;
- Les métabolites dialkylphosphates non spécifiques de pesticides organophosphorés (OP) à savoir le diéthylphosphate (DEP), le diéthylthiophosphate (DETP), le diéthyldithiophosphate (DEDTP), le diméthylthiophosphate (DMTP), et le diméthyldithiophosphate (DMDTP) ;
- Le 3,5,6-trichloro-2-pyridinol (TCPY), métabolite spécifique du chlorpyrifos ;
- Des métabolites de pesticides pyréthrinoïdes :
  - non spécifiques, comme les acides cis- et trans-3-(2,2-dichlorovinyl)-2,2- diméthyl cyclopropane-1-carboxylique (c- et t-DCCA), et l'acide 3-phénoxybenzoïque (3-PBA) ;
  - spécifiques, comme le cis-3(2,2-dibromovinyle)-2,2-diméthylecyclopropanoïque (DBCA) et l'acide 4-fluoro-3-phénoxybenzoïque (4-F-3-PBA), métabolites de la deltaméthrine et de la cyfluthrine respectivement.

Dans le sang et le sang de cordon :

- 4 polychlorobiphényls (PCBs) : les PCB-118, -138, -153 et -180 ;
- 14 pesticides organochlorés : α-, β-, γ- hexachlorohexane (a-, b-, g- HCH), hexachlorobenzène (HCB), aldrine et dieldrine, endrine, c- et t-chlordane, oxychlordane, c- et t-nonachlor, heptachlor époxyde, β-endosulfan, et 4,4'-dichlorodiphényldichloroéthylène (4,4'-DDE) métabolite du dichlorodiphényltrichloroéthane (DDT).

2. PRÉSENTATIONS DES BIOMARQUEURS

2.1 **Le mercure urinaire**

Le mercure est un métal liquide dans des conditions normales de pression et de température, présent naturellement dans la croûte terrestre. Il existe 3 formes de mercure qui ont chacune des propriétés, des utilisations et une toxicité différentes : le mercure élémentaire (ou métallique), les composés inorganiques du mercure et les composés organiques du mercure. Le mercure est relâché dans l'environnement suite à divers processus naturels, comme les incendies de forêts, les inondations ou les phénomènes météorologiques. On le trouve ainsi dans l'air, l'eau et le sol. La libération de mercure dans l'atmosphère peut également se produire de manière anthropogénique : combustion de déchets, combustion de carburants fossiles et processus industriels, élimination inappropriée de produits contenant du mercure (ATSDR, 1999).

Le mercure retrouvé dans les urines est principalement du mercure élémentaire et inorganique. L'exposition peut provenir de l'inhalation de vapeurs de mercure lors de processus industriels dans le cadre d'une activité professionnelle, ou lors de bris de thermomètres à mercure, baromètres ou de lampes à basse énergie. Les amalgames dentaires appelés également « plombages » sont composés principalement de mercure et d'argent, et libèrent continuellement du mercure dans la bouche des patients au contact de la salive et lors de la mastication. Ils sont donc également une source importante d'exposition (Berglund et al., 1988 ; Barregaard et al., 1993).

2.2 **Les bisphénols**

Les bisphénols sont des composés chimiques utilisés dans la fabrication de matières plastiques et dans certaines résines époxy qui recouvrent l'intérieur des boîtes de conserve. Ils se retrouvent dans un grand nombre de biens de consommation, comme par exemple des équipements de sport, les boîtes des CD et DVD, des équipements de sécurité résistant aux chocs et des pièces automobiles. Du plastique à base de BPA est également utilisé dans des contenants alimentaires, tels que des bouteilles et de la vaisselle en plastique réutilisables (Vandenberg et al., 2007). Le bisphénol-A est le plus utilisé mais depuis les différentes restrictions dans certaines de ses applications (biberon, ticket de caisse, etc), l'emploi d'autres bisphénols comme le bisphénol-S ou le bisphénol-F augmente (Chen et al., 2016). La population peut être exposée aux bisphénols en mangeant ou buvant de la nourriture ou des boissons qui ont été en contact avec des produits plastiques contenant des bisphénols. Le Bisphénol A est notamment libéré du revêtement des boîtes de conserves ou des canettes au contact de liquides ou de graisses et arrive ainsi dans l'alimentation. L'exposition aux bisphénols par voie cutanée est également possible au travers de certains produits contenant du bisphénol-S, comme le papier thermique (ticket de caisse). Les bisphénols peuvent être absorbés par voies digestive et cutanée. Une fois dans l'organisme, ils sont métabolisés par des enzymes glucuronyl transférases et sulfotransférases. Ces métabolites conjugués sont

rapidement éliminés dans les urines (Chen et al., 2016 ; Vandenberg et al., 2007). Le BPA a été identifié comme ayant des propriétés de perturbation endocrinienne pour la santé humaine par le comité des États membres de l'Agence européenne des produits chimiques (ECHA). En raison de ses propriétés toxiques pour la reproduction, le BPA figurait déjà en tant que substance extrêmement préoccupante (SVHC) sur la liste des substances candidates en vertu du règlement (CE) n ° 1907/2006 du Parlement européen et du Conseil sur l'enregistrement, l'évaluation, Autorisation et restriction des produits chimiques (REACH).

2.3 **Les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAPs)**

Les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAPs) constituent un groupe de plusieurs centaines de composés, presque toujours présents sous forme de mélanges complexes. Ce sont des polluants environnementaux omniprésents générés principalement lors de la combustion incomplète de matières organiques (par exemple le charbon, le pétrole, et le bois). Si les émissions dues aux activités anthropiques prédominent largement, certains HAPs présents dans l'environnement proviennent de sources naturelles (par exemple brûlage à ciel ouvert, pertes naturelles ou infiltration de gisements de pétrole ou de charbon et activités volcaniques). L'exposition aux HAPs est donc influencée par la proximité de sources de combustion intenses, telles que les routes à fort trafic, les incinérateurs de déchets municipaux et les sites industriels. Une autre source de HAPs est la combustion de combustibles solides pour le chauffage domestique (ASTDR, 1995 ; Becher et Bjorseth, 1983, HBM4EU priority substances). L'alimentation est également une source de contamination importante pour la population générale. En effet, les HAPs peuvent être présents dans la chaîne alimentaire suite à une contamination environnementale, ou peuvent se former lorsque les denrées alimentaires entrent directement en contact avec des produits de combustion tels que les fumées (cuisson au barbecue, fumage de poissons ou de salaisons, etc) (SPF, 2016).

De nombreux HAPs sont connus ou suspectés être des composés cancérigènes et mutagènes (par exemple, le benzo (a) pyrène, le dibenzo (a, h) anthracène, etc.). Ils sont inclus dans la liste candidate en vertu de l'article 59 de REACH qui contient un certain nombre de substances complexes dérivées du pétrole et du charbon (Annexe VI EC 1272/2008).

Les HAPs sont initialement transformés en époxydes, qui sont convertis en dérivés de dihydrodiol et en phénols. Ces métabolites hydroxylés sont excrétés dans l'urine à la fois sous forme de métabolites hydroxylés libres et de métabolites hydroxylés conjugués (glucuronides et sulfates) (Becher et Bjorseth, 1983).

2.4 **Le glyphosate et l'acide aminométhylphosphonique (AMPA)**

Le glyphosate est un herbicide total foliaire systémique, c'est-à-dire un herbicide non sélectif absorbé par les feuilles et ayant une action généralisée. C'est actuellement l'herbicide le plus employé dans le monde, dans de nombreuses applications parmi lesquelles notamment l'application sur les terres agricoles avant les semis ou le repiquage d'une plante, et sur les

voies ferrées. Le glyphosate se retrouve dans le sol, l'eau, l'air, et contamine également notre alimentation. Les effets sur la santé humaine et sur l'environnement sont actuellement controversés, et le renouvellement de son autorisation au niveau Européen en 2017 a fait polémique, divisant agriculteurs, industriels, politiques, scientifiques et grand public. Aujourd'hui, le glyphosate est en sursis en Europe. Fin 2022, les Etats membres devront décider soit de son interdiction définitive soit de sa prolongation. Des états comme la France ou la Belgique ont déjà pris certaines dispositions, comme par exemple son interdiction pour une utilisation par les particuliers dans les jardins.

Dans les plantes et dans l'environnement, le glyphosate est principalement dégradé en acide aminométhylphosphonique (AMPA). Chez l'Homme, le glyphosate est rapidement mais incomplètement absorbé après administration orale et est donc principalement éliminé inchangé par les fèces. Le glyphosate absorbé est peu métabolisé et est rapidement excrété sous forme inchangée dans l'urine. Si les résidus de glyphosate et AMPA dans les aliments constituent la principale source d'exposition, la population générale peut aussi être affectée via la contamination de l'approvisionnement en eau (principalement AMPA), l'utilisation pour le jardinage domestique et la dérive des zones agricoles pour les résidents proches des champs traités (Connolly et al., 2020 ; HBM4EU priority substances ; IPCS, 1994).

2.5 **Les métabolites de pesticides organophosphorés (spécifiques et non spécifiques)**

Les pesticides organophosphorés (OPs) sont des composés organiques contenant du phosphore. Leur développement en tant que pesticides date du début des années 1950. Ils se sont imposés rapidement par leur grande efficacité, notamment contre les insectes et leur rapide dégradation dans l'environnement, malgré leurs effets toxiques sur le système nerveux des vertébrés. En effet, ces composés neurotoxiques inhibent de manière irréversible l'acétylcholinestérase provoquant en cas d'intoxication aiguë un «syndrome cholinergique» sévère, dans lequel l'accumulation d'acétylcholine entraîne des signes périphériques tels qu'une augmentation de la transpiration et de la salivation, une bronchoconstriction, un myosis, une augmentation de la motilité gastro-intestinale et des tremblements; des effets sur le système nerveux central tels que des étourdissements, de la confusion mentale et, éventuellement, des convulsions et la mort peuvent aussi survenir en cas d'intoxication aigüe (HBM4EU priority substances, Krieger 2001).

Ils sont commercialisés sous forme de milliers de produits différents avec de multiples usages, principalement comme insecticides sur les plantes, les animaux et l'être humain (contre les poux, les mites, …). Ils sont utilisés dans de nombreux pays en agriculture, horticulture, dans le domaine forestier, pour l'extermination de « nuisibles », l'entretien paysager, dans la pratique vétérinaire, dans le milieu industriel et domestique. La population est principalement exposée via l'alimentation (les OPs comme le chlorpyrifos ou le diméthoate sont couramment détectés dans les matières premières produites en Europe ou importées de pays tiers), mais aussi durant l'utilisation domestique ou le jardinage.

La plupart des organophosphorés sont rapidement métabolisés dans le foie en dérivés oxydés (responsables de l'inhibition des cholinestérases qui leur confère l'effet insecticide) et hydrolysés en alkyl et dialkylphosphates (DAPs) qui sont éliminés dans les urines. Ces métabolites urinaires DAPs, communs à plusieurs organophosphorés sont les indicateurs biologiques les plus utilisés pour mesurer une exposition récente. D'autres métabolites formés comme le 3,5,6-trichloro-2-pyridinol (TCPY) sont spécifiques à un OP (le chlorpyrifos dans ce cas-ci). Le tableau 1a reprend les différents métabolites correspondant aux principaux OPs parents (Fréry et al., 2012 ; EXPOPESTEN 2018).

Tableau 1a : Correspondance entre les métabolites communs ou spécifiques et les pesticides parents (liste non exhaustive) pour les OPs.

PESTICIDES PARENTS	**METABOLITES**					
Insecticides organophosphorés	DMTP	DMDTP	DEP	DETP	DEDTP	TCPY
Azinphos methyl	x	x				
Chlorethoxyphos			x	x		
Chlorpyrifos			x	x		x
Chlorpyrifos methyl	x					x
Coumaphos			x	x		
Diazinon			x	x		
Disulfoton			x	x	x	
Diméthoate	x	x				
Ethion			x	x	x	
Ethoprofos				x	x	
Fenitrothion	x					
Fenthion	x					
Malathion	x	x				
Methidathion	x	x				
Méthyl parathion	x					
Oxydemethon methyl	x					
Parathion			x	x		
Pirimiphos méthyl	x					
Phorate			x	x	x	
Phosmet	x	x				
Sulfotepp			x	x		
Temephos	x					
Terbufos			x	x	x	

2.6 **Les métabolites de pesticides pyréthrinoïdes (spécifiques et non spécifiques)**

Les pesticides pyréthrinoïdes sont les analogues synthétiques des pyréthrines, qui sont des substances naturelles présentes dans les fleurs de chrysanthème. Ils sont aujourd'hui parmi les insecticides les plus utilisés contre une grande variété d'insectes : insectes volants (moustiques, guêpes, frelons, mites), rampants (cafards, fourmis), puces, tiques, poux, gale, pucerons, cochenilles, mouches des fruits et légumes, vers et insectes xylophages. Ils sont utilisés en agriculture (grandes cultures, vigne, fruits et légumes), horticulture, dans le

domaine forestier, en santé publique (dans les hôpitaux), ou dans les résidences. Dans les maisons, certains insecticides pyréthrinoïdes (comme la perméthrine, la resméthrine et la sumithrine) sont utilisés dans la lutte contres les moustiques, les poux, les mites et autres arthropodes (ex : tiques, araignées). Ils sont aussi utilisés pour la protection des textiles tels que les tapis. L'exposition de la population générale aux insecticides pyréthrinoïdes provient principalement de l'alimentation ou de leur utilisation domestique. La perméthrine est aussi utilisée dans des lotions cutanées et les shampooings pour traiter les poux et la gale.

Une fois absorbés par voie digestive ou pulmonaire, les pyréthrinoïdes sont rapidement hydrolysés dans le tube digestif et le foie, ensuite oxydés et/ou conjugués, et éliminés dans l'urine. Le dosage des métabolites urinaires qui peuvent être communs à plusieurs insecticides (exemple : 3-PBA) ou spécifiques (exemple : DBCA) reflètent une exposition récente. Le tableau 1b reprend des pyréthrinoïdes parents correspondant aux différents métabolites (Fréry et al., 2012 ; EXPOPESTEN 2018).

Tableau 1b : Correspondance entre les métabolites communs ou spécifiques et les pesticides parents (liste non exhaustive) pour les pesticides pyréthrinoïdes.

Insecticides pyréthrinoïdes	3-PBA	4-F-3-PBA	DCCA	DBCA
Cyfluthrine	x	x	x	
Cyhalothrine	x			
Cyperméthrin	x		x	
Deltaméthrine	x			x
Esfenvalérate	x			
Perméthrine	x		x	
Pyréthrine	x			
Tau-fluvalinate	x			
Téfluthrine	x			

2.7 **Les pesticides organochlorés et PCBs**

Les pesticides organochlorés sont des produits phytosanitaires utilisés pour lutter contre de nombreux insectes, comme par exemple le DDT qui était et est toujours utilisé dans certains pays pour combattre les insectes vecteurs de maladie (ex : paludisme). D'autres dont l'hexachlorobenzène ont été utilisés principalement comme agent antimicrobien et contre les moisissures. L'utilisation de ces produits chimiques introduits dans les années 1940 a été limitée en raison de leur persistance dans l'environnement. La plupart de ces pesticides ne sont d'ailleurs plus utilisés en Europe ou aux Etats-Unis, mais restent autorisés dans d'autres régions du monde (Fréry et al., 2012 ; UNEP, 2007, WHO, 2003).

La famille des PCBs regroupe 209 composés qui diffèrent en fonction de la position et du nombre d'atomes de chlore sur les cycles aromatiques. Ce sont des produits de synthèse utilisés pour leurs propriétés lubrifiantes et isolantes, leur stabilité chimique et physique,

principalement dans les transformateurs et les condensateurs électriques, mais aussi comme plastifiants dans des caoutchoucs, comme solvants d'encres de papiers autocopiants, comme additifs de colles, de cires, d'encres, de pesticides, dans les pigments de peinture, etc. Depuis 1970, leur production et leur utilisation ont progressivement été réduites pour être finalement interdites dans les années 80 d'abord aux Etats Unis, puis en Europe. Ils se sont retrouvés dans l'environnement de façon involontaire, par les fuites de transformateurs ou sur les sites de production ou d'élimination, ou rejetés volontairement dans l'environnement pour ne pas assumer le coût de leur destruction (Fréry et al., 2012 ; UNEP, 2007, WHO, 2003).

Les pesticides organochlorés comme les PCBs sont stables chimiquement, et peu biodégradables. Ils sont rémanents dans l'environnement et s'accumulent dans les chaînes alimentaires, principalement dans les tissus graisseux des animaux (poissons gras en contact avec les sédiments contaminés, lait et produits laitiers, œufs, viande). L'alimentation et plus particulièrement l'ingestion de produits alimentaires gras d'origine animale (comme le lait, les produits laitiers, le poisson, la viande) constitue donc la source principale d'exposition aux pesticides organochlorés et aux PCBs pour la population générale. Les pesticides organochlorés et les PCBs, stockés préférentiellement dans les graisses, s'accumulent dans l'organisme au cours du temps, et peuvent persister dans l'organisme pendant des années après l'exposition. Leur mesure reflète donc généralement la dose interne cumulée, même si elle peut être influencée par l'exposition récente. Les PCBs, les pesticides organochlorés ou leurs produits de dégradation (qui sont également persistants) sont dosés dans le sérum (Fréry et al., 2012 ; UNEP, 2007, WHO, 2003).

3. ANALYSES STATISTIQUES

Les valeurs de référence (RV95) ont été établies et les statistiques descriptives ont été déterminées selon la « méthodologie d'élaboration des valeurs de référence dans le cadre du projet BMH-Wal 1 » (version 4) rédigée par l'ISSeP et approuvée par les trois laboratoires du consortium. Pour chacun des biomarqueurs, un histogramme a été construit afin d'inspecter visuellement si la distribution des valeurs ne présentait pas différents sous-groupes d'exposition (joints en annexe 1 et 2). Comme attendu, aucun des marqueurs ne présentait une distribution normale justifiant l'utilisation de tests statistiques non-paramétriques, et aucun sous-groupe d'exposition n'a été mis en évidence. Pour chaque « outlier » identifié par la méthode de Tukey modifié, le résultat de l'analyse a été revérifié (inspection du chromatogramme, vérification de la validité de la série), et les réponses au questionnaire (questions pertinentes selon le marqueur) ont été examinées afin d'y déceler une éventuelle exposition professionnelle ou extra-professionnelle particulière. Pour l'ensemble des marqueurs, aucun outlier n'a été exclu. Des tests de Mann-Whitney (si 2 catégories) ou Kruskal Wallis (si plus de 2 catégories) ont été réalisés afin d'identifier les sous-groupes qui présentent des concentrations de marqueurs significativement différentes. Ces tests ont été réalisés en

utilisant les concentrations massiques volumiques. Les covariables utilisées dans ces tests sont reprises dans le tableau 2. La différence a été jugée significative pour $p<0.05$. De plus, la pertinence d'établir des RV95 différentes pour ces sous-groupes a été évaluée au moyen d'un z test pour une proportion. Le seuil de significativité a été fixé à 0.001. D'autre part, ces z-tests ont mis en évidence sporadiquement des RV95 significativement différentes alors que les Mann-Whitney ne l'étaient pas. Pour ces quelques exceptions, des RV95 différentes ont été établies et sont reprises dans le tableau 36 avec un astérisque. Les résultats obtenus pour les échantillons collectés lors des 2 phases (2019-2020 et 2020-2021) ont été traités séparément. Ils font l'objet de 2 chapitres distincts dans le présent rapport.

Tableau 2a : Covariables utilisées dans les tests statistiques pour chaque marqueur (phase 1)

	Pesticides OC & PCBs	Hg	Bisphénols	Métab. HAPs	Glyphosate & métab.	Métab. OP	Métab. pyréthrinoïdes
Groupes d'âge (catégorie)	X	X	X	X	X	X	X
Adolescent							
Adulte							
Sang de cordon (pour les marqueurs sériques uniquement)							
Genre (Q1)	X	X	X	X	X	X	X
Femme							
Homme							
Statut tabagique (Q26)				X			
Non-fumeur (#1, 2 et 4)							
Fumeur (#3)							
Amalgames (Q60)		X					
Sans amalgame (#0, 2 et 3)							
Avec amalgames (#1)							
Consommation de poisson fruits de mer		X					
Consommation de poisson dans les 4 derniers jours (Q34)		X					
Oui (#1)							
Non (#0)							
Consommation de poisson et fruits de mer les 3 derniers jours (Q35_a_1)		X					
Oui (#1)							
Non (#0)							
Fréquence de consommation de poisson et fruits de mer (Q35_b_1)		X					
Plusieurs X par semaine (#1)							
1 X par semaine (#2)							
1 à 3 X par mois (#3)							
1 X par mois ou moins (#4)							
Consommation de poisson de mer dans les 3 derniers jours (Q35_a_2)		X					
Oui (#1)							
Non (#0)							
Fréquence de consommation de poisson_de mer (Q35_b_2)		X					
Plusieurs X par semaine (#1)							
1 X par semaine (#2)							
1 à 3 X par mois (#3)							
1 X par mois ou moins (#4)							
Consommation de poisson d'eau douce dans les 3 derniers jours (Q35_a_3)		X					
Oui (#1)							
Non (#0)							
Fréquence de consommation de poisson d'eau douce (Q35_b_3)		X					
Plusieurs X par semaine (#1)							
1 X par semaine (#2)							
1 à 3 X par mois (#3)							
1 X par mois ou moins (#4)							
Consommation de fruits de mer dans les 3 derniers jours (Q35_a_4)		X					
Oui (#1)							
Non (#0)							
Fréquence de consommation de fruits de mer (Q35_b_4)		X					
Plusieurs X par semaine (#1)							
1 X par semaine (#2)							
1 à 3 X par mois (#3)							
1 X par mois ou moins (#4)							
Consommation d'aliments Bio (Q103)					X	X	X
non (#0)							
oui parfois (#1)							
oui le plus souvent (#2)							

Tableau 2b : Covariables utilisées dans les tests statistiques pour chaque marqueur (phase 2)

	Hg	Bisphénols	Métab. HAPs	Glyphosate & métab.	Métab. OP	Métab. pyréthrinoïdes
Groupes d'âge (catégorie)	X	X	X	X	X	X
Enfants 3-5 ans						
Enfants 6-11 ans						
Genre	X	X	X	X	X	X
Fille						
Garçon						
Amalgames	X					
Sans amalgame (#0, 2 et 3)						
Avec amalgames (#1)						
Consommation de poisson fruits de mer	X					
Consommation de poisson dans les 4 derniers jours	X					
Oui (#1)						
Non (#0)						
Exposition tabagique passive			X			
Oui (#1)						
Non (#0)						
Consommation d'aliments Bio				X	X	X
non (#0)						
oui parfois (#1)						
oui le plus souvent (#2)						

4. STATISTIQUES DESCRIPTIVES ET VALEURS DE RÉFÉRENCE POUR LA PHASE 1 (2019-2020): ADOLESCENTS (12-19 ANS), JEUNES ADULTES (20-39 ANS) ET NOUVEAU-NÉS

4.1. Biomarqueurs urinaires

Pour chacun des biomarqueurs urinaires, le nombre de participants présentant des valeurs supérieures à la limite de quantification (LOQ), le pourcentage de participants présentant des valeurs supérieures et inférieures à la LOQ, la moyenne géométrique et son intervalle de confiance à 95%, les percentiles P5, P25, P50, P75, P90, P95 et son intervalle de confiance à 95%, et la valeur de référence (RV_{95}) ont été déterminés et sont présentés dans les tableaux 3 (3a à 3f) pour l'ensemble de la population et pour les différents sous-groupes lorsque c'était pertinent. Les p-values obtenues lors des tests de Mann-Whitney et z-test pour une proportion sont également rapportées. La p-value des tests de Mann-Whitney est également indiquée lorsque la différence n'est pas significative mais <0.1 (à la limite de la significativité). Les valeurs sont exprimées en µg/L. Les résultats ajustés par rapport à la créatinine (exprimés en µg/g creatinine) sont présentés à l'annexe 3.

Tableau 3a : Statistiques descriptives pour le Hg urinaire (en µg/l)

Hg															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	543	0.25	11.4	88.6		<0.25-2.87	<0.25 -	<0.25	<0.25	<0.25	<0.25	0.28	0.46 [0.38-0.58]	0.45	
Groupes d'âge					0.0336										0.0007
Adolescents	282	0.25	8.9	91.1		<0.25-2.87	<0.25 -	<0.25	<0.25	<0.25	<0.25	<0.25	0.37 [0.28-0.49]	0.37	
Adultes	261	0.25	14.2	85.8		<0.25-1.68	<0.25 -	<0.25	<0.25	<0.25	<0.25	0.36	0.53 [0.43-0.78]	0.52	
Amalgames					0.0268										<0.0001
Sans amalgame	351	0.25	8.3	91.7		<0.25-2.87	<0.25 -	<0.25	<0.25	<0.25	<0.25	<0.25	0.37 [0.27-0.46]	0.36	
Avec amalgame(s)	115	0.25	24.3	75.7		<0.25-1.68	<0.25 -	<0.25	<0.25	<0.25	<0.25	0.58	0.81 [0.58-1.33]		
** différences fréquences habituelles de consommation de poisson (en général): p=0.06943*															
** différences fréquences habituelles de consommation de poisson de mer: p=0.05934*															

* La p-value est indiquée lorsque "limite" significative (p<0.1)
La différence entre les catégories (M-W) est considérée comme significative pour p<0.05
La différence entre les RV95 (z-test) est considérée comme significative pour p<0.001

Tableau 3b : Statistiques descriptives pour les bisphénols urinaires (en µg/l)

	N TOT	LOQ µg/l	N>LOQ %	N<LOQ %	Mann Whitney p-value	min-max µg/l	MG [95%CI] µg/l	P5 µg/l	P25 µg/l	P50 µg/l	P75 µg/l	P90 µg/l	P95 [95%CI] µg/l	RV_{95} µg/l	z-test p-value
BPP															
Tous															
	543	0.09	0.7	99.3											
BPF															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	543	0.07	40.0	60.0		<0.07-4.64	0.08 [0.07-0.09]	<0.07	<0.07	<0.07	0.16	0.44	0.85 [0.63-1.16]	0.84	
** différences ado<adultes: p=0.05194*															
BPA															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	543	0.29	68.1	31.9		<0.29-27.72	0.53 [0.48-0.58]	<0.29	<0.29	0.51	1.12	2.42	3.76 [3.02-4.74]	3.70	
** différences ado>adultes: p=0.07309*															
Genre					0.00078										0.02952
Femmes	293	0.29	63.1	36.9		<0.29-15.04	0.46 [0.40-0.52]	<0.29	<0.29	0.45	0.93	2.04	3.31 [2.54-4.99]		
Hommes	250	0.29	74.0	26.0		<0.29-27.72	0.63 [0.55-0.72]	<0.29	<0.29	0.62	1.26	2.64	3.88 [3.36-6.09]		
BPS															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	543	0.09	52.7	47.3		<0.09-54.67	0.16 [0.14-0.18]	<0.09	<0.09	0.12	0.46	1.16	2.24 [1.72-2.99]	2.20	
Groupes d'âge					0.0030										0.0453
Adolescents	282	0.09	59.2	40.8		<0.09-54.67	0.19 [0.16-0.23]	<0.09	<0.09	0.17	0.55	1.30	2.66 [1.84-3.77]		
Adultes	261	0.09	45.6	54.4		<0.09-14.82	0.14 [0.12-0.16]	<0.09	<0.09	<0.09	0.39	1.05	1.89 [1.33-2.53]		

Tableau 3b suite

BPZ	N TOT	LOQ µg/l	N>LOQ %	N<LOQ %	Mann Whitney p-value	min-max µg/l	MG [95%CI] µg/l	P5 µg/l	P25 µg/l	P50 µg/l	P75 µg/l	P90 µg/l	P95 µg/l	RV_{95} µg/l	z-test p-value
Tous															
	543	0.06	7.2	92.8		<0.06-6.08	<0.06 -	<0.06	<0.06	<0.06	<0.06	<0.06	0.08 [<0.06-0.14]	-	
Groupes d'âge					0.0022										0.0453
Adolescents	282	0.06	9.6	90.4		<0.06-6.08	<0.06 -	<0.06	<0.06	<0.06	<0.06	<0.06	0.11 [0.08-0.45]		
Adultes	261	0.06	4.6	95.4		<0.06-0.52	<0.06 -	<0.06	<0.06	<0.06	<0.06	<0.06	<0.06 [<0.06-0.09]		

* La p-value est indiquée lorsque "limite" significative (p<0.1)
La différence entre les catégories (M-W) est considérée comme significative pour p<0.05
La différence entre les RV95 (z-test) est considérée comme significative pour p<0.001

Tableau 3c : Statistiques descriptives pour les HAPs urinaires (en µg/l)

1-NAPHTOL															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	543	0.40	56.7	43.3		<0.40-4040	0.58 [0.52-0.62]	<0.40	<0.40	0.48	0.99	2.92	8.73 [5.78-14.61]	8.70	
** différences ado<adultes: p=0.06346*															
Genre					0.0030										0.0058
Femmes	293	0.40	49.1	50.9		<0.40-4040	0.51 [0.44-0.60]	<0.40	<0.40	<0.40	0.89	2.04	5.94 [3.13-14.89]		
Hommes	250	0.40	65.6	34.4		<0.40-59.14	0.68 [0.58-0.79]	<0.40	<0.40	0.61	1.10	4.42	11.59 [7.89-18.93]		
Statut tabagique					p<0.0001										<0.0001
Non-fumeurs	499	0.40	53.7	46.3		<0.40-4040	0.48 [0.43-0.53]	<0.40	<0.40	0.45	0.83	1.46	2.52 [1.83-3.78]	2.50	
Fumeurs	43	0.40	93.0	7.0		<0.40-59.14	5.91 [3.97-8.814]	0.25	3.21	8.54	14.99	22.20	24.89 [21.77-59.14]	-	
2-NAPHTOL															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	543	0.40	96.5	3.5		<0.40-78.34	4.15 [3.72-4.62]	0.52	1.68	4.28	10.83	21.29	31.42 [27.47-40.62]	31.0	
Genre					0.0034										0.8846
Femmes	293	0.40	95.9	4.1		<0.40-76.95	3.75 [3.24-4.35]	0.49	1.47	3.77	9.42	19.33	31.24 [24.84-42.57]		
Hommes	250	0.40	100.0	0.0		<0.40-78.34	4.66 [3.99-5.44]	0.54	1.97	5.10	12.32	23.65	31.77 [26.39-41.55]		
Groupes d'âge					0.0009										0.3864
Adolescents	282	0.40	97.9	2.1		<0.40-78.34	4.96 [4.31-5.70]	0.69	2.11	5.37	12.34	21.30	33.69 [25.42-42.57]		
Adultes	261	0.40	95.0	5.0		<0.40-70.66	3.42 [2.91-4.02]	0.42	1.34	3.13	9.00	21.16	31.09 [26.21-41.64]		
Statut tabagique					<0.0001										0.0007
Non-fumeurs	499	0.40	96.4	3.6		<0.40-78.34	3.79 [3.39-4.24]	0.49	1.57	3.70	9.15	19.88	28.42 [25.18-37.48]	28.0	
Fumeurs	43	0.40	100.0	0.0		<0.10-48.39	11.65 [8.99-15.10]	2.66	6.61	13.68	19.66	32.68	39.44 [31.67-48.39]	-	

Tableau 3c suite

2-HYDROXYFLUORÈNE	N TOT	LOQ µg/l	N>LOQ %	N<LOQ %	Mann Whitney p-value	min-max µg/l	MG [95%CI] µg/l	P5 µg/l	P25 µg/l	P50 µg/l	P75 µg/l	P90 µg/l	P95 [95%CI] µg/l	RV_{95} µg/l	z-test p-value
Tous															
	543	0.10	14.2	85.8		<0.10-4.90	<0.10 -	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.20	1.25 [0.64-1.68]	1.20	
Genre					0.0082										0.0002
Femmes	293	0.10	10.6	89.4		<0.10-4.30	<0.10 -	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.10	0.42 [0.19-1.86]	0.42	
Hommes	250	0.10	18.4	81.6		<0.10-4.90	<0.10 -	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.37	1.36 [0.90-2.14]	1.30	
Groupes d'âge					0.0122										<0.0001
Adolescents	282	0.10	11.0	89.0		<0.10-2.89	<0.10 -	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.11	0.25 [0.16-0.79]	0.25	
Adultes	261	0.10	17.6	82.4		<0.10-4.90	<0.10 -	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.74	2.02 [1.35-2.94]	2.01	
Statut tabagique					<0.0001										<0.0001
Non-fumeurs	499	0.10	9.2	90.8		<0.10-4.30	<0.10 -	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.20 [0.13-0.31]	0.19	
Fumeurs	43	0.10	72.1	27.9		<0.10-4.90	0.60 [0.37-0.99]	<0.10	<0.10	1.27	2.08	3.35	3.61 [2.94-4.90]	-	

3-HYDROXYFLUORÈNE	N TOT	LOQ µg/l	N>LOQ %	N<LOQ %	Mann Whitney p-value	min-max µg/l	MG [95%CI] µg/l	P5 µg/l	P25 µg/l	P50 µg/l	P75 µg/l	P90 µg/l	P95 [95%CI] µg/l	RV_{95} µg/l	z-test p-value
Tous															
	543	0.10	14.0	86.0		<0.10-3.85	<0.10 -	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.19	0.75 [0.44-1.16]	0.75	
Groupes d'âge					0.0263										<0.0001
Adolescents	282	0.10	11.3	88.7		<0.10-1.44	<0.10 -	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.11	0.22 [0.14-0.44]	0.22	
Adultes	261	0.10	16.9	83.1		<0.10-3.85	<0.10 -	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.52	1.27 [0.89-2.04]	1.20	
Statut tabagique					<0.0001										<0.0001
Non-fumeurs	499	0.10	8.2	91.8		<0.10-1.44	<0.10 -	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.16 [0.12-0.22]	0.16	
Fumeurs	43	0.10	81.4	18.6		<0.10-3.85	0.53 [0.35-0.79]	<0.10	0.29	0.78	1.30	2.39	2.64 [2.23-3.85]	-	

Tableau 3c suite

9-HYDROXYFLUORÈNE	N TOT	LOQ µg/l	N>LOQ %	N<LOQ %	Mann Whitney p-value	min-max µg/l	MG [95%CI] µg/l	P5 µg/l	P25 µg/l	P50 µg/l	P75 µg/l	P90 µg/l	P95 [95%CI] µg/l	RV_{95} µg/l	z-test p-value
Tous															
	543	0.10	49.2	50.8		<0.10-7.41	0.14 [0.13-0.16]	<0.10	<0.10	<0.10	0.37	0.86	1.43 [1.14-1.73]	1.40	
1-HYDROXYPHÉNANTHRÈNE	**N TOT**	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	543	0.10	57.8	42.2		<0.10-3.26	0.13 [0.12-0.14]	<0.10	<0.10	0.13	0.27	0.48	0.62 [0.57-0.79]	0.62	
** différences femmes<hommes: p=0.09843*															
Statut tabagique					0.0347										0.1955
Non-fumeurs	499	0.10	56.7	43.3		<0.10-3.26	0.13 [0.12-0.14]	<0.10	<0.10	0.13	0.25	0.47	0.60 [0.53-0.77]		
Fumeurs	43	0.10	72.1	27.9		<0.10-0.97	0.19 [0.14-0.25]	<0.10	<0.10	0.22	0.41	0.54	0.72 [0.52-0.97]		
2-HYDROXYPHÉNANTHRÈNE	**N TOT**	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	543	0.10	20.6	79.4		<0.10-1.95	<0.10 -	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.17	0.24 [0.22-0.33]	0.24	
Genre					0.0085										0.1916
Femmes	293	0.10	16.4	83.6		<0.10-0.76	<0.10 -	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.14	0.23 [0.17-0.37]		
Hommes	250	0.10	25.6	74.4		<0.10-1.95	<0.10 -	<0.10	<0.10	<0.10	0.10	0.20	0.25 [0.22-0.37]		
Groupes d'âge					<0.0001										0.0002
Adolescents	282	0.10	14.2	85.8		<0.10-1.14	<0.10 -	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.12	0.20 [0.15-0.28]	0.20	
Adultes	261	0.10	27.6	72.4		<0.10-1.95	<0.10 -	<0.10	<0.10	<0.10	0.11	0.20	0.26 [0.23-0.38]	0.26	
Statut tabagique					<0.0001										<0.0001
Non-fumeurs	499	0.10	18.4	81.6		<0.10-1.95	<0.10 -	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.15	0.22 [0.18-0.26]	0.22	
Fumeurs	43	0.10	46.5	53.5		<0.10-0.59	0.10 [<0.10-0.12]	<0.10	<0.10	<0.10	0.19	0.29	0.38 [0.26-0.59]	-	

Tableau 3c suite

3-HYDROXYPHÉNANTHRÈNE	N TOT	LOQ µg/l	N>LOQ %	N<LOQ %	Mann Whitney p-value	min-max µg/l	MG [95%CI] µg/l	P5 µg/l	P25 µg/l	P50 µg/l	P75 µg/l	P90 µg/l	P95 [95%CI] µg/l	RV_{95} µg/l	z-test p-value
Tous															
	543	0.10	42.2	57.8		<0.10-3.41	0.10 [<0.10-0.10]	<0.10	<0.10	<0.10	0.18	0.35	0.55 [0.44-0.67]	0.55	
** différences ado<adultes: p=0.07269*															
Genre					0.0066										<0.0001
Femmes	293	0.10	38.2	61.8		<0.10-1.52	<0.10 -	<0.10	<0.10	<0.10	0.15	0.27	0.41 [0.35-0.76]	0.41	
Hommes	250	0.10	46.8	53.2		<0.10-3.41	0.11 [0.10-0.12]	<0.10	<0.10	<0.10	0.22	0.42	0.59 [0.47-0.72]	0.58	
Statut tabagique					<0.0001										<0.0001
Non-fumeurs	499	0.10	39.1	60.9		<0.10-3.41	<0.10 -	<0.10	<0.10	<0.10	0.16	0.29	0.42 [0.37-0.55]	0.42	
Fumeurs	43	0.10	79.1	20.9		<0.10-1.96	0.24 [0.18-0.33]	<0.10	0.14	0.25	0.56	0.84	1.01 [0.78-1.96]	-	

4-HYDROXYPHÉNANTHRÈNE	N TOT	LOQ µg/l	N>LOQ %	N<LOQ %	Mann Whitney p-value	min-max µg/l	MG [95%CI] µg/l	P5 µg/l	P25 µg/l	P50 µg/l	P75 µg/l	P90 µg/l	P95 [95%CI] µg/l	RV_{95} µg/l	z-test p-value
Tous															
	543	0.10	16.8	83.2		<0.10-5.82	<0.10 -	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.16	0.26 [0.22-0.37]	0.26	
** différences ado>adultes: p=0.0818*															

1-HYDROXYPYRÈNE	N TOT	LOQ µg/l	N>LOQ %	N<LOQ %	Mann Whitney p-value	min-max µg/l	MG [95%CI] µg/l	P5 µg/l	P25 µg/l	P50 µg/l	P75 µg/l	P90 µg/l	P95 [95%CI] µg/l	RV_{95} µg/l	z-test p-value
Tous															
	543	0.15	17.7	82.3		<0.15-1.71	<0.15 -	<0.15	<0.15	<0.15	<0.15	0.21	0.33 [0.27-0.40]	0.32	
** différences femmes<hommes: p=0.06196* ** différences ado<adultes: p=0.07169*															
Statut tabagique					<0.0001										<0.0001
Non-fumeurs	499	0.15	14.0	86.0		<0.15-1.71	<0.15 -	<0.15	<0.15	<0.15	<0.15	0.18	0.26 [0.21-0.32]	0.26	
Fumeurs	43	0.15	60.5	39.5		<0.15-0.72	0.18 [<0.15-0.23]	<0.15	<0.15	0.19	0.33	0.56	0.67 [0.54-0.72]	-	

Tableau 3d : Statistiques descriptives pour le glyphosate et AMPA urinaires (en µg/l)

GLYPHOSATE															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	543	0.08	22.7	77.3		<0.08-2.91	<0.08 -	<0.08	<0.08	<0.08	<0.08	0.12	0.23 [0.19-0.31]	0.23	
Genre					<0.0001										<0.0001
Femmes	293	0.08	15.7	84.3		<0.08-0.84	<0.08 -	<0.08	<0.08	<0.08	<0.08	0.09	0.13 [0.12-0.30]	0.13	
Hommes	250	0.08	30.8	69.2		<0.08-2.91	<0.08 -	<0.08	<0.08	<0.08	0.09	0.19	0.26 [0.22-0.42]	0.25	
Groupes d'âge					0.0153										0.5797
Adolescents	282	0.08	27.3	72.7		<0.08-2.91	<0.08 -	<0.08	<0.08	<0.08	0.08	0.13	0.23 [0.19-0.31]		
Adultes	261	0.08	17.6	82.4		<0.08-0.84	<0.08 -	<0.08	<0.08	<0.08	<0.08	0.12	0.23 [0.14-0.36]		
ACIDE AMINOMÉTHYLPHOSPHONIQUE (AMPA)															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	543	0.15	11.2	88.8		<0.15-0.84	<0.15 -	<0.15	<0.15	<0.15	<0.15	0.15	0.22 [0.18-0.26]	0.22	

La différence entre les catégories (M-W) est considérée comme significative pour p<0.05
La différence entre les RV95 (z-test) est considérée comme significative pour p<0.001

Tableau 3e : Statistiques descriptives pour les pesticides organophosphorés urinaires (en µg/l)

DIÉTHYLPHOSPHATE (DEP)															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	541	0.50	79.5	20.5		<0.50-76.52	1.54 [1.39-1.71]	<0.50	0.66	1.69	3.70	7.23	10.88 [9.05-14.33]	10.8	
Groupes d'âge					<0.0001										0.0228
Adolescents	281	0.50	90.0	10.0		<0.50-76.52	2.14 [1.87-2.45]	<0.50	0.99	2.16	4.43	8.97	13.43 [10.88-24.74]		
Adultes	260	0.50	68.1	31.9		<0.50-33.00	1.08 [0.93-1.25]	<0.50	<0.50	1.20	2.69	5.12	7.13 [6.38-12.91]		
DIÉTHYLTHIOPHOSPHATE (DETP)															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	541	0.50	18.9	81.1		<0.50-12.55	<0.50 -	<0.50	<0.50	<0.50	<0.50	0.82	1.42 [1.07-2.35]	1.40	
DIÉTHYLDITHIOPHOSPHATE (DEDTP)															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	541	0.50	0.2	99.8		<0.50-1.14									
DIMÉTHYLDHIOPHOSPHATE (DMTP)															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	541	0.50	72.6	27.4		<0.50-34.57	1.12 [1.02-1.24]	<0.50	<0.50	1.18	2.71	4.75	7.53 [6.27-9.44]	7.50	
Groupes d'âge					<0.0001										0.3933
Adolescents	281	0.50	81.5	18.5		<0.50-20.91	1.44 [1.27-1.64]	<0.50	0.70	1.56	3.20	5.05	8.46 [6.38-11.56]		
Adultes	260	0.50	63.1	36.9		<0.50-34.57	0.86 [0.75-0.99]	<0.50	<0.50	0.82	1.97	4.33	6.68 [5.33-10.82]		

Tableau 3e suite

DIMÉTHYLDITHIOPHOSPHATE (DMDTP)															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	541	0.50	8.9	91.1		<0.50-3.94	<0.50 -	<0.50	<0.50	<0.50	<0.50	<0.50	0.81 [0.56-1.00]	0.81	
Groupes d'âge					0.0073										0.0878
Adolescents	281	0.50	9.3	90.7		<0.50-3.94	<0.50 -	<0.50	<0.50	<0.50	<0.50	<0.50	0.99 [0.80-1.10]		
Adultes	260	0.50	8.5	91.5		<0.50-2.61	<0.50 -	<0.50	<0.50	<0.50	<0.50	<0.50	0.57 [0.52-1.00]		
TRICHLOROPYRIDINOL (TCPY)															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	542	0.08	93.5	6.5		<0.08-8.53	0.45 [0.41-0.49]	<0.08	0.25	0.51	0.88	1.42	1.90 [1.69-2.39]	1.90	
Genre					<0.0001										<0.0001
Femmes	292	0.08	92.1	7.9		<0.08-5.23	0.37 [0.33-0.42]	<0.08	0.20	0.42	0.79	1.22	1.44 [1.31-2.17]	1.40	
Hommes	250	0.08	95.2	4.8		<0.08-8.53	0.55 [0.49-0.62]	0.09	0.34	0.60	1.03	1.66	2.27 [1.90-2.99]	2.20	
Groupes d'âge					0.0085										0.7655
Adolescents	281	0.08	94.7	5.3		<0.08-8.53	0.50 [0.45-0.56]	<0.08	0.31	0.56	0.92	1.44	1.94 [1.60-2.56]		
Adultes	261	0.08	92.3	7.7		<0.08-4.89	0.39 [0.34-0.45]	<0.08	0.20	0.44	0.86	1.39	1.88 [1.63-2.78]		

La différence entre les catégories (M-W) est considérée comme significative pour p<0.05
La différence entre les RV95 (z-test) est considérée comme significative pour p<0.001

Tableau 3f : Statistiques descriptives pour les pesticides pyréthrinoïdes urinaires (en µg/l)

c-DCCA															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	542	0.20	38.0	62.0		<0.20-50.91	<0.20 -	<0.20	<0.20	<0.20	0.34	0.68	1.02 [0.85-1.34]	1.02	
** différences femmes/hommes: p=0.09501*															
Groupes d'âge					0.0155										0.2500
Adolescents	281	0.20	42.3	57.7		<0.20-50.91	0.20 [<0.20-0.23]	<0.20	<0.20	<0.20	0.38	0.73	1.08 [0.90-1.73]		
Adultes	261	0.20	33.3	66.7		<0.20-4.70	<0.20 -	<0.20	<0.20	<0.20	0.29	0.55	0.86 [0.66-1.37]		
t-DCCA															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	542	0.15	72.3	27.7		<0.15-368.2	0.35 [0.32-0.39]	<0.15	<0.15	0.35	0.84	1.75	2.72 [2.18-3.33]	2.70	
Genre					0.0006										0.6634
Femmes	292	0.15	67.5	32.5		<0.15-368.2	0.30 [0.26-0.35]	<0.15	<0.15	0.27	0.75	1.39	2.51 [1.68-3.48]		
Hommes	250	0.15	78.0	22.0		<0.15-10.83	0.42 [0.36-0.48]	<0.15	0.17	0.44	1.01	2.01	2.74 [2.27-3.53]		
Groupes d'âge					<0.0001										0.3864
Adolescents	281	0.15	77.2	22.8		<0.15-368.2	0.43 [0.37-0.50]	<0.15	0.17	0.43	1.03	2.01	2.82 [2.37-3.74]		
Adultes	261	0.15	67.0	33.0		<0.15-13.85	0.28 [0.24-0.32]	<0.15	<0.15	0.26	0.70	1.28	2.14 [1.40-3.29]		
DBCA															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
Tous	542	0.30	39.3	60.7		<0.30-11.50	<0.30 -	<0.30	<0.30	<0.30	0.48	1.01	1.64 [1.31-2.02]	1.60	
Genre					0.0002										<0.0001
Femmes	292	0.30	32.2	67.8		<0.30-11.50	<0.30 -	<0.30	<0.30	<0.30	0.38	0.86	1.14 [0.96-2.40]	1.10	
Hommes	250	0.30	47.6	52.4		<0.30-4.59	0.32 [<0.30-0.36]	<0.30	<0.30	<0.30	0.59	1.21	1.84 [1.52-2.66]	1.80	
Groupes d'âge					<0.0001										0.0043
Adolescents	281	0.30	48.0	52.0		<0.30-11.50	0.33 [0.30-0.37]	<0.30	<0.30	<0.30	0.64	1.31	2.02 [1.74-3.39]		
Adultes	261	0.30	29.9	70.1		<0.30-4.50	<0.30 -	<0.30	<0.30	<0.30	0.36	0.62	0.93 [0.68-1.47]		

Tableau 3f suite

3-PBA															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	542	0.09	93.4	6.6		<0.09-261.2	0.49 [0.44-0.54]	<0.09	0.24	0.54	1.01	1.91	2.86 [2.37-3.47]	2.80	
Genre					0.0003										0.6634
Femmes	292	0.09	91.8	8.2		<0.09-261.2	0.42 [0.37-0.49]	<0.09	0.19	0.41	0.88	1.66	2.65 [2.05-4.22]		
Hommes	250	0.09	95.2	4.8		<0.09-7.42	0.57 [0.50-0.62]	0.09	0.30	0.64	1.19	1.96	2.95 [2.25-3.59]		
Groupes d'âge					<0.0001										0.0858
Adolescents	281	0.09	97.5	2.5		<0.09-261.2	0.65 [0.57-0.74]	0.10	0.34	0.70	1.20	2.14	3.22 [2.56-4.22]		
Adultes	261	0.09	88.9	11.1		<0.09-15.49	0.36 [0.31-0.41]	<0.09	0.17	0.37	0.83	1.37	2.19 [1.56-3.95]		

4-F-3-PBA															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	542	0.11	2.4	97.6		<0.11-3.11									

* La p-value est indiquée lorsque "limite" significative (p<0.1)
La différence entre les catégories (M-W) est considérée comme significative pour p<0.05
La différence entre les RV95 (z-test) est considérée comme significative pour p<0.001

4.1.1. Le mercure urinaire

La grande majorité de la population wallonne étudiée (89%) ne présente pas de taux de mercure urinaire supérieur à la LOQ (0.25 µg/l). Les concentrations de mercure mesurées sont significativement plus élevées dans l'urine des adultes comparés aux adolescents (p=0.03358), et significativement plus élevées chez les participants portant des amalgames dentaires (« plombages gris ») quel que soit leur âge (p=0.02683). Les fréquences habituelles de consommation de poisson et de fruits de mer (en général) et de consommation de poisson de mer plus élevées sont associées à des concentrations urinaires supérieures en mercure, mais pas de manière significative (p=0.06943 et p= 0.059 respectivement).

4.1.2. Les bisphénols

Le BPP n'a été détecté que dans 4 échantillons sur les 543 analysés. Comme attendu, le BPA est le bisphénol le plus souvent retrouvé dans les urines (68%), et c'est le biomarqueur parmi les bisphénols dont la concentration est la plus élevée (P50 = 0.51 µg/l). Suivent le BPS avec une fréquence de détection de 53% et un P50 de 0.12 µg/l, et le BPF avec 40% de détection et un P50 <0.07 µg/l. Des concentrations en BPA, BPZ et BPS significativement plus élevées (à la limite de la significativité pour le BPA) ont été mesurées dans l'urine des adolescents par rapport aux adultes (p=0.07309 pour le BPA ; p=0.002246 pour le BPZ ; p=0.002966 pour le BPS). Des concentrations en BPF plus faibles pour les adolescents ont été observées mais la différence n'était pas significative (p = 0.05194). Le BPA a été également retrouvé en concentration plus élevée chez les hommes vs les femmes (p= 0.0007784).

4.1.3. Les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAPs)

Les métabolites du naphtalène ont été retrouvés dans un grand nombre d'échantillons (96.5% et 57% pour le 2-naphtol et 1-naphtol respectivement), avec des moyennes géométriques de 4.15 µg/l pour le 2-naphtol et 0.58 µg/l pour le 1-naphtol. Les trois autres métabolites de HAPs retrouvés le plus souvent sont le 1- et le 3-hydroxyphénanthrène (58% et 42%), et le 9-hydroxyfluorène (49%), avec des moyennes géométriques de 0.13, 0.1 et 0.14 µg/l respectivement. Les autres métabolites du phénanthrène, fluorène et pyrène montrent des fréquences de détection variant entre 14 et 21%. Comme attendu, une différence significative a été observée entre les concentrations urinaires de métabolites de HAPs des fumeurs et des non-fumeurs (p=0.03474 pour le 1-hydroxyphénanthrène ; p<0.0001 pour tous les autres métabolites de HAPs) à l'exception du 9-hydroxyfluorène et du 4-hydroxyphénanthrène. Pour la plupart des métabolites, une différence a également été observée (significative ou à la limite de la significativité) entre les femmes et les hommes, ces derniers présentant des concentrations urinaires supérieures (1-naphtol : p= 0.003018 ; 2-naphtol : p= 0.00337 ; 2-hydroxyfluorène : p= 0.008208 ; 1-hydroxyphénanthrène : p=0.09843 ; 2-hydroxyphénanthrène : p= 0.008512; 3-hydroxyphénanthrène : p= 0.006645; 1-hydroxypyrène : p=0.06196). Des concentrations inférieures (significativement ou non) ont

été mesurées dans l'urine des adolescents (12 -19 ans) par rapport aux valeurs mesurées dans le groupe des adultes (20 – 39 ans) pour une majorité de métabolites (1-naphtol : p=0.06346; 2-hydroxyfluorène : p=0.01216; 3-hydroxyfluorène : p=0.02633 ; 2-hydroxyphénanthrène : p<0.0001; 1-hydroxypyrène : p=0.07169, excepté pour le 2-naphtol (p=0.0009482) et le 4-hydroxyphénanthrène (pas significativement) pour lesquels la tendance inverse a été observée. Des analyses statistiques plus poussées (multivariées) sont nécessaires pour tenter d'apporter une explication à ces différences.

4.1.4. Le glyphosate et l'acide aminométhylphosphonique (AMPA)

Le glyphosate et son métabolite AMPA sont présents à des concentrations supérieures à la LOQ dans 23% et 11% des échantillons, significativement (p <0.0001) plus souvent chez les hommes et les adolescents (pour le glyphosate uniquement).

4.1.5. Les métabolites de pesticides organophosphorés (spécifiques et non spécifiques)

Les métabolites de pesticides organophosphorés les plus fréquemment détectés dans les urines sont le diéthylphosphate (DEP), le diméthylthiophosphate (DMTP) et le trichloropyridinol (TCPY) avec respectivement 80%, 73% et 94% des échantillons montrant des concentrations supérieures à la LOQ. Il s'agit également des métabolites présentant les concentrations médianes urinaires les plus élevées (1.69 µg/l, 1.18µg/l et 0.51 µg/l pour le DEP, DMTP et TCPY). Le diéthyldithiophosphate (DEDTP) n'a été détecté que dans un seul échantillon d'urine, tandis que le diéthylthiophosphate (DETP) et le diméthyldithiophosphate (DMDTP) ont été mesurés positivement dans 20% et 9% des échantillons respectivement.

La plupart des métabolites urinaires de pesticides organophosphorés ont été mesurés en plus grande concentration chez les adolescents que chez les adultes (p<0.0001 pour le DEP et DMTP; p=0.007336 pour le DMDTP ; et p=0.00853 pour le TCPY), et chez les hommes par rapport aux femmes pour le TCPY uniquement (p<0.0001).

4.1.6. Les métabolites de pesticides pyréthrinoïdes (spécifiques et non spécifiques)

Les concentrations urinaires des métabolites de pesticides pyréthrinoïdes ont été mesurées dans l'ordre décroissant suivant : 3-PBA (fréquence de détection : 93% ; moyenne géométrique : 0.49 µg/l) > t-DCCA (fréquence de détection : 72% ; moyenne géométrique : 0.35 µg/l) > DBCA (fréquence de détection : 39% ; moyenne géométrique : 0.28 µg/l) > c-DCCA (fréquence de détection : 28% ; moyenne géométrique : <0.20 µg/l). Le 4-F-3-PBA (métabolite spécifique de la cyfluthrine) n'a été détecté que dans 13 échantillons sur les 542 analysés.

Comme pour les autres pesticides (organophosphorés et glyphosate), des concentrations supérieures (significativement ou non) ont été mesurées dans les urines des adolescents (p<0.0001 pour le t-DCCA, le DBCA et le 3-PBA ; et p=0.01553 pour le c-DDCA) et des hommes (; t-DCCA : p=0.0005742 ; DBCA : p=0.0001667 ; 3-PBA : p=0.0003451) pour tous les

métabolites sauf le c-DCCA dont les valeurs sont légèrement supérieures chez les femmes, mais de manière non significative (p=0.09501).

4.2. Biomarqueurs sanguins

4.2.1. Les pesticides organochlorés et PCBs

Sur les 14 pesticides organochlorés dosés, seuls 3 ont été détectés dans une partie des échantillons : l'hexachlorobenzène (HCB), le béta-hexachlorhexane (b-HCH) et 4,4'-dichlorodiphényldichloroéthylène (4,4'-DDE). Parmi les PCBs, le PCB-138, -153 et -180 ont été mis en évidence, mais le PCB-118 n'a jamais été retrouvé.

Le tableau 4 rassemble les statistiques descriptives obtenues lors du dosage dans le sérum des pesticides organochlorés et PCBs exprimées en ng/g lipide et en µg/l. Lors des analyses univariées (Mann-Whitney ou Kruskal Wallis), les marqueurs sanguins ont été utilisés comme variables continues pour les PCB-153 et -180, et comme variables dichotomisées (détectées vs non détectées) pour le PCB-138, l'hexachlorobenzène, le béta-hexachlorohexane, et le 4,4'-DDE en raison d'une fréquence de positivité beaucoup plus faible.

Dans les sangs de cordon, très peu de résidus de pesticides organochlorés ou de PCBs ont été retrouvés. Ainsi le PCB-138, le b-HCH, l'HCB et le 4,4'-DDE ont été détectés dans 0, 2, 3 et 4 échantillons respectivement sur les 284 analysés. Les PCB-153 et -180 ont été mesurés à des concentrations supérieures à la LOQ dans 4% (pour le PCB-153) et 5% (pour le PCB-180) des échantillons.

Dans le sérum des adolescents et adultes, les PCBs-153 et -180 ont été mesurés à des concentrations médianes de 18.6 et 13.9 ng/g lipide, avec comme attendu des concentrations significativement supérieures pour les adultes par rapport aux adolescents ($p<0.0001$). Le PCB-138 n'a été détecté que dans 3.4% des échantillons de sérum. Aucune différence significative n'a été observée entre les hommes et les femmes. Pour les pesticides organochlorés, c'est le 4,4'-DDE qui a été mesuré en plus grande concentration (P95 = 84.98 ng/g lipide) devant le HCB qui a été le plus souvent détecté (dans presque 20% des échantillons) mais avec une P95 de 22.14 ng/g lipide. A noter que la LOQ du 4,4'-DDE (0.40 µg/l) est très largement supérieure à la LOQ de l'HCB (LOQ : 0.08 µg/l). Le b-HCH a été détecté dans moins de 3% des échantillons. Des différences significatives ont été mises en évidence entre les adolescents et les adultes d'une part ($p<0.0001$), et entre les femmes et les hommes ($p= 0.00933$) d'autre part pour le HCB uniquement.

Tableau 4 : Statistiques descriptives pour les biomarqueurs sanguin exprimées ng/g lipides et entre parenthèses en µg/l

	N TOT	LOQ µg/l	N>LOQ %	N<LOQ %	Mann-Whitney p-value	Moyenne géométrique ng/g lip (µg/l)			P5 ng/g lip	P25 ng/g lip	P50 ng/g lip	P75 ng/g lip	P90 ng/g lip	P95 ng/g lip	P95 ng/g lip (µg/l)		RV_{95} ng/g lip (µg/l)	z-test p-value
						Moyenne	95%CI inf.	95%CI sup.							95%CI inf.	95%CI sup		
PCBs																		
PCB-118																		
Tous (12-19 ans et 20-39 ans)	536	0.17	0.0	100.0														
Sang de cordon (nouveau-nés	284	0.17	0.0	100.0														
PCB-138																		
Tous (12-19 ans et 20-39 ans)	536	0.15	3.4	96.6														
Sang de cordon (nouveau-nés	284	0.15	0.0	100.0														
Groupes d'âge					<0.0001													
Adolescents	276	0.15	0.7	99.3														
Adultes	260	0.15	6.2	93.8		<LOQ (<0.15)	-	-	<LOQ (<0.15)	<LOQ (<0.15)	<LOQ (<0.15)	<LOQ (<0.15)	<LOQ (<0.15)	30.99 (0.16)	<LOQ (<0.15)	35.70 (0.2)	-	
PCB-153																		
Tous (12-19 ans et 20-39 ans)	536	0.07	68.7	31.3		16.62 (0.09)	15.63 (0.08)	17.68 (0.09)	<LOQ (<0.07)	<LOQ (<0.07)	18.61 (0.10)	29.04 (0.15)	38.71 (0.21)	52.88 (0.25)	45.53 (0.23)	56.63 (0.30)	52	
Sang de cordon (nouveau-nés	284	0.07	3.5	96.5														
Groupes d'âge					<0.0001													<0.0001
Adolescents	276	0.07	60.9	39.1		14.82 (0.07)	13.63 (0.068)	16.11 (0.08)	<LOQ (<0.07)	<LOQ (<0.07)	16.35 (0.09)	26.67 (0.12)	36.02 (0.16)	44.64 (0.21)	37.01 (0.18)	53.96 (0.24)	44	
Adultes	260	0.07	76.9	23.1		16.62 (0.10)	15.63 (0.095)	17.68 (0.11)	<LOQ (<0.07)	12.39 (0.07)	20.73 (0.11)	31.03 (0.17)	44.80 (0.23)	56.71 (0.30)	50.26 (0.25)	65.13 (0.35)	56	
PCB-180																		
Tous (12-19 ans et 20-39 ans)	536	0.05	68.8	31.2		12.65 (0.066)	11.82 (0.06)	13.55 (0.07)	<LOQ (<0.05)	<LOQ (<0.05)	13.94 (0.07)	22.58 (0.12)	34.58 (0.17)	42.54 (0.23)	40.00 (0.20)	46.01 (0.26)	42	
Sang de cordon (nouveau-nés	284	0.05	4.9	95.1														
Groupes d'âge					<0.0001													<0.0001
Adolescents	276	0.05	53.6	46.4		9.99 (0.05)	9.13 (0.046)	10.94 (0.054)	<LOQ (<0.05)	<LOQ (<0.05)	9.89 (0.05)	19.53 (0.09)	27.54 (0.13)	34.26 (0.15)	30.12 (0.14)	40.17 (0.20)	34	
Adultes	260	0.05	85.0	15.0		16.25 (0.09)	14.79 (0.08)	17.86 (0.10)	<LOQ (<0.05)	10.67 (0.06)	16.87 (0.09)	27.45 (0.14)	40.55 (0.21)	46.86 (0.29)	43.15 (0.24)	67.38 (0.41)	46	

Tableau 4 suite

	N TOT	LOQ µg/l	N>LOQ %	N<LOQ %	Mann-Whitney p-value	Moyenne géométrique ng/g lip (µg/l) Moyenne	95%CI inf.	95%CI sup.	P5 ng/g lip	P25 ng/g lip	P50 ng/g lip	P75 ng/g lip	P90 ng/g lip	P95 ng/g lip	P95 ng/g lip (µg/l) 95%CI inf.	95%CI sup	RV_{95} ng/g lip (µg/l)	z-test p-value
PESTICIDES ORGANOCHLORÉS																		
Hexachlorobenzène (HCB)																		
Tous (12-19 ans et 20-39 ans)	536	0.08	19.4	80.6		<LOQ (<0.08)	-	-	<LOQ (<0.08)	<LOQ (<0.08)	<LOQ (<0.08)	<LOQ (<0.08)	17.57 (0.10)	22.14 (0.11)	19.76 (0.10)	23.69 (0.13)	22	
Sang de cordon (nouveau-nés	284	0.08	1.4	98.6														
Groupes d'âge					<0.0001													0.3933
Adolescents	276	0.08	13.0	87.0		<LOQ (<0.08)	-	-	<LOQ (<0.08)	<LOQ (<0.08)	<LOQ (<0.08)	<LOQ (<0.08)	16.73 (0.09)	21.45 (0.10)	17.80 (0.09)	23.87 (0.11)		
Adultes	260	0.08	26.2	73.8		<LOQ (<0.08)	-	-	<LOQ (<0.08)	<LOQ (<0.08)	<LOQ (<0.08)	11.69 (0.08)	18.84 (0.10)	22.11 (0.13)	19.76 (0.11)	25.66 (0.15)		
Genre					0.0093													<0.0001
Femmes	288	0.08	14.9	85.1		<LOQ (<0.08)	-	-	<LOQ (<0.08)	<LOQ (<0.08)	<LOQ (<0.08)	<LOQ (<0.08)	15.37 (0.09)	18.35 (0.10)	16.34 (0.09)	22.07 (0.12)	18	
Hommes	248	0.08	24.2	75.8		<LOQ (<0.08)	-	-	<LOQ (<0.08)	<LOQ (<0.08)	<LOQ (<0.08)	<LOQ (<0.08)	20.91 (0.11)	23.81 (0.12)	22.35 (0.11)	25.66 (0.14)	23	
Béta-hexachlorohexane (b-HCH)																		
Tous (12-19 ans et 20-39 ans)	536	0.05	2.8	97.2														
Sang de cordon (nouveau-nés	284	0.05	0.7	99.3														
4,4'-DDE (métabolite du 4,4'-DDT)																		
Tous (12-19 ans et 20-39 ans)	536	0.40	6.7	93.3		<LOQ (<0.40)	-	-	<LOQ (<0.40)	<LOQ (<0.40)	<LOQ (<0.40)	<LOQ (<0.40)	<LOQ (<0.40)	84.98 (0.45)	<LOQ (<0.40)	118.38 (0.61)		-
Sang de cordon (nouveau-nés	284	0.40	1.1	98.9														

5. COMPARAISON AVEC D'AUTRES ÉTUDES NATIONALES ET INTERNATIONALES POUR LA PHASE 1 (2019-2020): ADOLESCENTS (12-19 ANS) ET JEUNES ADULTES (20-39 ANS)

Les valeurs obtenues dans la population wallonne ont été comparées aux résultats mesurés dans d'autres populations semblables (adolescents et adultes) de pays ou régions si possible proches géographiquement, rapportés par des études comprenant un nombre de participants importants. Ces résultats (moyenne géométrique=MG, P50, P95 et RV95) ainsi que le nombre de participants et la période durant laquelle l'étude a été réalisée (années) sont présentés dans un tableau pour chaque marqueur.

5.1. Biomarqueurs urinaires

5.1.1. Le mercure

Tableau 5 : Concentrations en mercure urinaire mesurées dans différentes études

Hg						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
HBM-WAL						
Tous	543	2019-2020	<0.25	<0.25	0.46	0.45
Adolescents	282	2019-2020	<0.25	<0.25	0.37	0.37
Adultes	261	2019-2020	<0.25	<0.25	0.53	0.52
Sans amalgame	351	2019-2020	<0.25	<0.25	0.37	0.36
Avec amalgame	115	2019-2020	<0.25	<0.25	0.81	
Wallonie (Liège), Pirard et al., 2018						
Adultes (>18 ans)	252	2015	0.81	0.81	4.99	
Belgique, Hoet et al., 2013						
Adultes (>18 ans)	1001	2010-2011		0.382		
France (ESTEBAN), Balicco et al., 2021						
Tous (18-74 ans)	2419	2014-2016	0.75	0.91	3.32	
Allemagne (GerES), Schulz et al., 2009 et 2011						
Tous	1734	2003-2006		<0.1	0.5	
Sans amalgame	1612	2003-2006		<0.1	0.5	0.4
Enfants (3-14 ans) sans amalgame	-	2003-2006				0.4
Adultes sans amalgame	-	1997-1999				1.0
Adultes (>18 ans)	1001	2010-2011		0.382		
Italie, Apostoli et al., 2002						
Tous	383	1999		0.8 µg/g cr	3.7 µg/g cr	
USA (NHANES), CDC 2009						
Tous	2812	2017-2018	-	<0.13	1.05	
Adolescents (12-19 ans)	364	2017-2018	-	<0.13	0.70	
Adultes (>20 ans)	1708	2015-2016	-	<0.13	1.16	

Conclusion :

Les concentrations de mercure urinaire mesurées chez les participants wallons sont proches de celles rapportées récemment pour les populations belge, allemande, ou nord américaine.

Elles sont cependant très inférieures aux valeurs mesurées lors d'une étude en population liégeoise réalisée en 2015. Des différences entre les 2 populations étudiées (en termes d'âge, de nombre d'amalgames dentaires, d'habitude de vie comme la consommation de poisson) pourraient au moins partiellement expliquer ces observations.

5.1.2. Les bisphénols

Le bisphénol-P

Une concentration en BPP supérieure à la LOQ (0.09 µg/l) n'a été retrouvée que dans 4 échantillons d'urine. Aucune référence bibliographique n'a été trouvée pour comparer ces résultats.

Le bisphénol-F

Tableau 6 : Concentrations en BPF urinaire mesurées dans des différentes études

BPF						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
HBM-WAL						
Tous	543	2019-2020	0.08	<0.07	0.85	0.84
Belgique (Flandre), Schoeters et al., 2022						
Adolescents (14-15 ans)	414	2016-2020	0.17	0.15	1.12	
USA (NHANES), CDC 2009						
Tous	2686	2013-2014	0.53	0.40	9.80	
France, ESTEBAN, Santé publique France 2019						
Enfants (6-17 ans)	500	2014-2016	0.26	0.21	2.02	
Adultes (18-74 ans)	900	2014-2016	0.23	0.21	1.01	

Conclusion :

Les concentrations mesurées en bisphénol-F urinaire semblent être inférieures dans la population wallonne par rapport aux concentrations rapportées dans la littérature, mais celle-ci est peu documentée.

Le bisphénol-A

Tableau 7 : Concentrations en BPA urinaire mesurées dans différentes études

BPA						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
HBM-WAL						
Tous	543	2019-2020	0.53	0.51	3.76	3.70
Femmes	293	2019-2020	0.46	0.45	3.31	3.30
Hommes	250	2019-2020	0.63	0.62	3.88	3.80
Belgique (Flandre), Geens et al., 2014						
Adolescents (14-15 ans)	210	2007-2012	2.22	2.21		
Belgique (Flandre), Schoeters et al., 2022						
Adolescents (14-15 ans)	414	2016-2020	1.07	1.15	5.130	
Belgique (Liège), Pirard et al., 2012						
Tous	131	2011	2.55	2.46		
Femmes	66	2011	2.40	2.35		
Hommes	65	2011	2.70	2.66		
Belgique (Democophes), Koppen et al., 2019						
Femmes (27-45 ans)	129	2011-2012	2.60			
France, ESTEBAN, Santé publique France 2019						
Enfants (6-17 ans)	500	2014-2016	2.26	2.12	7.09	
Adultes (18-74 ans)	900	2014-2016	1.97	1.90	8.10	
France; Rancière et al., 2019						
Hommes	584	1996-1998		1.75	10.2	
France; Elfe, Dereumeaux et al., 2016						
Femmes (enceintes)	1764	2011	0.69	0.750	5.28	
Allemagne, Moos et al., 2014						
Adultes (18-64 ans)	157	2007-2009		2.20	6.50	
Allemagne, Koch et al., 2012						
Tous	180	2007-2009	1.37		6.34	
Allemagne, GerES, Becker et al., 2009						
Enfants (3-14 ans)	599	2007-2008	2.66	2.74	14.0	
Adolescents (12-14 ans)	168	2007-2008	2.42	2.60	11.0	
USA (NHANES), CDC 2009						
Tous	2686	2013-2014	1.28	1.30	7.70	
Femmes	1401	2013-2014	1.15	1.20	7.20	
Hommes	1285	2013-2014	1.43	1.40	8.30	
Canada, CHMS cycle 5						
Tous (3-79 ans)	2467	2016-2017	0.81	0.85	4.20	
Femmes	1332	2016-2017	0.78	0.85	3.30	
Hommes	1315	2016-2017	0.84	0.85	5.60	

Conclusion :

Depuis le début des années 2000, de plus en plus d'études décrivent les concentrations urinaires en bisphénol-A en population générale. Seules les plus récentes, faisant intervenir un grand nombre de participants et s'étant déroulées en Europe ou en Amérique du Nord ont été reprises dans le tableau 7. Les concentrations mesurées dans l'urine des participants wallons sont bien inférieures à toutes celles rapportées entre 2007 et 2017, confirmant une tendance à la baisse dans le temps résultant des différentes restrictions imposées en Europe et aux Etats-Unis sur l'utilisation du bisphénol-A (comme par exemple dans les papiers thermiques, les biberons, les matériaux en contact avec des denrées alimentaires destinées aux nourrissons et aux enfants, et dans les jouets).

Le bisphénol-S

Tableau 8 : Concentrations en BPS urinaire mesurées dans différentes études

BPS						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
HBM-WAL						
Tous	543	2019-2020	0.16	0.12	2.24	2.20
Adolescents	282	2019-2020	0.19	0.17	2.66	2.60
Adultes	261	2019-2020	0.14	0.05	1.89	1.80
Belgique (Flandre), Schoeters et al., 2022						
Adolescents (14-15 ans)	414	2016-2020	0.13	0.14	0.83	
France, ESTEBAN, Santé publique France 2019						
Enfants (6-17 ans)	500	2014-2016	0.44	0.34	8.33	
Adultes (18-74 ans)	900	2014-2016	0.38	0.31	6.33	
France; Rancière et al., 2019						
Hommes	584	1996-1998		<0.3	0.90	
USA (NHANES), CDC 2009						
Tous	2686	2013-2014	0.43	0.40	3.60	
Adolescents (12-19 ans)	461	2013-2014	0.40	0.40	3.20	
Adultes (>20 ans)	1812	2013-2014	0.44	0.40	3.80	

Conclusion :

Les concentrations urinaires en population wallonne semblent similaires à celles observées en Flandre, mais inférieures à celles mesurées en France ou aux Etats-Unis entre 2013 et 2016. Néanmoins, peu d'études confirment cette observation.

Le bisphénol-Z

Une recherche dans la littérature n'a pas permis de trouver qu'une seule étude ayant mesuré ce bisphénol dans l'urine en population générale (en Flandre), qui confirme les concentrations très basses mesurées dans l'urine des wallons.

BPZ						
HBM-WAL						
Tous	543	2019-2020	<0.06	<0.06	0.08	0.08
Adolescents	282	2019-2020	<0.06	<0.06	0.11	0.10
Adultes	261	2019-2020	<0.06	<0.06	<0.06	<0.06
Belgique (Flandre), Schoeters et al., 2022						
Adolescents (14-15 ans)	414	2016-2020	<0.03	<0.03	0.18	

5.1.3. Les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAPs)

Les 1- et 2-naphtols

Tableau 9 : Concentrations urinaires en 1-et 2-naphtol mesurées dans différentes études

1-naphtol						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
HBM-WAL						
Tous	543	2019-2020	0.58	0.48	8.73	8.70
Femmes	293	2019-2020	0.51	<0.40	5.94	
Hommes	250	2019-2020	0.68	0.61	11.59	
Non-fumeurs	499	2019-2020	0.48	0.45	2.52	2.50
Fumeurs	43	2019-2020	5.91	8.54	24.89	
Italie, Raponi et al., 2017						
Tous	200	?		0.33		
Fumeurs	39	?		3.41		
Non fumeurs	97	?		0.25		
UK, Bevan et al., 2013						
Tous (>18 ans)	298	2005				15.6
Allemagne (GerES), Murawski et al., 2020						
Enfants et adolescents (3-17 ans)	516	2015-2017	0.79	0.74	7.14	
Allemagne (GerES), Wilhelm et al., 2008						
Femmes non fumeurs (25-51 ans)	67	?		3.60	29.9	
Femmes fumeurs (26-44 ans)	35	?		13.0	32.9	
USA (NHANES), CDC 2009						
Tous	2640	2013-2014	1.52	1.16	21.3	
Femmes	1328	2013-2014	1.36	0.99	20.9	
Hommes	1312	2013-2014	1.69	1.30	22.3	
Canada, CHMS cycle 4						
Tous (3-79 ans)	2500	2014-2015	0.97	0.81	13.0	
Femmes	1255	2014-2015	0.94	0.73	14.0	
Hommes	1245	2014-2015	1.00	0.94	11.0	
Adolescents (12-19 ans)	497	2014-2015	0.69	0.65	4.70	
Adultes (20-39 ans)	358	2014-2015	1.10	0.97	11.0	

Tableau 9 suite

2-naphtol						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
HBM-WAL						
Tous	543	2019-2020	4.15	4.28	31.4	31.0
Femmes	293	2019-2020	3.75	3.77	31.2	31.0
Hommes	250	2019-2020	4.66	5.10	31.8	31.0
Adolescents	282	2019-2020	4.96	5.37	33.7	33.0
Adultes	261	2019-2020	3.42	3.13	31.1	31.0
Non-fumeurs	499	2019-2020	3.79	3.70	28.4	28.0
Fumeurs	43	2019-2020	11.7	13.7	39.4	
Belgique (Flandre), Schoeters et al., 2022						
Adolescents (14-15 ans)	413	2016-2020	4.07	3.75	19.4	
Italie, Raponi et al., 2017						
Tous	200	<2016		2.24		
Fumeurs	39	<2016		7.02		
Non fumeurs	97	<2016		1.64		
UK, Bevan et al., 2013						
Tous (>18 ans)	298	2005				11.7
UK, Aquilina et al., 2010						
Tous	86	?	2.92			
Non-exposés au tabac	55	?	3.13			
Exposés passivement au tabac	37	?	2.64			
Allemagne (GerES), Murawski et al., 2020						
Enfants et adolescents (3-17 ans)	516	2015-2017	4.23	4.08	23.7	
Allemagne (GerES), Wilhelm et al., 2008						
Femmes non fumeurs (25-51 ans)	67	?		2.10	16.9	
Femmes fumeurs (26-44 ans)	35	?		17.0	52.0	
USA (NHANES), CDC 2009						
Tous	2641	2013-2014	4.14	4.18	28.1	
Femmes	1331	2013-2014	4.29	4.22	30.3	
Hommes	1310	2013-2014	4.14	4.05	28.5	
Adolescents (12-19 ans)	449	2013-2014	5.09	5.41	28.6	
Adultes (>20 ans)	1793	2013-2014	4.24	4.18	30.3	
Canada, CHMS cycle 4						
Tous (3-79 ans)	2481	2014-2015	4.60	4.60	27.0	
Femmes	1249	2014-2015	4.70	4.80	37.0	
Hommes	1232	2014-2015	4.50	4.50	24.0	
Adolescents (12-19 ans)	495	2014-2015	4.70	4.80	32.0	
Adultes (20-39 ans)	354	2014-2015	5.60	5.40	29.0	

Conclusion :

Dans la littérature, les concentrations urinaires des 1- et 2-naphtols sont souvent décrites séparément pour les non-fumeurs et fumeurs, ces derniers présentant des concentrations urinaires plus élevées. Les résultats urinaires de 1-naphtol observés en Wallonie paraissent

inférieurs à ceux rapportés pour des populations nord-américaines, et légèrement inférieurs aux concentrations mesurées en Allemagne entre 2015 et 2017. Pour le 2-naphtol, les concentrations sont similaires à celles que l'on rencontre dans la littérature récente quel que soit le pays.

Les 2-, 3- et 9-hydroxyfluorènes

Tableau 10 : Concentrations urinaires en 2-, 3- et 9-hydroxyfluorène mesurées dans différentes études

9-hydroxyfluorène						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
HBM-WAL						
Tous	543	2019-2020	0.14	<0.1	1.43	1.40
USA (NHANES), CDC 2009						
Tous	2491	2011-2012	0.25	0.24	1.55	
Canada, CHMS cycle 4						
Tous (3-79 ans)	2501	2014-2015	0.15	0.14	0.72	
2-hydroxyfluorène						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
HBM-WAL						
Tous	543	2019-2020	<0.10	<0.10	1.25	1.20
Femmes	293	2019-2020	<0.10	<0.10	0.42	0.42
Hommes	250	2019-2020	<0.10	<0.10	1.36	1.30
Adolescents	282	2019-2020	<0.10	<0.10	0.25	0.25
Adultes	261	2019-2020	<0.10	<0.10	2.02	2.01
Non-fumeurs	499	2019-2020	<0.10	<0.10	0.20	0.19
Fumeurs	43	2019-2020	0.60	1.27	3.61	
UK, Aquilina et al., 2010						
Tous	86	?	0.28			
Non-exposés au tabac	55	?	0.30			
Exposés passivement au tabac	37	?	0.25			
Allemagne (GerES), Murawski et al., 2020						
Enfants et adolescents (3-17 ans)	516	2015-2017	0.39	0.45	1.27	
USA (NHANES), CDC 2009						
Tous	2650	2013-2014	0.18	0.16	1.65	
Femmes	1335	2013-2014	0.16	0.14	1.61	
Hommes	1315	2013-2014	0.20	0.18	1.67	
Adolescents (12-19 ans)	449	2013-2014	0.17	0.18	1.14	
Adultes (>20 ans)	1802	2013-2014	0.19	0.16	1.82	
Canada, CHMS cycle 4						
Tous (3-79 ans)	2510	2014-2015	0.28	0.24	2.30	
Femmes	1259	2014-2015	0.25	0.21	2.20	
Hommes	1251	2014-2015	0.31	0.30	2.40	
Adolescents (12-19 ans)	498	2014-2015	0.24	0.26	0.93	
Adultes (20-39 ans)	359	2014-2015	0.34	0.32	2.30	

Tableau 10 suite

3-hydroxyfluorène						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
HBM-WAL						
Tous	543	2019-2020	<0.10	<0.10	0.75	0.75
Adolescents	282	2019-2020	<0.10	<0.10	0.22	0.22
Adultes	261	2019-2020	<0.10	<0.10	1.27	1.20
Non-fumeurs	499	2019-2020	<0.10	<0.10	0.16	0.16
Fumeurs	43	2019-2020	0.53	0.78	2.64	
UK, Aquilina et al., 2010						
Tous	38	?	0.180			
Non-exposés au tabac	24	?	0.160			
Exposés passivement au tabac	14	?	0.210			
USA (NHANES), CDC 2009						
Tous	2650	2013-2014	0.08	0.07	1.01	
Adolescents (12-19 ans)	449	2013-2014	0.08	0.08	0.61	
Adultes (>20 ans)	1802	2013-2014	0.08	0.07	1.21	
Canada, CHMS cycle 4						
Tous (3-79 ans)	2508	2014-2015	0.10	0.08	1.30	
Adolescents (12-19 ans)	498	2014-2015	0.09	0.09	0.44	
Adultes (20-39 ans)	358	2014-2015	0.12	0.10	1.40	

Conclusion :

Même si peu d'études ont mesuré les hydroxyfluorènes dans l'urine de population générale, les concentrations observées en Wallonie pour le 3- et le 9-hydroxyfluorène semblent être proches de celles rapportées récemment (entre 2013 et 2015) pour les populations nord-américaines. Les concentrations de 2-hydroxyfluorène paraissent un peu plus faibles en population wallonne, bien que du même ordre de grandeur.

Les 1-, 2-, 3- et 4-hydroxyphénanthrènes

Tableau 11 Concentrations en hydroxyphénanthrènes mesurées dans différentes études

1-hydroxyphénanthrène						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
HBM-WAL						
Tous	543	2019-2020	0.131	0.134	0.620	0.62
Non-fumeurs (p=0.03474)	499	2019-2020	0.127	0.128	0.605	0.60
Fumeurs	43	2019-2020	0.189	0.220	0.725	
Belgique (Flandre), Schoeters et al., 2022 (1- & 9-hydroxyphénanthrènes)						
Adolescents (14-15 ans)	413	2016-2020	0.111	0.105	0.323	
UK, Aquilina et al., 2010						
Tous	85	?	0.220			
Non-exposés au tabac	54	?	0.220			
Exposés passivement au tabac	37	?	0.220			
Allemagne (GerES), Murawski et al., 2020						
Enfants et adolescents (3-17 ans)	516	2015-2017	0.139	0.140	0.560	
USA (NHANES), CDC 2009						
Tous	2650	2013-2014	0.09	0.09	0.43	
Canada, CHMS cycle 4						
Tous (3-79 ans)	2506	2014-2015	0.160	0.150	0.700	

Tableau 11 suite

2-hydroxyphénanthrène						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
HBM-WAL						
Tous	543	2019-2020	<0.10	<0.10	0.242	0.24
Femmes	293	2019-2020	<0.10	<0.10	0.225	0.22
Hommes	250	2019-2020	<0.10	<0.10	0.254	0.25
Adolescents	282	2019-2020	<0.10	<0.10	0.204	0.20
Adultes	261	2019-2020	<0.10	<0.10	0.262	0.26
Non-fumeurs	499	2019-2020	<0.10	<0.10	0.223	0.22
Fumeurs	43	2019-2020	<0.10	<0.10	0.381	
Belgique (Flandre), Schoeters et al., 2022						
Adolescents (14-15 ans)	413	2016-2020	0.074	0.072	0.178	
UK, Aquilina et al., 2010						
Tous	85	?	0.140			
Non-exposés au tabac	54	?	0.140			
Exposés passivement au tabac	37	?	0.140			
Allemagne (GerES), Murawski et al., 2020						
Enfants et adolescents (3-17 ans)	516	2015-2017	0.085	0.080	0.330	
USA (NHANES), CDC 2009						
Tous	2489	2011-2012	0.06	0.06	0.29	
Femmes	1232	2011-2012	0.05	0.05	0.26	
Hommes	1257	2011-2012	0.07	0.07	0.34	
Adolescents (12-19 ans)	389	2011-2012	0.06	0.06	0.21	
Adultes (>20 ans)	1703	2011-2012	0.06	0.06	0.31	
Canada, CHMS cycle 4						
Tous (3-79 ans)	2506	2014-2015	0.062	0.061	0.260	
Femmes	1257	2014-2015	0.057	0.055	0.240	
Hommes	1249	2014-2015	0.066	0.067	0.270	
Adolescents (12-19 ans)	497	2014-2015	0.059	0.059	0.220	
Adultes (20-39 ans)	357	2014-2015	0.072	0.077	0.260	
3-hydroxyphénanthrène						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
HBM-WAL						
Tous	543	2019-2020	<0.10	<0.10	0.551	0.55
Femmes	293	2019-2020	<0.10	<0.10	0.411	0.41
Hommes	250	2019-2020	0.109	<0.10	0.587	0.58
Non-fumeurs	499	2019-2020	<0.10	<0.10	0.424	0.42
Fumeurs	43	2019-2020	0.240	0.246	1.012	
Belgique (Flandre), Schoeters et al., 2022						
Adolescents (14-15 ans)	413	2016-2020	0.073	0.072	0.168	
UK, Aquilina et al., 2010 (3 & 4-hydroxyphénanthrène)						
Tous	85	?	0.220			
Non-exposés au tabac	54	?	0.220			
Exposés passivement au tabac	37	?	0.210			
Allemagne (GerES), Murawski et al., 2020						
Enfants et adolescents (3-17 ans)	516	2015-2017	0.131	0.130	0.410	
USA (NHANES), CDC 2009						
Tous	2491	2011-2012	0.06	0.06	0.38	
Femmes	1233	2011-2012	0.05	0.06	0.30	
Hommes	1258	2011-2012	0.07	0.07	0.48	
Canada, CHMS cycle 4						
Tous (3-79 ans)	2506	2014-2015	0.089	0.090	0.430	
Femmes	1256	2014-2015	0.081	0.081	0.390	
Hommes	1250	2014-2015	0.097	0.097	0.450	

Tableau 11 suite

4-hydroxyphénanthrène						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
HBM-WAL						
Tous	543	0.10	<0.10	<0.10	0.263	0.26
UK, Aquilina et al., 2010 (3 & 4-hydroxyphénanthrène)						
Tous	85	?	0.220			
Allemagne (GerES), Murawski et al., 2020						
Enfants et adolescents (3-17 ans)	516	2015-2017	0.045	0.040	0.270	
USA (NHANES), CDC 2009						
Tous	2487	2011-2012	0.02	0.02	0.10	
Canada, CHMS cycle 4						
Tous (3-79 ans)	2504	2014-2015	0.023	0.023	0.120	
Somme des hydroxyphénanthrènes						
Espagne (BIOAMBIENT.ES) Bartolome et al., 2014						
Tous (>16 ans)	957	2009-2010	0.183	0.200	1.650	
Non-fumeurs	256	2009-2010	0.129	0.110	1.230	
Fumeurs	237	2009-2010	0.448	0.740	1.780	

Conclusion :

Les concentrations des métabolites urinaires de phénanthrène mesurées en population wallonne sont globalement similaires à celles rapportées dans les autres pays.

Le 1-hydroxypyrène

Il existe beaucoup de données sur les concentrations urinaires du métabolite principal du pyrène car celui-ci est souvent considéré comme le biomarqueur représentatif d'une exposition aux HAPs. Le plus souvent, des niveaux urinaires supérieurs sont rapportés pour des fumeurs vs non-fumeurs.

Tableau 12: Concentrations urinaires en 1-hydroxypyrène mesurées dans différentes études

1-hydroxypyrène						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
HBM-WAL						
Tous	543	2019-2020	<0.15	<0.15	0.325	0.32
Non-fumeurs	499	2019-2020	<0.15	<0.15	0.261	0.26
Fumeurs	43	2019-2020	0.181	0.191	0.666	
Belgique (Flandre),Schoeters et al., 2012						
Adolescents (14-15 ans)	202	2007-2011	0.137			
Adultes (20-40 ans)	191	2007-2011	0.101			
Belgique (Flandre),Schoeters et al., 2017						
Adolescents (14-15 ans)	200	2013	0.122			
Belgique (Flandre), Schoeters et al., 2022						
Adolescents (14-15 ans)	412	2016-2020	0.067	0.066	0.164	
France, Lafontaine et al., 2006						
Non-fumeurs	27	?			P90:	0.19 µg/g cr
Fumeurs	27	?			P90:	1.02 µg/g cr
Italie, Raponi et al., 2017						
Tous	200	?		0.061		
Fumeurs	39	?		0.122		
Non fumeurs	97	?		0.055		
UK, Aquilina et al., 2010						
Tous	85	?	0.140			
Non-exposés au tabac	54	?	0.140			
Exposés passivement au tabac	37	?	0.130			
Allemagne (GerES), Murawski et al., 2020						
Enfants et adolescents (3-17 ans)	516	2015-2017	0.099	0.100	0.360	
Adolescents (14-17 ans)	149	2015-2017	0.122	0.130	0.430	
Non-fumeurs (3-17 ans)	496	2015-2017	0.097	0.100	0.320	
Fumeurs (3-17 ans)	19	2015-2017	0.192	0.180	0.570	
Allemagne (GerES), Wilhelm et al., 2008						
Adultes (18-69 ans)	573	1997-1999		0.140	0.730	
Non-fumeurs	389	1997-1999		0.100	0.530	0.5
Fumeurs	184	1997-1999		0.250	1.030	
Espagne (BIOAMBIENT.ES) Bartolome et al., 2014						
Tous (>16 ans)	957	2009-2010	0.164	0.180	0.980	
Non-fumeurs	256	2009-2010	0.115	0.120	0.590	
Fumeurs	237	2009-2010	0.259	0.310	1.120	
USA (NHANES), CDC 2009						
Tous	2650	2013-2014	0.13	0.12	0.65	
Canada, CHMS cycle 4						
Tous (3-79 ans)	2409	2014-2015	0.096	0.093	0.510	

Conclusion :

Des différences entre enfants ou adolescents et adultes sont parfois observées, notamment en Flandre où des concentrations plus élevées ont été mesurées chez des adolescents comparés aux jeunes adultes recrutés à la même période. Dans notre population, si des différences ont également été observées entre adolescents et adultes, ce sont les adultes qui présentent des concentrations urinaires plus élevées même si cette différence n'est pas statistiquement significative (p = 0.07169). En plus de l'hydroxypyrène, cette tendance est également mise en évidence pour la plupart des autres métabolites de HAPs excepté pour le 2-naphtol. Notre population d'adolescents étant composée de moins de fumeurs que le groupe d'adultes, des analyses statistiques multivariées seront nécessaires pour vérifier si ces différences persistent une fois les données ajustées pour le statut tabagique. Hormis en Espagne où des concentrations légèrement supérieures ont été mesurées chez des participants âgés de plus de 16 ans, la contamination urinaire en 1-hydroxypyrène dans la population wallonne est fort proche de celle rapportée pour les populations générales d'enfants, adolescents ou adultes résidant en Flandre, France, Italie, Allemagne, aux Etats-Unis ou au Canada.

5.1.4. Le glyphosate et l'acide aminométhylphosphonique (AMPA)

Tableau 13: Concentrations urinaires en glyphosate et AMPA mesurées dans différentes études

Glyphosate						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
HBM-WAL						
Tous	543	2019-2020	<0.08	<0.08	0.230	0.23
Femmes	293	2019-2020	<0.08	<0.08	0.133	0.13
Hommes	250	2019-2020	<0.08	<0.08	0.256	0.25
Adolescents	282	2019-2020	<0.08	<0.08	0.230	
Adultes	261	2019-2020	<0.08	<0.08	0.230	
Belgique (Flandre), Schoeters et al., 2022						
Adolescents (14-15 ans)	415	2016-2020	<0.1	<0.1	0.391	
France, ESTEBAN, Pécheux et al., 2021						
Tous (18-74 ans)	891	2014-2016	-	<0.05	0.45*	
Portugal, Nova et al., 2020						
Tous (>20 ans)	46	2018 (juillet)	0.070		0.320	
Tous (>20 ans)	33	2018 (octobre)	0.060		0.250	
Allemagne, Conrad et al., 2017						
Tous	40	2015		<0.1	0.450	
Femmes	20	2015		<0.1	0.370	
Hommes	20	2015		<0.1	0.450	
Allemagne, Connolly et al., 2020						
Tous (23-61 ans)	41	2016-2017		0.090		
Slovénie, Stanjko et al., 2020						
Adolescents (12-15 ans)	97	2018	<0.1	<0.1	0.190	
USA, Fagan et al., 2020						
Tous, alimentation conventionelle	16	2017		0.510		
Tous, alimentation bio	16	2017		0.120		

Tableau 13 suite

Acide aminométhylphosphonique (AMPA)						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
HBM-WAL						
Tous	543	2019-2020	<0.15	<0.15	0.220	0.22
Belgique (Flandre), Schoeters et al., 2022						
Adolescents (14-15 ans)	415	2016-2020	<0.1	0.110	0.371	
France, ESTEBAN, Pécheux et al., 2021						
Tous (18-74 ans)	891	2014-2016	0.11*	<0.05	0.42*	
Portugal, Nova et al., 2020						
Tous (>20 ans)	46	2018 (juillet)	0.090		0.280	
Tous (>20 ans)	33	2018 (octobre)	0.100		0.150	
Allemagne, Conrad et al., 2017						
Tous	40	2015		<0.1	0.380	
Femmes	20	2015		<0.1	0.380	
Hommes	20	2015		<0.1	0.380	
Allemagne, Connolly et al., 2020						
Tous (23-61 ans)	41	2016-2017		0.200		
Slovénie, Stanjko et al., 2020						
Adolescents (12-15 ans)	97	2018	<0.1	<0.1	0.330	
USA, Fagan et al., 2020						
Tous, alimentation conventionelle	16	2017		0.430		
Tous, alimentation bio	16	2017		0.120		

*concentrations exprimées en µg/g creatinine (pour l'étude ESTEBAN)

Conclusion :

Peu d'études ont rapporté des concentrations urinaires en glyphosate et AMPA en population générale, et les données existantes concernent un petit nombre de participants, à l'exception de l'étude FLESH IV. Lors d'études en Flandre, en Allemagne, au Portugal et en Slovénie, les fréquences de détection pour le glyphosate variaient entre 27 et 40% suivant le pays. Elles sont identiques aux fréquences de détection obtenues pour la population wallonne (les méthodes analytiques utilisées dans ces études sont de sensibilité semblable à celle utilisée pour l'étude wallonne). Les résultats moyens et P95 rapportés par ces différentes études sont proches de ceux déterminés dans notre étude. Seule une étude américaine a mesuré des niveaux de concentration plus élevés, mais le nombre de participants était très limité questionnant la représentativité de l'échantillon. De plus les pratiques agricoles américaines concernant le glyphosate sont très différentes comparées aux pratiques et règlementations européennes.

Les mêmes conclusions peuvent être tirées pour l'AMPA, à savoir des concentrations et fréquences de détection faibles et proches de ce qui a été mesuré dans les autres études.

5.1.5. Les métabolites de pesticides organophosphorés (spécifiques et non spécifiques)

Beaucoup d'études ont décrit dans la littérature les concentrations urinaires des dialkylphosphates, métabolites communs à plusieurs pesticides organophosphorés. Les tableaux ci-dessous reprennent les plus importantes et/ou les plus proches dans le temps et géographiquement.

Les diéthyl-, diéthylthio- et diéthyldithiophosphates (DEP, DETP, DEDTP)

Tableau 14: Concentrations urinaires en DEP, DETP et DEDTP mesurées dans différentes études

Diéthylphosphate (DEP)						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
HBM-WAL						
Tous	541	2019-2020	1.54	1.69	10.88	10.8
Adolescents	282	2019-2020	2.14	2.16	13.43	13.0
Adultes	261	2019-2020	1.08	1.20	7.13	7.10
Belgique (Flandre),Schoeters et al., 2012						
Adolescents (14-15 ans)	192	2007-2011	2.50			
Adultes (20-40 ans)	190	2007-2011	2.40			
Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020						
Enfants (9-12 ans)	240	2016		1.80	29.97	
France (ENNS), Frery et al., 2012						
tous (18-74 ans)	392	2006-2007	3.94	3.82	22.44	
France, ESTEBAN, Tagne-Fotso et al., 2021						
tous (18-74 ans)	899	2014-2016	-	<0.6	16.34	
France; Elfe, Dereumeaux et al., 2016						
Femmes (enceintes)	1036	2011		<0.6	<0.6	
Espagne (INMA), Llop et al., 2017						
Femmes (enceintes)	855	2003-2006	1.73			
Espagne, Melgarejo 2015						
Hommes (25-38 ans)	119	2012-2013		3.00	15.60	
Allemagne, Heudorf et al., 2006						
Tous (adultes et enfants)	1149	1998		2.60	15.80	16
Enfants (2-17 ans) (GerES)	363	2001-2002		3.80	20.00	
Italie, Aprea et al., 1996						
Adultes	124	<1996	4.22 µg/g cr	4.33 µg/g cr		
USA (NHANES), CDC 2009						
Tous	2804	2017-2018	2.28	2.20	17.90	
Adolescents (12-19 ans)	353	2017-2018	2.41	2.20	16.50	
Adultes (>20 ans)	1702	2017-2018	2.14	2.01	17.90	
Canada, CHMS cycle 5						
Tous (3-79 ans)	2646	2016-2017	2.20	2.10	14.00	
Adolescents (12-19 ans)	524	2016-2017	2.60	2.70	17.00	
Adultes (20-39 ans)	361	2016-2017	2.00	1.80	15.00	

Tableau 14 suite

Diéthylthiophosphate (DETP)						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
HBM-WAL						
Tous	541	2019-2020	<0.5	<0.5	1.42	1.40
Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020						
Enfants (9-12 ans)	216	2016		<0.5	3.50	
France (NNS), Frery et al., 2012						
tous (18-74 ans)	392	2006-2007	1.07	1.04	8.18	
France, ESTEBAN, Tagne-Fotso et al., 2021						
tous (18-74 ans)	899	2014-2016	-	<0.6	4.44	
France; Elfe, Dereumeaux et al., 2016						
Femmes (enceintes)	1036	2011		<0.6	<0.6	
Espagne (INMA), Llop et al., 2017						
Femmes (enceintes)	855	2003-2006	0.22			
Espagne, Melgarejo 2015						
Hommes (25-38 ans)	119	2012-2013		0.80	12.1	
Allemagne, Heudorf et al., 2006						
Tous (adultes et enfants)	1149	1998		<1	7.10	
Enfants (2-17 ans) (GerES)	363	2001-2002		<1	11.0	
Italie, Aprea et al., 1996						
Adultes	124	<1996	3.85 µg/g cr	4.14 µg/g cr		
USA (NHANES), CDC 2009						
Tous	2796	2017-2018	-	0.12	1.55	
Adolescents (12-19 ans)	353	2017-2018	-	0.12	1.52	
Adultes (>20 ans)	1694	2017-2018	-	0.12	1.45	
Canada, CHMS cycle 5						
Tous (3-79 ans)	2610	2016-2017	0.370	0.320	4.40	
Diéthyldithiophosphate (DEDTP)						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
HBM-WAL						
Tous	541	2019-2020	<0.5	<0.5	<0.5	
Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020						
Enfants (9-12 ans)	240	2016		<0.5	0.590	
France (NNS), Frery et al., 2012						
tous (18-74 ans)	392	2006-2007	0.020	0.013	0.358	
France, ESTEBAN, Tagne-Fotso et al., 2021						
tous (18-74 ans)	899	2014-2016	-	<0.6	<0.6	
France; Elfe, Dereumeaux et al., 2016						
Femmes (enceintes)	1036	2011		<0.02	<0.02	
Espagne, Melgarejo 2015						
Hommes (25-38 ans)	119	2012-2013		0.070	0.070	
Allemagne, Heudorf et al., 2006						
Tous (adultes et enfants)	1149	1998		<1	<1	
Enfants (2-17 ans) (GerES)	363	2001-2002		<1	<1	
Italie, Aprea et al., 1996						
Adultes	124	<1996	2.55 µg/g cr	2.25 µg/g cr		
USA (NHANES), CDC 2009						
Tous	2804	2007-2008	-	<0.10	<0.10	
Adolescents (12-19 ans)	353	2017-2018	-	<0.10	<0.10	
Adultes (>20 ans)	1703	2017-2018	-	<0.10	<0.10	
Canada, CHMS cycle 5						
Tous (3-79 ans)	2643	2016-2017	-	<0.06	0.072	

Conclusion :

Les concentrations médianes mesurées dans les échantillons d'urine de la population wallonne constituant l'effectif de BMH-WAL sont comparables à celles observées dans l'urine d'enfants wallons âgés entre 9 et 12 ans et recrutés en 2016 lors du projet EXPOPESTEN. Seules les valeurs extrêmes (P95) paraissent plus élevées chez les enfants recrutés en 2016. D'autre part, les concentrations urinaires rapportées en dehors de la Wallonie semblent légèrement voire nettement plus élevées. C'est par exemple le cas dans une étude réalisée en Flandre entre 2007 et 2011 chez des adolescents. Cette différence d'exposition entre le Nord et le Sud du pays avait déjà été observée (Pirard et al., 2020). A noter cependant que la plupart de ces études ont été réalisées il y a plus de 10 ans, et que les seules données récentes (autres que EXPOPESTEN) ne sont pas si éloignées des valeurs wallonnes actuelles (Canada, 2016-2017).

Les diméthylthio- et diméthyldithiophosphates (DMTP, DMDTP)

Tableau 15: Concentrations urinaires en DMTP et DMDTP mesurées dans différentes études

Diméthylthiophosphate (DMTP)						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
HBM-WAL						
Tous	541	2019-2020	1.12	1.18	7.53	7.50
Adolescents	282	2019-2020	1.44	1.56	8.46	8.40
Adultes	261	2019-2020	0.859	0.824	6.68	6.60
Belgique (Flandre),Schoeters et al., 2012						
Adolescents (14-15 ans)	203	2007-2011	5.80			
Adultes (20-40 ans)	181	2007-2011	5.00			
Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020						
Enfants (9-12 ans)	216	2016		1.01	13.7	
France (NNS), Frery						
tous (18-74 ans)	392	2006-2007	6.65	6.16	63.0	
France, ESTEBAN, Tagne-Fotso et al., 2021						
tous (18-74 ans)	899	2014-2016	2.00	2.16	14.77	
France; Elfe, Dereumeaux et al., 2016						
Femmes (enceintes)	1036	2011		<0.6	2.53	
Espagne (INMA), Llop et al., 2017						
Femmes (enceintes)	855	2003-2006	2.39			
Espagne, Melgarejo 2015						
Hommes (25-38 ans)	119	2012-2013		1.40	18.9	
Allemagne, Heudorf et al., 2006						
Tous (adultes et enfants)	1149	1998		15.2	161.8	160
Enfants (2-17 ans) (GerES)	363	2001-2002		8.40	124.0	
Italie, Aprea et al., 1996						
Adultes	124	<1996	10.04 µg/g cr	10.22 µg/g cr		
USA (NHANES), CDC 2009						
Tous	2800	2017-2018	0.72	0.64	10.7	
Adolescents (12-19 ans)	352	2017-2018	0.75	0.62	10.5	
Adultes (>20 ans)	1700	2017-2018	0.67	0.61	8.7	
Canada, CHMS cycle 5						
Tous (3-79 ans)	2645	2016-2017	1.30	1.10	20.0	
Adolescents (12-19 ans)	524	2016-2017	1.50	1.40	19.0	
Adultes (20-39 ans)	361	2016-2017	1.00	0.71	20.0	

Tableau 15 suite

Diméthyldithiophosphate (DMDTP)						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
HBM-WAL						
Tous	541	2019-2020	<0.50	<0.50	0.815	0.81
Adolescents	282	2019-2020	<0.50	<0.50	0.990	0.99
Adultes	261	2019-2020	<0.50	<0.50	0.566	0.56
Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020						
Enfants (9-12 ans)	216	2016		<0.5	1.31	
France (NNS), Frery						
tous (18-74 ans)	392	2006-2007	0.760	0.640	6.94	
France, ESTEBAN, Tagne-Fotso et al., 2021						
tous (18-74 ans)	899	2014-2016	<0.6	<0.6	<0.6	
France; Elfe, Dereumeaux et al., 2016						
Femmes (enceintes)	1036	2011		<0.4	4.16	
Espagne (INMA), Llop et al., 2017						
Femmes (enceintes)	855	2003-2006	0.07			
Espagne, Melgarejo 2015						
Hommes (25-38 ans)	119	2012-2013		0.070	0.300	
Allemagne, Heudorf et al., 2006						
Tous (adultes et enfants)	1149	1998		<1	11.9	
Enfants (2-17 ans) (GerES)	363	2001-2002		<1	10.8	
Italie, Aprea et al., 1996						
Adultes	124	<1996	3.33 µg/g cr	3.87 µg/g cr		
USA (NHANES), CDC 2009						
Tous	2804	2017-2018	-	0.11	1.87	
Adolescents (12-19 ans)	353	2017-2018	-	0.11	1.96	
Adultes (>20 ans)	1703	2017-2018	-	<0.10	1.65	
Canada, CHMS cycle 5						
Tous (3-79 ans)	2618	2016-2017	-	0.097	4.10	
Adolescents (12-19 ans)	521	2016-2017	-	0.120	4.90	
Adultes (20-39 ans)	360	2016-2017	-	<0.09	-	

Conclusion :

On retrouve les mêmes observations que pour les diéthylphosphates mais les différences avec les autres études sont plus marquées. A nouveau, seule l'étude très récente sur la population canadienne rapporte des concentrations urinaires proches de celles retrouvées en population wallonne.

Le trichloropyridinol (TCPY)

Peu d'études ont mesuré le TCPY, métabolite spécifique du chlopryrifos.

Tableau 16: Concentrations urinaires en TCPY mesurées dans différentes études

Trichloropyridinol (TCPY)						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
HBM-WAL						
Tous	542	2019-2020	0.446	0.507	1.90	1.90
Femmes	292	2019-2020	0.373	0.420	1.44	1.40
Hommes	250	2019-2020	0.549	0.597	2.27	2.20
Adolescents	281	2019-2020	0.503	0.555	1.94	1.90
Adultes	261	2019-2020	0.392	0.439	1.88	1.80
Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020						
Enfants (9-12 ans)	229	2016		3.87	12.1	
Belgique (Flandre), Schoeters et al., 2022						
Adolescents (14-15 ans)	415	2016-2020	4.25	4.45	12.3	
Espagne (INMA), Llop et al., 2017						
Femmes (enceintes)	855	2003-2006	0.49			
Espagne, Gari et al., 2018						
Adultes	125	?	3.70	3.20		
USA (NHANES), CDC 2009						
Tous	2747	2009-2010	0.78	1.03	4.47	
Femmes	1404	2009-2010	0.70	0.94	4.40	
Hommes	1343	2009-2010	0.87	1.16	4.66	
Adolescents (12-19 ans)	401	2009-2010	0.88	1.08	4.30	
Adultes (>20 ans)	1309	2009-2010	0.71	0.97	4.18	
Canada, CHMS cycle 4						
Tous (3-79 ans)	2422	2014-2015	1.40	1.30	9.30	
Femmes	1213	2014-2015	1.20	1.10	7.80	
Hommes	1209	2014-2015	1.50	1.40	9.90	
Adolescents (12-19 ans)	478	2014-2015	1.50	1.20	11.0	
Adultes (20-39 ans)	336	2014-2015	1.30	1.20	8.40	

Conclusion :

On observe des concentrations en TCPY dans l'urine des adolescents et adultes wallons bien inférieures à celles mesurés dans l'urine des enfants recrutés en 2016 (projet EXPOPESTEN) ou chez les adolescents flamands (FLESH-IV) recrutés entre 2016 et 2020. Cette diminution importante est probablement le résultat de la décision européenne de ne pas renouveler l'autorisation du chlorpyrifos et du chlorpyrifos-methyl depuis décembre 2019. En effet, comme le recrutement s'est majoritairement déroulé en 2020, et comme ces pesticides (et donc leurs métabolites) non persistants sont rapidement éliminés de l'organisme, il n'est pas surprenant de déjà observer les effets d'une telle mesure. Les concentrations de TCPY rapportées dans les autres études internationales (antérieures) sont également bien supérieures à celles mesurées dans l'étude actuelle.

5.1.6. Les métabolites de pesticides pyréthrinoïdes (spécifiques et non spécifiques)

Plusieurs études ont mesuré les taux urinaires de métabolites de pesticides pyréthrinoïdes, notamment en France et en Allemagne, mais peu sont récentes.

Tableau 17: Concentrations urinaires en 4F-3-PBA, c-DCCA, t-DCCA, DBCA, et 3-PBA mesurées dans différentes études

4F-3-PBA						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
HBM-WAL						
Tous	542	2019-2020		<0.11	<0.11	
Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020						
Enfants (9-12 ans)	229	2016		<0.11	<0.11	
France (NNS), Frery et al., 2012						
tous (18-74 ans)	396	2006-2007	<0.1	<0.1	0.820	
France (ESTEBAN), Chaperon et al., 2021						
tous (18-74 ans)	900	2014-2016	-	<0.015	0.07	
France, ELFE, Dereumeaux et al., 2018						
Femmes (enceintes)	1059	2011	<0.015	<0.015	0.020	
Espagne, Gari et al., 2018						
Adultes	125	?	0.088	0.076		
Allemagne, Heudorf et al., 2006						
Tous (adultes et enfants)	1177	1998		<0.2	0.27	
Enfants (2-17 ans) (GerES)	396	2001-2002		<0.1	<0.1	
USA (NHANES), CDC 2009						
Tous	2747	2009-2010	-	<0.1	<0.1	
Canada, CHMS cycle 5						
Tous (3-79 ans)	2649	2016-2017	-	<0.08	0.08	
c-DCCA						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
HBM-WAL						
Tous	542	2019-2020	<0.20	<0.20	1.02	1.02
Adolescents	281	2019-2020	<0.20	<0.20	1.08	1.08
Adultes	261	2019-2020	<0.20	<0.20	0.864	0.86
Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020						
Enfants (9-12 ans)	206	2016		<0.5	2.01	
France (NNS), Frery et al., 2012						
tous (18-74 ans)	396	2006-2007	0.170	0.130	1.42	
France (ESTEBAN), Chaperon et al., 2021						
tous (18-74 ans)	900	2014-2016	0.24	0.25	1.53	
France, ELFE, Dereumeaux et al., 2018						
Femmes (enceintes)	1056	2011	0.220	0.200	1.05	
Allemagne, Heudorf et al., 2006						
Tous (adultes et enfants)	1177	1998		<0.20	0.510	
Enfants (2-17 ans) (GerES)	396	2001-2002		0.110	0.740	
Allemagne, Egerer et al., 2004						
Adultes	211	2003-2004		<0.03	0.160	1.00
Canada, CHMS cycle 5						
Tous (3-79 ans)	2715	2016-2017	0.180	0.150	-	
Adolescents (12-19 ans)	538	2016-2017	0.150	0.110	-	
Adultes (20-39 ans)	376	2016-2017	0.210	0.180	-	

Tableau 17 suite

t-DCCA						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
HBM-WAL						
Tous	542	2019-2020	0.35	0.35	2.72	2.70
Femmes	292	2019-2020	0.30	0.27	2.51	2.50
Hommes	250	2019-2020	0.42	0.44	2.74	2.70
Adolescents	281	2019-2020	0.43	0.43	2.82	2.80
Adultes	261	2019-2020	0.28	0.26	2.14	2.10
Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020						
Enfants (9-12 ans)	220	2016		0.66	4.29	
France (NNS), Frery et al., 2012						
tous (18-74 ans)	396	2006-2007	0.39	0.31	3.85	
France (ESTEBAN), Chaperon et al., 2021						
tous (18-74 ans)	900	2014-2016	0.18	0.17	1.46	
France, ELFE, Dereumeaux et al., 2018						
Femmes (enceintes)	1077	2011	0.38	0.34	2.62	
Allemagne, Heudorf et al., 2006						
Tous (adultes et enfants)	1177	1998		0.24	1.43	2.00
Enfants (2-17 ans) (GerES)	396	2001-2002		0.19	1.73	
Allemagne, Egerer et al., 2004						
Adultes	211	2003-2004		<0.03	0.37	
USA (NHANES), CDC 2009						
Tous	2747	2009-2010	-	<0.6	5.42	
Femmes	1404	2009-2010	-	<0.6	5.51	
Hommes	1343	2009-2010	-	<0.6	4.98	
Adolescents (12-19 ans)	401	2009-2010	-	<0.6	1.78	
Adultes (>20 ans)	1309	2009-2010	-	<0.6	5.88	
Canada, CHMS cycle 5						
Tous (3-79 ans)	2719	2016-2017	0.27	0.23	-	
Femmes	1364	2016-2017	0.29	0.24	-	
Hommes	1355	2016-2018	0.25	0.21	4.50	
Adolescents (12-19 ans)	538	2016-2017	0.26	0.21	4.60	
Adultes (20-39 ans)	376	2016-2017	0.33	0.24	-	
DBCA						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
HBM-WAL						
Tous	542	2019-2020	<0.30	<0.30	1.64	1.60
Femmes (p=0.0001667)	292	2019-2020	<0.30	<0.30	1.14	1.10
Hommes	250	2019-2020	0.32	<0.30	1.84	1.80
Adolescents (p<0.0001)	281	2019-2020	0.33	<0.30	2.02	2.02
Adultes	261	2019-2020	<0.30	<0.30	0.93	0.93
France (NNS), Frery et al., 2012						
tous (18-74 ans)	396	2006-2007	0.37	0.36	2.33	
France (ESTEBAN), Chaperon et al., 2021						
tous (18-74 ans)	900	2014-2016	0.64	0.69	4.43	
France, ELFE, Dereumeaux et al., 2018						
Femmes (enceintes)	1077	2011	0.330	0.330	1.49	
Allemagne, Heudorf et al., 2006						
Tous (adultes et enfants)	1177	1998		<0.1	0.30	
Enfants (2-17 ans) (GerES)	396	2001-2002		<0.1	0.52	
Allemagne, Egerer et al., 2004						
Adultes	211	2003-2004		<0.02	0.14	
USA (NHANES), CDC 2009						
Tous	2746	2009-2010	-	<0.5	<0.5	
Femmes	1403	2009-2010	-	<0.5	<0.5	
Hommes	1343	2009-2010	-	<0.5	<0.5	
Adolescents (12-19 ans)	401	2009-2010	-	<0.5	<0.5	
Adultes (>20 ans)	1308	2009-2010	-	<0.5	<0.5	
Canada, CHMS cycle 5						
Tous (3-79 ans)	2633	2016-2017	0.019	0.019	0.18	
Femmes	1328	2016-2017	0.020	0.019	0.17	
Hommes	1305	2016-2018	0.019	0.018	0.20	
Adolescents (12-19 ans)	521	2016-2017	0.026	0.024	0.18	
Adultes (20-39 ans)	363	2016-2017	0.019	0.019	0.15	

Tableau 17 suite

3-PBA						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
HBM-WAL						
Tous	542	2019-2020	0.49	0.54	2.86	2.80
Femmes (p=0.0003451)	292	2019-2020	0.42	0.41	2.65	2.60
Hommes	250	2019-2020	0.57	0.64	2.95	2.90
Adolescents (p<0.0001)	281	2019-2020	0.65	0.70	3.22	3.20
Adultes	261	2019-2020	0.36	0.37	2.19	2.10
Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020						
Enfants (9-12 ans)	229	2016		0.98	5.33	
Belgique (Flandre), Schoeters et al., 2022						
Adolescents (14-15 ans)	415	2016-2020	0.95	0.87	4.14	
France (NNS), Frery et al., 2012						
tous (18-74 ans)	396	2006-2007	0.74	0.65	4.36	
France (ESTEBAN), Chaperon et al., 2021						
tous (18-74 ans)	900	2014-2016	0.72	0.72	3.23	
France, ELFE, Dereumeaux et al., 2018						
Femmes (enceintes)	1077	2011	0.36	0.36	1.89	
Espagne, Gari et al., 2018						
Adultes	125	?	2.50	1.50		
Allemagne, Heudorf et al., 2006						
Adultes	211	2003-2004	0.040	0.51		2
Enfants (2-17 ans) (GerES)	396	2001-2002		0.29	2.35	
USA (NHANES), CDC 2009						
Tous	2723	2009-2010	0.42	0.40	6.50	
Femmes	1392	2009-2010	0.42	0.40	6.50	
Hommes	1331	2009-2010	0.42	0.40	6.50	
Adolescents (12-19 ans)	398	2009-2010	0.40	0.41	3.92	
Adultes (>20 ans)	1296	2009-2010	0.42	0.39	6.95	
Canada, CHMS cycle 5						
Tous (3-79 ans)	2706	2016-2017	0.53	0.46	9.70	
Femmes	1358	2016-2017	0.62	0.49	15.0	
Hommes	1348	2016-2018	0.46	0.41	4.30	
Adolescents (12-19 ans)	533	2016-2017	0.45	0.37	-	
Adultes (20-39 ans)	375	2016-2017	0.61	0.48	-	

Conclusion :

Les concentrations urinaires des métabolites de pesticides pyréthrinoïdes, qu'ils soient spécifiques ou communs à plusieurs pesticides, sont comparables aux valeurs rapportées dans la littérature quel que soit le pays ou la période sur laquelle s'est étendue l'étude, mais légèrement plus élevées que celles mesurées chez les enfants recrutés dans le cadre du projet EXPOPESTEN. Néanmoins, ces résultats ne sont pas contradictoires car il a été démontré à plusieurs reprises que l'exposition aux pesticides des enfants est souvent plus importante que les adultes, et qu'elle diminue avec l'âge (Weiss et al., 2004).

5.2. Biomarqueurs sanguins

5.2.1. Les pesticides organochlorés et PCBs

Si un grand nombre d'études ont mesuré les pesticides organochlorés et les PCBs dans le sang de population générale depuis la fin des années 80, peu ont été réalisées récemment. Il a été démontré que les niveaux sériques de ces polluants organiques persistants diminuaient dans le temps depuis leur interdiction (ou stricte règlementation) fin des années 70 (Hardell et al., 2010; Noest et al., 2013; Petrik et al., 2006 ; Pirard et al., 2018). Dès lors, seules les données produites après 2010 sont regroupées dans le tableau ci-dessous.

Tableau 18: Concentrations sériques en PCBs (138, 153, 180 et sommes des 3)

PCB-138						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			ng/g lip (µg/l)	ng/g lip (µg/l)	ng/g lip (µg/l)	ng/g lip (µg/l)
HBM-WAL						
Tous (12-19 ans et 20-39 ans)	536	2019-2020	<LOQ (<0.15)	<LOQ (<0.15)	<LOQ (<0.15)	
Sang de cordon (nouveau-nés)	284	2019-2020	<LOQ (<0.15)	<LOQ (<0.15)	<LOQ (<0.15)	
Adolescents	276	2019-2020	<LOQ (<0.15)	<LOQ (<0.15)	<LOQ (<0.15)	
Adultes	260	2019-2020	<LOQ (<0.15)	<LOQ (<0.15)	30.99 (0.16)	
Belgique (Liège), Pirard et al., 2018						
Adultes (>18 ans)	251	2015		<LOQ (<0.15)		
Suède, Bjermo et al., 2013						
Adultes (>18 ans)	267	2010-2011	26.2			
Danemark, Bjerregaard-Olesen et al., 2017						
Femmes enceintes	197	2011 et 2013		11 et 8		
USA (NHANES), CDC 2009						
Garçons 12-19 ans	-	2013-2014	3.6			
Filles 12-19 ans	-	2013-2014	4.39			
Hommes 20-39 ans	-	2013-2014	4.93			
Femmes 20-39 ans	-	2013-2014	5.35			

Tableau 18 suite

PCB-153						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			ng/g lip (µg/l)	ng/g lip (µg/l)	ng/g lip (µg/l)	ng/g lip (µg/l)
HBM-WAL						
Tous (12-19 ans et 20-39 ans)	536	2019-2020	16.62 (0.09)	18.61 (0.10)	52.88 (0.25)	52
Sang de cordon (nouveau-nés)	284	2019-2020	<LOQ (<0.07)	<LOQ (<0.07)	<LOQ (<0.07)	
Adolescents	276	2019-2020	14.82 (0.07)	16.35 (0.09)	44.64 (0.21)	44
Adultes	260	2019-2020	16.62 (0.10)	20.73 (0.11)	56.71 (0.30)	56
Belgique (Liège), Pirard et al., 2018						
Adultes (>18 ans)	251	2015		53.78 (0.36)		
Suède, Bjermo et al., 2013						
Adultes (>18 ans)	267	2010-2011	63.8			
Danemark, Bjerregaard-Olesen et al., 2017						
Femmes enceintes	197	2011 et 2013		22.3 et 18		
USA (NHANES), CDC 2009						
Garçons 12-19 ans	-	2013-2014	5.06			
Filles 12-19 ans	-	2013-2014	4.52			
Hommes 20-39 ans	-	2013-2014	7.72			
Femmes 20-39 ans	-	2013-2014	6.92			

PCB-180						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			ng/g lip (µg/l)	ng/g lip (µg/l)	ng/g lip (µg/l)	ng/g lip (µg/l)
HBM-WAL						
Tous (12-19 ans et 20-39 ans)	536	2019-2020	12.65 (0.066)	13.94 (0.07)	42.54 (0.23)	42
Sang de cordon (nouveau-nés)	284	2019-2020	<LOQ (<0.05)	<LOQ (<0.05)	<LOQ (<0.05)	
Adolescents	276	2019-2020	9.99 (0.05)	9.89 (0.05)	34.26 (0.15)	34
Adultes	260	2019-2020	16.25 (0.09)	16.87 (0.09)	46.86 (0.29)	46
Belgique (Liège), Pirard et al., 2018						
Adultes (>18 ans)	251	2015		41.07 (0.28)		
Suède, Bjermo et al., 2013						
Adultes (>18 ans)	267	2010-2011	49.8			
Danemark, Bjerregaard-Olesen et al., 2017						
Femmes enceintes	197	2011 et 2013		13.9 et 12		
USA (NHANES), CDC 2009						
Garçons 12-19 ans	-	2013-2014	2.46			
Filles 12-19 ans	-	2013-2014	2.04			
Hommes 20-39 ans	-	2013-2014	4.39			
Femmes 20-39 ans	-	2013-2014	4.12			

Tableau 18 suite

Somme PCBs						
HBM-WAL						
Tous (12-19 ans et 20-39 ans)	536	2019-2020	29.3 (0.16)	32.6 (0.17)	95.4 (0.48)	
Sang de cordon (nouveau-nés)	284	2019-2020	<LOQ	<LOQ	<LOQ	
Adolescents	276	2019-2020	24.81 (0.12)	26.3 (0.14)	78.9 (0.36)	
Adultes	260	2019-2020	32.9 (0.19)	36.7 (0.20)	134.6 (0.75)	
Belgique (Flandre),Schoeters et al., 2012						
Nouveaux-nés	205	2008-2009	59 (0.12)			
Adolescents (14-15 ans)	205	2008-2009	50 (0.22)			
Belgique (Flandre), FLESH IV						
Adolescents (14-15 ans)	428	2017-2018	(0.094)			
Espagne (BIOAMBIANT.ES), Huetos et al., 2014						
Adultes (>18 ans)	1880	2009-2010	135.4		482.2	
Suède, Bjermo et al., 2013						
Adultes (>18 ans)	267	2010-2011	139.8			

Tableau 19: Concentrations sériques en HCB et 4,4'-DDE

Hexachlorobenzène						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			ng/g lip (µg/l)	ng/g lip (µg/l)	ng/g lip (µg/l)	ng/g lip (µg/l)
HBM-WAL						
Tous (12-19 ans et 20-39 ans)	536	2019-2020	<LOQ (<0.08)	<LOQ (<0.08)	22.14 (0.11)	22.00
Sang de cordon (nouveau-nés)	284	2019-2020	<LOQ (<0.08)	<LOQ (<0.08)	<LOQ (<0.08)	
Adolescents	276	2019-2020	<LOQ (<0.08)	<LOQ (<0.08)	21.45 (0.10)	
Adultes	260	2019-2020	<LOQ (<0.08)	<LOQ (<0.08)	22.11 (0.13)	
Belgique (Liège), Pirard et al., 2018						
Adultes (>18 ans)	251	2015		<LOQ (<0.08)		
Belgique (Flandre),Schoeters et al., 2012						
Nouveaux-nés	205	2008-2009	9.30			
Adolescents (14-15 ans)	205	2008-2009	8.33 (0.04)			
Belgique (Flandre), FLESH IV						
Adolescents (14-15 ans)	428	2017-2018		7.50	14.10	
Suède, Bjermo et al., 2013						
Adultes (>18 ans)	267	2010-2011	10.7			
Danemark, Bjerregaard-Olesen et al., 2017						
Femmes enceintes	197	2011 et 2013		11.8 et 10.0		
USA (NHANES), CDC 2009						
Garçons 12-19 ans	-	2013-2014	7.39			
Filles 12-19 ans	-	2013-2014	6.7			
Hommes 20-39 ans	-	2013-2014	8.66			
Femmes 20-39 ans	-	2013-2014	7.9			

Tableau 19 suite

4,4'-DDE						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			ng/g lip (µg/l)	ng/g lip (µg/l)	ng/g lip (µg/l)	ng/g lip (µg/l)
HBM-WAL						
Tous (12-19 ans et 20-39 ans)	536	2019-2020	<LOQ (<0.40)	<LOQ (<0.40)	84.98 (0.45)	
Sang de cordon (nouveau-nés)	284	2019-2020	<LOQ (<0.40)	<LOQ (<0.40)	<LOQ (<0.40)	
Belgique (Liège), Pirard et al., 2018						
Adultes (>18 ans)	251	2015		<LOQ (<0.40)		
Belgique (Flandre),Schoeters et al., 2012						
Nouveaux-nés	205	2008-2009	70 (0.31)			
Adolescents (14-15 ans)	205	2008-2009	78 (0.16)			
Belgique (Flandre), FLESH IV						
Adolescents (14-15 ans)	428	2017-2018		42.70	208.90	
Suède, Bjermo et al., 2013						
Adultes (>18 ans)	267	2010-2011	61.4			
Danemark, Bjerregaard-Olesen et al., 2017						
Femmes enceintes	197	2011 et 2013		41.1 et 35.0		
USA (NHANES), CDC 2009						
Garçons 12-19 ans	-	2013-2014	57.8			
Filles 12-19 ans	-	2013-2014	40.4			
Hommes 20-39 ans	-	2013-2014	76.3			
Femmes 20-39 ans	-	2013-2014	72.3			

Conclusion :

Pour le PCB-138, il est difficile de tirer des conclusions, car les taux de détection observés dans l'étude actuelle sont très faibles (autour de 6% pour les adultes, et moins de 1 % pour les adolescents). Lors d'une étude en population liégeoise recrutée en 2015 (même laboratoire, même méthode analytique), les taux de détection étaient plus élevés (41%), mais la population était aussi plus âgée (âge moyen de 45 ans), ce qui pourrait justifier en partie cette différence. Pour les PCB-153 et -180, les concentrations sériques sont proches de celles mesurées chez des femmes enceintes danoises en 2011 et 2013, mais bien plus basses que les concentrations rapportées pour des adultes suédois recrutés entre 2010 et 2011. Comme pour le PCB-138, les concentrations en PCB-153 et -180 sont entre 2 et 3 fois plus faibles que celles mesurées en population liégeoise en 2015. L'âge de la population étudiée et la décroissance des niveaux sériques dans le temps (4 à 5 ans séparent les 2 études) sont deux facteurs qui combinés pourraient justifier une telle diminution. D'autre part, de manière assez surprenante, les résultats observés aux Etats-Unis entre 2013 et 2014 chez les adolescents ou les adultes de mêmes tranches d'âge sont largement inférieurs aux concentrations mesurées dans la population wallonne 6 ans plus tard.

Certaines études rapportent la somme des 3 PCBs sans détailler leurs concentrations individuelles (comme par exemple pour les études flamandes ou l'étude espagnole), elles sont également reprises dans le tableau 18. Si les concentrations mesurées pour la somme des PCB-138, -153 et -180 sont très largement inférieures aux concentrations rapportées pour des études plus anciennes (2008-2011) quel que soit le pays considéré, elles sont très proches des valeurs retrouvées chez des adolescents flamands recrutés entre 2017 et 2018.

Les fréquences de détection et concentrations sériques pour les pesticides organochlorés sont très faibles, difficilement comparables aux autres études (les limites de quantification varient d'une étude à l'autre suivant les méthodes analytiques utilisées). Comme pour les PCBs, les fréquences de détection sont plus basses que celles observées en population liégeoise 5 ans plus tôt.

6. STATISTIQUES DESCRIPTIVES ET VALEURS DE RÉFÉRENCE POUR LA PHASE 2 (2020-2022): ENFANTS (3-5 ANS ET 6-11 ANS)

6.1. Mesure de la créatinine urinaire

La créatinine urinaire (créatininurie) a été dosée dans 586 des 602 échantillons récoltés (nous ne disposions pas d'un volume suffisant pour 16 échantillons). Les résultats (moyenne géométrique et son intervalle de confiance à 95%, percentiles P5, P25, P50, P75, P95 et son intervalle de confiance à 95%, et concentrations minimum et maximum) sont présentés dans le tableau 20.

Tableau 20 : Valeurs obtenues lors de la mesure de la créatinine urinaire

	N TOT	Moyenne géom. (g/l)		P5	P25	P50	P75	P95		Min-max
		Moyenne	CI 95%	g/l	g/l	g/l	g/l	g/l	CI 95%	µg/l
CRÉATININE										
Tous	586	1.06	1.02-1.11	0.46	0.80	1.14	1.46	2.09	2.01-2.26	0.11-2.96
Groupes d'âge										
3-5 ans (p < 0.0001)	288	0.90	0.85-0.95	0.38	0.68	0.91	1.24	1.76	1.48-1.64	0.11-2.60
6-11 ans	298	1.26	1.20-1.31	0.66	1.01	1.29	1.63	2.29	2.21-2.45	0.20-2.96

Dix échantillons d'urine présentaient une créatininurie inférieure à 0.3 g/L, et aucune valeur n'était supérieure à 3 g/L. Cette plage de valeur définie comme référence est habituellement utilisée dans les études de biomonitoring pour exclure les résultats provenant d'échantillons d'urine ayant une créatininurie anormalement basse ou haute, et exclure ainsi les résultats aberrants (excessivement dilués ou concentrés) (WHO, 1996). Néanmoins, comme l'excrétion de la créatinine est liée entre autres à la masse musculaire et à l'âge (les enfants éliminent une plus petite quantité de créatinine dans leurs urines que les adultes (Allen et al., 2004)), cet intervalle de référence n'est en général pas considéré comme pertinent pour des enfants et les concentrations des biomarqueurs ajustées par rapport à la créatinine ne sont présentées en annexe que par analogie aux populations d'adultes et adolescents et doivent interprétées avec beaucoup de prudence.

Comme attendu, la créatininurie des enfants âgés entre 3 et 5 ans est significativement plus faible ($p<0.0001$) que celle des enfants de la tranche 5-11 ans. Par contre, aucune différence significative n'a été observée entre les filles et les garçons au sein d'un même groupe d'âge.

6.2. Biomarqueurs urinaires

Pour chacun des biomarqueurs urinaires, le nombre de participants présentant des valeurs supérieures à la limite de quantification (LOQ), le pourcentage de participants présentant des valeurs supérieures et inférieures à la LOQ, la moyenne géométrique et son intervalle de confiance à 95%, les percentiles P5, P25, P50, P75, P90, P95 et son intervalle de confiance à 95%, et la valeur de référence (RV_{95}) ont été déterminés et sont présentés dans les tableaux 21 (21a à 21f) pour l'ensemble de la population et pour les différents sous-groupes lorsque

c'était pertinent. Les p-values obtenues lors des tests de Mann-Whitney et z-test pour une proportion sont également rapportées. La p-value des tests de Mann-Whitney est également indiquée lorsque la différence n'est pas significative mais <0.1 (à la limite de la significativité). Les valeurs sont exprimées en µg/L. Les résultats ajustés par rapport à la créatinine (exprimés en µg/g creatinine) sont présentés à l'annexe 4.

Un test de Kruskal-Wallis a également été réalisé pour comparer les concentrations mesurées dans l'urine des 4 classes d'âge recrutées sur l'ensemble des 2 phases du biomonitoring (3-5 ans, 6-11 ans, 12-19 ans, et 20-39 ans). Pour chacun des marqueurs ciblés, à l'exception du 1-naphtol et du 3-hydroxyphénanthrène, la p-value obtenue était significative ($p<0.05$), signe qu'au moins une des classes d'âge présentent des valeurs médianes et/ou une distribution significativement différente. Des tests de Dunn ont donc été réalisés pour déterminer quelles sont les classes d'âge qui diffèrent. A noter que les comparaisons statistiques entre les classes d'âges de la phase 1 (12-19 ans et 20-39 ans) et celles de la phase 2 (3-5 ans, 6-11 ans) doivent être faites avec prudence, les collectes n'ayant pas été faites lors de la même période (phase 1 : 2019-2020 ; phase 2 : 2020-2021). Les résultats ne sont donnés qu'à titre indicatif dans l'annexe-5.

Tableau 21 : Statistiques descriptives pour le Hg urinaire (en µg/l)

Hg	N TOT	LOQ µg/l	N>LOQ %	N<LOQ %	Mann Whitney p-value	min-max µg/l	MG [95%CI] µg/l	P5 µg/l	P25 µg/l	P50 µg/l	P75 µg/l	P90 µg/l	P95 [95%CI] µg/l	RV_{95} µg/l	z-test p-value
Tous															
	592	0.25	8.1	91.9		<0.25-1.51	<0.25 -	<0.25	<0.25	<0.25	<0.25	0.28	0.39 [0.31-0.54]	0.39	
Consommation de poisson dans les 4 derniers jours					0.0106										<0.0001
Pas de consommation	335	0.25	5.7	94.3		<0.25-0.96	<0.25 -	<0.25	<0.25	<0.25	<0.25	<0.25	0.28 [0.25-0.39]	0.27	
Consommation	257	0.25	11.3	88.7		<0.25-1.51	<0.25 -	<0.25	<0.25	<0.25	<0.25	0.31	0.53 [0.39-0.65]	0.52	

La différence entre les catégories (M-W) est considérée comme significative pour p<0.05
La différence entre les RV95 (z-test) est considérée comme significative pour p<0.001

Tableau 21b : Statistiques descriptives pour les bisphénols urinaires (en µg/l)

BPP															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	600	0.09	0.0	100.0											
BPF															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	600	0.07	31.5	68.5		<0.07-10.09	<0.07 -	<0.07	<0.07	<0.07	0.10	0.33	0.78 [0.52-1.07]	0.78	
BPA															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	600	0.29	88.2	11.8		<0.29-96.65	0.75 [0.70-0.81]	<0.29	0.44	0.77	1.28	2.17	3.25 [2.91-4.21]	3.20	
Groupes d'âge					0.0102										0.1073
3-5 ans	298	0.29	90.6	9.4		<0.29-32.42	0.83 [0.75-0.92]	<0.29	0.50	0.84	1.34	2.64	3.78 [2.96-5.92]		
6-11 ans	302	0.29	85.8	14.2		<0.29-96.65	0.69 [0.62-0.76]	<0.29	0.42	0.72	1.18	2.07	2.84 [2.18-3.98]		
BPS															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	600	0.09	56.8	43.2		<0.09-50.15	0.19 [0.17-0.22]	<0.09	<0.09	0.17	0.57	1.21	2.38 [1.76-3.41]	2.30	
Groupes d'âge					0.0028										0.0077
3-5 ans	298	0.09	63.4	36.6		<0.09-46.80	0.23 [0.20-0.27]	<0.09	<0.09	0.27	0.61	1.46	3.43 [2.62-4.51]		
6-11 ans	302	0.09	50.3	49.7		<0.09-50.15	0.16 [0.13-0.18]	<0.09	<0.09	0.10	0.56	1.03	1.59 [1.27-2.17]		

Tableau 21b suite

BPZ															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	600	0.06	3.8	96.2		<0.06-1.04									
** différences 5-6 ans<6-11 ans: p=0.061840*															

* La p-value est indiquée lorsque "limite" significative (p<0.1)
La différence entre les catégories (M-W) est considérée comme significative pour p<0.05
La différence entre les RV95 (z-test) est considérée comme significative pour p<0.001

Tableau 21c : Statistiques descriptives pour les HAPs urinaires (en µg/l)

1-NAPHTOL															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	584	0.40	63.0	37.0		<0.4-125.12	0.53 [0.49-0.57]	<0.40	<0.40	0.52	0.91	1.73	2.88 [2.22-3.80]	2.80	
2-NAPHTOL															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	584	0.40	96.2	3.8		<0.4-261.35	6.59 [5.93-7.33]	1.01	2.99	6.31	16.20	33.70	54.09 [43.64-72.68]	54.0	
2-HYDROXYFLUORÈNE															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	584	0.10	4.5	95.5		<0.10-4.14									

Tableau 21c suite

3-HYDROXYFLUORÈNE															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	584	0.10	14.0	86.0		<0.10-2.64	<0.10 -	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.16	0.32 [0.24-0.43]	0.32	
9-HYDROXYFLUORÈNE															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	584	0.10	87.2	12.8		<0.10-9.98	0.36 [0.33-0.39]	<0.10	0.19	0.39	0.70	1.36	1.90 [1.73-2.50]	1.90	
1-HYDROXYPHÉNANTHRÈNE															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	584	0.10	65.8	34.2		<0.10-10.37	0.16 [0.15-0.18]	<0.10	<0.10	0.19	0.33	0.55	0.85 [0.68-1.14]	0.85	
2-HYDROXYPHÉNANTHRÈNE															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	584	0.10	6.3	93.7		<0.10-0.98	<0.10 -	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.12 [0.10-0.16]	0.12	
3-HYDROXYPHÉNANTHRÈNE															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	584	0.10	46.7	53.3		<0.10-4.47	0.10 [<0.10-0.11]	<0.10	<0.10	<0.10	0.18	0.32	0.49 [0.39-0.61]	0.49	

Tableau 21c suite

4-HYDROXYPHÉNANTHRÈNE															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	584	0.10	19.3	80.7		<0.10-7.85	<0.10 -	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.24	0.42 [0.33-0.59]	0.42	
Groupes d'âge					0.0120										0.1966
3-5 ans	287	0.10	23.7	76.3		<0.10-7.85	<0.10 -	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.27	0.49 [0.33-0.70]		
6-11 ans	297	0.10	15.2	84.8		<0.10-5.69	<0.10 -	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.19	0.37 [0.25-0.75]		
1-HYDROXYPYRÈNE															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	584	0.15	38.4	61.6		<0.15-2.12	<0.15 -	<0.15	<0.15	<0.15	0.21	0.35	0.51 [0.45-0.68]	0.51	

La différence entre les catégories (M-W) est considérée comme significative pour p<0.05
La différence entre les RV95 (z-test) est considérée comme significative pour p<0.001

Tableau 21d : Statistiques descriptives pour le glyphosate et AMPA urinaires (en µg/l)

GLYPHOSATE															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	601	0.08	34.3	65.7		<0.08-5.02	<0.08 -	<0.08	<0.08	<0.08	0.10	0.20	0.30 [0.25-0.37]	0.30	
ACIDE AMINOMÉTHYLPHOSPHONIQUE (AMPA)															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	601	0.15	21.3	78.7		<0.15-3.63	<0.15 -	<0.15	<0.15	<0.15	<0.15	0.23	0.32 [0.29-0.40]	0.32	
Groupes d'âge					0.0040										0.0040
3-5 ans	299	0.15	16.4	83.6		<0.15-1.02	<0.15 -	<0.15	<0.15	<0.15	<0.15	0.18	0.28 [0.23-0.40]		
6-11 ans	302	0.15	26.2	73.8		<0.15-3.63	<0.08 -	<0.15	<0.15	<0.15	0.15	0.26	0.36 [0.29-0.53]		

La différence entre les catégories (M-W) est considérée comme significative pour p<0.05
La différence entre les RV95 (z-test) est considérée comme significative pour p<0.001

Tableau 21e : Statistiques descriptives pour les pesticides organophosphorés urinaires (en µg/l)

DIÉTHYLPHOSPHATE (DEP)															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	601	0.50	99.5	0.5		<0.50-251.14	4.33 [4.05-4.63]	1.23	2.53	4.04	7.23	12.79	18.38 [16.15-21.37]	18.0	
Groupes d'âge					0.0087										0.0040
3-5 ans	300	0.50	99.7	0.3		<0.50-251.14	4.73 [4.27-5.24]	1.14	2.63	4.60	7.84	15.81	19.84 [18.38-27.12]		
6-11 ans	301	0.50	99.3	0.7		<0.50-133.54	3.97 [3.63-4.33]	1.28	2.43	3.62	6.34	11.31	14.68 [12.51-17.44]		
DIÉTHYLTHIOPHOSPHATE (DETP)															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	601	0.50	12.8	87.2		<0.50-10.35	<0.50 -	<0.50	<0.50	<0.50	<0.50	0.62	1.14 [0.91-1.41]	1.10	
Groupes d'âge					0.0105										0.1817
3-5 ans	300	0.50	16.3	83.7		<0.50-8.80	<0.50 -	<0.50	<0.50	<0.50	<0.50	0.78	1.21 [1.02-1.87]		
6-11 ans	301	0.50	9.3	90.7		<0.50-10.35	<0.50 -	<0.50	<0.50	<0.50	<0.50	<0.50	0.89 [0.58-1.36]		
** différences filles>garçons: p=0.058789*															
DIÉTHYLDITHIOPHOSPHATE (DEDTP)															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	601	0.50	0.0	100.0											

Tableau 21e suite

DIMÉTHYLDHIOPHOSPHATE (DMTP)															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	601	0.50	86.9	13.1		<0.50-66.19	1.69 [1.54-1.86]	<0.50	0.85	1.64	3.45	6.62	13.20 [9.57-19.00]	13.10	
DIMÉTHYLDITHIOPHOSPHATE (DMDTP)															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	601	0.50	24.0	76.0		<0.50-17.19	<0.50 -	<0.50	<0.50	<0.50	<0.50	0.90	1.46 [1.25-1.96]	1.4	
** différences filles>garçons: p=0.082584*															
TRICHLOROPYRIDINOL (TCPY)															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	601	0.08	99.3	0.7		<0.08-10.42	0.60 [0.57-0.63]	0.21	0.39	0.57	0.91	1.43	1.94 [1.74-2.48]	1.90	

* La p-value est indiquée lorsque "limite" significative (p<0.1)
La différence entre les catégories (M-W) est considérée comme significative pour p<0.05
La différence entre les RV95 (z-test) est considérée comme significative pour p<0.001

Tableau 21f : Statistiques descriptives pour les pesticides pyréthrinoïdes urinaires (en µg/l)

	N TOT	LOQ µg/l	N>LOQ %	N<LOQ %	Mann Whitney p-value	min-max µg/l	MG [95%CI] µg/l	P5 µg/l	P25 µg/l	P50 µg/l	P75 µg/l	P90 µg/l	P95 [95%CI] µg/l	RV_{95} µg/l	z-test p-value
c-DCCA															
Tous															
	601	0.20	62.1	37.9		<0.20-24.21	0.34 [0.31-0.38]	<0.20	<0.20	0.36	0.82	1.43	2.12 [1.77-2.61]	2.10	
** différences filles<garçons: p=0.099405*															
t-DCCA															
Tous															
	601	0.15	91.0	9.0		<0.15-226.3	0.96 [0.88-1.06]	<0.15	0.54	1.01	2.10	3.46	5.42 [4.18-7.03]	5.40	
** différences filles<garçons: p=0.085489*															
DBCA															
Tous															
Tous	601	0.30	61.1	38.9		<0.30-21.83	0.38 [0.36-0.41]	<0.30	<0.30	0.38	0.69	1.26	1.73 [1.50-2.22]	1.70	
** différences 5-6 ans<6-11 ans: p=0.078181*															
3-PBA															
Tous															
	601	0.09	99.0	1.0		<0.09-152.3	1.31 [1.21-1.41]	0.32	0.73	1.29	2.35	4.46	5.94 [5.13-7.96]	5.90	
Genre					0.0003										0.0844
Filles	293	0.09	98.3	1.7		<0.09-152.3	1.18 [1.05-1.32]	0.25	0.67	1.18	2.09	3.54	5.32 [4.04-9.71]		
Garçons	308	0.09	99.7	0.3		<0.09-64.43	1.45 [1.31-1.60]	0.39	0.83	1.40	2.52	4.76	6.30 [5.23-8.68]		

Tableau 21f suite

4-F-3-PBA															
	N TOT	**LOQ** µg/l	**N>LOQ** %	**N<LOQ** %	**Mann Whitney** p-value	**min-max** µg/l	**MG [95%CI]** µg/l	**P5** µg/l	**P25** µg/l	**P50** µg/l	**P75** µg/l	**P90** µg/l	**P95 [95%CI]** µg/l	**RV_{95}** µg/l	**z-test** p-value
Tous															
	601	0.11	1.5	98.5		<0.11-3.05									

* La p-value est indiquée lorsque "limite" significative (p<0.1)
La différence entre les catégories (M-W) est considérée comme significative pour p<0.05
La différence entre les RV95 (z-test) est considérée comme significative pour p<0.001

6.2.1. Le mercure urinaire

Seules 8% des urines des enfants recrutés présentent des taux urinaires en mercure quantifiables (>LOQ). Ce faible pourcentage d'échantillons positifs ainsi que la RV_{95} établie (0.39 µg/L) sont proches de ceux observés pour les adolescents (12-19 ans) recrutés lors de la première phase (RV_{95} = 0.37 µg/L) qui étaient significativement moins contaminés que les jeunes adultes (RV_{95} = 0.52 µg/L). Aucune différence dans les concentrations urinaires en mercure n'a été observée entre les 2 groupes d'âges (3-5 ans vs 6-11 ans), mais les enfants ayant consommé du poisson dans les 4 derniers jours avant la collecte d'urine présentaient des taux significativement plus élevés (p = 0.010579), avec un RV_{95} estimé à 0.52 µg/L contre 0.27 µg/L pour ceux qui n'en ont pas consommé. Même si le mercure dosé dans l'urine est principalement sous forme inorganique tandis que le mercure qui s'accumule dans les organismes aquatiques est sous forme organique, cette augmentation des concentrations urinaires avec la consommation de poisson n'est pas contradictoire. Il a en effet été démontré qu'une partie du mercure urinaire provenait de la déméthylation du méthylmercure (Esteban-Lopez et al., 2022), et ce lien entre mercure urinaire et consommation de poisson a déjà été observé à plusieurs reprises (Bartel-Steinbach et al., 2022 ; Pirard et al., 2018). D'autre part, contrairement à ce qui avait été observé pour les adolescents et jeunes adultes (20-39 ans), le fait de porter des amalgames dentaires n'augmente pas significativement les concentrations mesurées dans les urines des enfants. Il faut cependant noter que seuls 10 enfants âgés entre 3 et 11 ans ont mentionné avoir des amalgames dentaires (1.5%), et que cette proportion est légèrement inférieure à celle rapportée par les adolescents (3.5%) alors que les jeunes adultes (20-39 ans) étaient presque 40% à en posséder au moins un. Il est dès lors probable que le facteur qui influence le plus la charge corporelle en mercure soit le port d'amalgames dentaires, et qu'en l'absence d'amalgame (ou du moins dans une population dans laquelle on retrouve peu d'amalgames dentaires), ce soit la consommation récente de poisson qui soit le facteur prédominant.

6.2.2. Les bisphénols

Le BPP n'a été détecté dans aucun des échantillons analysés, tandis que le BPZ n'a été mesuré à une concentration supérieure à la LOQ que dans 4% des échantillons. Le BPA et le BPS ont été quantifiés dans respectivement 88% et 57% des échantillons d'urine, avec des médianes respectives de 0.77µg/L et 0.17 µg/L, et des RV_{95} établis pour le BPA à 3.2µg/L et le BPS à 2.3 µg/L pour l'ensemble des enfants de moins de 12 ans. Contrairement à ce qui avait été observé pour le BPA dans l'urine des adolescents et adultes, aucune différence n'a été mise en évidence en fonction du genre. Les concentrations en BPA et BPS sont significativement plus élevées dans l'urine des enfants âgés entre 3 et 5 ans (p = 0.010210 et 0.002764 respectivement). Cette plus grande exposition pour les enfants plus jeunes pourrait au moins en partie s'expliquer par un comportement main-bouche plus important pour cette catégorie d'âge, et donc une exposition accrue via les poussières domestiques et la mise en bouche

d'objets contenant des bisphénols. De la même manière, les concentrations urinaires en BPA chez les enfants (3-5ans et 6-11 ans) semblent plus élevées que celles des adultes et adolescents (P50 = 0.84 ; 0.72 et 0.51 µg/L respectivement pour les 3-5 ans ; 6-11 ans et 12-39 ans), confirmant une augmentation de l'exposition avec l'âge (les résultats des tests statistiques de comparaison entre les classes d'âge sont présentés à titre indicatif dans l'annexe 5). Cependant, enfants et adolescents/adultes ayant été recrutés à des périodes différentes (2020-2021 vs 2019-2020), ces résultats doivent être comparés et interprétés avec prudence.

6.2.3. Les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAPs)

Le 2-naphtol, le 9 hydroxyfluorène, le 1-hydroxyphnénanthrène et le 1-naphtol sont les métabolites de HAPs retrouvés dans le plus grand nombre d'échantillons d'urine (dans respectivement 96.2%, 87.2%, 65.8% et 63.0%), les 2 autres métabolites du fluorène (2- et 3-hydroxyfluorène) et 2 des 4 métabolites du phénanthrène (2- et 4-hydroxyphénanthrène) n'ayant été détectés que dans très peu d'urines (entre 4.5% et 19% selon le métabolite). Comme attendu, les concentrations urinaires en 2-naphtol s'étalent sur une gamme très large (de 1 à 54 µg/ pour les P5 et P95), avec une médiane estimée à 6.31 µg/L. Le 1-napthol et le 9-hydroxyfluorène sont les 2 autres métabolites de HAPs mesurés aux plus grandes concentrations (P50 = 0.52 µg/L et 0.39 µg/L respectivement). Quel que soit le métabolite considéré, les concentrations urinaires ne sont pas significativement différentes entre les filles et les garçons, ni entre les 2 tranches d'âge (3-5 ans vs 6-11 ans) excepté pour le 4-hydroxyphénanthrène qui est présent en concentrations supérieures (p = 0.0112022) dans l'urine des enfants plus jeunes (3-5 ans). Aucune différence n'a été observée dans l'urine des enfants pour qui une exposition passive à la fumée du tabac avait été mentionnée en réponse au questionnaire. Néanmoins, cette exposition passive n'a pas pu être quantifiée précisément (nombre d'heures d'exposition, taille et/ou ventilation de la pièce dans laquelle on a fumé en présence de l'enfant, mesure de marqueur biologique d'exposition au tabac, etc), et est donc difficile à objectiver.

Les concentrations mesurées dans l'urine des enfants semblent différentes de celles observées dans l'urine des adolescents et adultes wallons, et ces différences varient d'un métabolite à un autre et ce pour un même HAP parent. En effet, la RV_{95} estimée est supérieure pour les enfants (3-11 ans) pour le 2-napthol (RV_{95} = 54 µg/L vs 31 µg/L pour les adolescents et adultes) mais inférieure pour le 1-naphtol (2.8 µg/L vs 8.7 µg/L) ; légèrement supérieure pour le 9-hydroxyfluorène (1.90 µg/L vs 1.40 µg/L) mais inférieure pour le 2- et 3-hydroxyfluorène (ND vs 1.2 µg/L et 0.32 µg/L vs 0.75 µg/L respectivement) : et supérieure pour le 1- et 4-hydroxyphénanthrène (0.85 µg/L vs 0.62 µg/L, et 0.42 µg/L vs 0.26 µg/L respectivement) mais inférieure pour le 2-hydroxyphénanthrène (0.12 µg/L vs 0.24 µg/L). Ces différences sont plus susceptibles de s'expliquer par une différence de métabolisme entre les enfants et les adultes que par une différence d'exposition. Les p-values obtenues lors des tests

de Dunn pour comparer chaque classe d'âge sont reprises dans l'annexe 5, mais doivent être considérées avec prudence au vu du décalage dans les périodes de recrutement.

6.2.4. Le glyphosate et l'acide aminométhylphosphonique (AMPA)

Le glyphosate et son métabolite AMPA sont présents à des concentrations supérieures à la LOQ dans 34% et 21% des échantillons, significativement (p = 0.004048) plus souvent chez les 6-11 ans (pour l'AMPA uniquement). Ces taux de détection semblent plus élevés que ceux obtenus pour les adolescents et les adultes (27% et 18% pour le glyphosate chez les adolescents et adultes respectivement, et 11% pour l'AMPA pour l'ensemble des ados et adultes).

6.2.5. Les métabolites de pesticides organophosphorés (spécifiques et non spécifiques)

Parmi les métabolites de pesticides organophosphorés non spécifiques, le diéthylphosphate (DEP) et le diméthylthiophosphate (DMTP) ont été détectés dans une grande majorité des prélèvements (99.3% et 87% respectivement) à une concentration médiane de 4.04 µg/L pour le DEP et 1.64 µg/L pour le DMTP. Le diéthyldithiophosphate (DEDTP) n'a été détecté dans aucun des échantillons d'urine, tandis que le diéthylthiophosphate (DETP) et le diméthyldithiophosphate (DMDTP) ont été détectés positivement dans 13% et 24% des échantillons respectivement. Le trichloropyridinol (TCPY), métabolite spécifique du chlorpyrifos) a été retrouvé dans la plupart des échantillons (99.3%) (la technique analytique utilisée est caractérisée par une grande sensibilité (LOQ = 0.08 µg/L)), mais à une concentration médiane plus faible de 0.57 µg/L. Des concentrations significativement supérieures en DEP (p = 0.008664) et en DETP (p = 0.010549) ont été mesurées dans les urines des enfants plus jeunes (3-5 ans vs 6-11 ans), confirmant une diminution de l'exposition aux pesticides organophosphorés avec l'augmentation de l'âge, ce que l'on avait déjà observé lors de la première campagne de biomonitoring chez les jeunes adultes et adolescents (Figure 1).

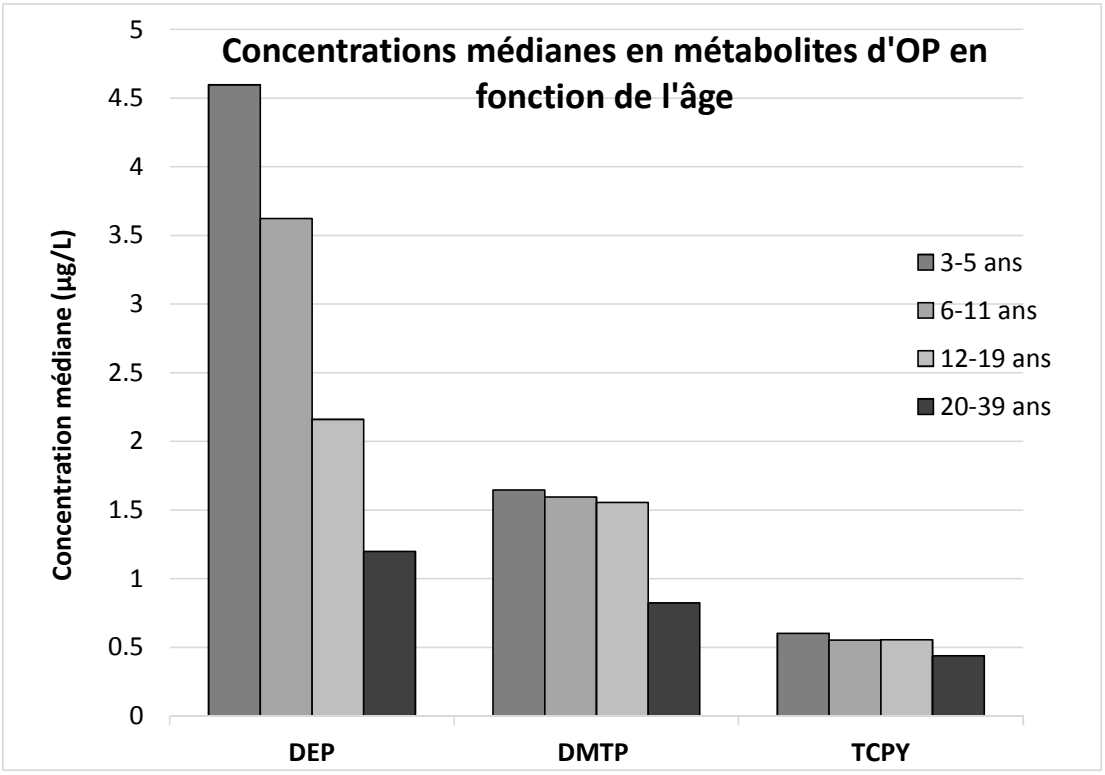


Figure 1 : Concentrations urinaires médianes observées en population wallonne en fonction de l'âge. Les p-values sont données à titre indicatif dans l'annexe 5.

Pour le DETP et le DMDTP, la fréquence de détection est plus élevée dans l'urine des filles mais cette différence n'est pas significative (p = 0.058789 et 0.082584 respectivement).

6.2.6. Les métabolites de pesticides pyréthrinoïdes (spécifiques et non spécifiques)

Le 3-PBA, les trans- et cis-DCCA et le DBCA ont été retrouvés dans respectivement 99%, 91%, 62% et 61% des échantillons d'urine analysés, à des concentrations médianes de 1.29 µg/L pour le 3-PBA, 1.01 et 0.36 µg/L pour les t- et c-DCCA, et 0.38 µg/L pour le DBCA. Les RV_{95} établis varient entre 1.70 µg/L pour le DBCA et 5.90 µg/L pour le 3-PBA. Le 4-F-3-PBA (métabolite spécifique de la cyfluthrine) n'a été détecté que dans 9 échantillons sur les 601 analysés (1.5%). Les filles avaient dans leurs urines des concentrations moins élevées que les garçons, significativement pour le 3-PBA (p=0.0003451), à la limite de la significativité pour les c- et t-DCCA (p=0.099405 et 0.085489), similairement à ce qui avait été observé chez les jeunes adultes et les adolescents. D'autre part, alors que l'urine des adolescents contenaient des concentrations en métabolites de pyréthrinoïdes plus élevées que celles des adultes, aucune différence significative n'a été mise en évidence entre les 2 classes d'âges d'enfants (3-5 ans vs 6-11 ans), mais les médianes et RV_{95} obtenus pour les enfants sont approximativement 2 fois plus élevées que pour les adolescents (Tableau 22), ce qui confirme la tendance (généralement observée pour les pesticides) d'une exposition d'autant plus grande que l'individu est jeune. Cette plus grande exposition pour les enfants pourrait provenir d'une

différence d'alimentation selon l'âge, ou des habitudes de vie différentes (et pour les plus jeunes notamment un comportement main-bouche).

Tableau 22 : Comparaison entre les valeurs de P50 et RV_{95} établies pour les adolescents (12-19 ans recrutés entre 2019 et 2020) et les enfants âgés entre 3 et 11 ans recrutés en 2020-2021. Les p-values sont données à titre indicatif dans l'annexe 5.

	P50 (µg/L)		RV_{95} (µg/L)	
	3-11 ans	12-19 ans	3-11 ans	12-19 ans
c-DCCA	0.36	<0.20	2.10	1.02
t-DCCA	1.01	0.43	5.40	2.70
DBCA	0.38	<0.30	1.70	1.60
3-PBA	1.29	0.70	5.90	2.80

7. COMPARAISON AVEC D'AUTRES ÉTUDES NATIONALES ET INTERNATIONALES POUR LA PHASE 2 (2020-2022): ENFANTS (3-5 ANS ET 6-11 ANS)

Les valeurs obtenues dans la population d'enfants wallons ont été comparées aux résultats mesurés dans d'autres populations semblables (enfants) de pays ou régions si possible proches géographiquement, rapportés par des études comprenant un nombre de participants important. Ces résultats (moyenne géométrique=MG, P50, P95 et RV_{95}) ainsi que le nombre de participants et la période durant laquelle l'étude a été réalisée (années) sont présentés dans un tableau pour chaque marqueur.

7.1. Biomarqueurs urinaires

7.1.1. Le mercure

Tableau 23 : Concentrations en mercure urinaire mesurées dans différentes études

Hg						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
HBM-WAL						
Tous	592	2020-2021	<0.25	<0.25	0.39	0.39
Non consommateur de poisson	335	2020-2021	<0.25	<0.25	0.28	0.27
Consommateur de poisson	257	2020-2021	<0.25	<0.25	0.53	0.52
Chine, Li et al., 2022						
Enfants (6-18 ans)	2050	2018	0.45	0.48		
Corée du Sud (KoNEHS), Jung et al., 2022						
Enfants 3-5 ans	571	2015-2017	0.42	0.396	1.3	
Enfant 6-11 ans	887	2015-2017	0.39	0.37	1.09	
Allemagne (GerES), Vogel et al., 2021; Schulz et al., 2009						
Enfants 3-17 ans (GerES V)	2242	2015-2017	0.07	0.07	0.25	
Enfants (3-14 ans)	1734	2003-2006		<0.1	0.5	0.4*
France (ESTEBAN), Balicco et al., 2021						
Enfants 6-10 ans	477	2014-2016	0.92	0.91	3.07	
USA (NHANES), CDC 2021						
Enfants 3-5 ans	407	2017-2018	-	<0.13	0.39	
Enfants 6-11 ans	333	2017-2018	-	<0.13	0.57	

*enfants sans amalgame

Conclusion :

Les concentrations de mercure urinaire mesurées chez les enfants wallons sont beaucoup plus basses que celles mesurées dans l'urine d'enfants français (recrutés entre 2014 et 2016), comparables à celles rapportées pour les enfants américains, et légèrement supérieures aux concentrations urinaires retrouvées chez des enfants allemands. En Allemagne, les obturations dentaires avec des amalgames au mercure ne sont plus recommandées pour les enfants et les femmes en âge de procréer depuis 1993. Cette mesure a permis de fortement diminuer les concentrations urinaires moyennes en mercure chez les enfants allemands depuis 1990 (la moyenne géométrique passe de 0.55 µg/L en 1990 à 0.07 µg/L en 2017)

(Becker et al., 2013). En Belgique, l'interdiction par le Parlement européen et le Conseil de l'Union européenne d'utiliser des amalgames dentaires sur des dents de lait, des patients de moins de 15 ans et des femmes enceintes ou allaitantes (Règlement (UE) 2017/852) est d'application depuis le 1er juillet 2018. Même si avant 2018 les amalgames étaient de moins en moins utilisés par les dentistes belges, il faudra probablement encore quelques années avant de voir l'impact final de cette interdiction, et de retrouver des concentrations en mercure urinaire comparables entre les enfants belges et allemands. Les concentrations observées lors de l'étude française ESTEBAN sont largement supérieures aux concentrations mesurées dans l'urine des enfants wallons. Bien que les enfants français aient été recrutés avant cette restriction européenne, seuls 5% des 6-17 ans présentaient des amalgames entre 2014 et 2016, contre 1.6% chez les enfants wallons en 2020-2021. La présence d'amalgames dentaires ne peut donc justifier à elle seule les concentrations urinaires en mercure particulièrement élevées en France.

7.1.2. Les bisphénols

Le bisphénol-P

Le BPP n'a été détecté (concentration supérieure à la LOQ = 0.09 µg/l) dans aucun des échantillons d'urine analysés. Aucune référence bibliographique n'a été trouvée pour proposer une comparaison.

Le bisphénol-F

Tableau 24 : Concentrations en BPF urinaire mesurées dans des différentes études

BPF						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
BMH-WAL						
Tous (3-11 ans)	600	2020-2021	<0.07	<0.07	0.78	0.78
France, ESTEBAN, Balicco et al., 2019						
Enfants (6-10 ans)	231	2014-2016	0.27	0.20	3.03	
Enfants (11-14 ans)	175	2014-2016	0.24	0.21	1.08	
Espagne (BIOVAL), Dualde et al., 2021						
Enfants (5-12 ans)	562	2016	<0.2	<0.2	3.20	
Corée du Sud (KoNEHS), Jung et al., 2022						
Enfants 3-5 ans	571	2015-2017	-	<0.08	0.76	
Enfants 6-11 ans	884	2015-2017	-	<0.08	1.20	
USA (NHANES), CDC 2021						
Enfants 3-5 ans	141	2015-2016	-	<0.2	1.10	
Enfants 6-11 ans	415	2015-2016	-	<0.2	2.80	

Conclusion :

Les concentrations mesurées en bisphénol-F urinaire semblent être inférieures ou semblables dans la population wallonne par rapport aux concentrations rapportées dans la littérature, mais celle-ci est peu documentée.

Le bisphénol-A

Tableau 25: Concentrations en BPA urinaire mesurées dans différentes études

BPA						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
BMH-WAL						
Tous (3-11 ans)	600	2020-2021	0.75	0.77	3.25	3.20
3-5 ans	298	2020-2021	0.83	0.84	3.78	3.70
6-11 ans	302	2020-2021	0.69	0.72	2.84	2.80
Belgique (Liège), Pirard et al., 2012						
Enfants 0-6 ans	21	2011	2.71	2.65		
Enfants 7-11 ans	21	2011	3.27	2.82		
Belgique (Democophes), Koppen et al., 2019						
Enfants (6-11 ans)	129	2011-2012	2.40			
France, ESTEBAN, Balicco et al., 2019						
Enfants (6-10 ans)	231	2014-2016	2.21	2.09	7.33	
Enfants (11-14 ans)	175	2014-2016	2.33	2.10	13.71	
Espagne (BIOVAL), Dualde et al., 2021						
Enfants (5-12 ans)	562	2016	0.90	1.60	85.2	
Allemagne, GerES, Becker et al., 2009; Tschersich et al., 2021						
Enfants (3-17 ans)	515	2015-2017	1.91	1.82	7.2	
Italie, LIFE PERSUADED, Teit et al., 2021						
Enfants (4-6 ans)	300	2014-2018	6.90	7.20		
Enfants (11-14 ans)	300	2014-2018	7.09	7.24		
USA (NHANES), CDC 2021						
Enfants (3-5 ans)	141	2015-2016	1.21	1.30	7.40	
Enfants (6-11 ans)	415	2015-2016	1.14	1.20	6.20	
Canada, CHMS cycle 6						
Enfants (3-5 ans)	517	2018-2019	0.80	0.78	3.80	
Enfants (6-11 ans)	496	2018-2019	0.80	0.83	3.20	
Corée du Sud (KoNEHS), Jung et al., 2022						
Enfants 3-5 ans	571	2015-2017	2.41	2.60	10.60	
Enfants 6-11 ans	884	2015-2017	1.70	1.98	10.10	

Conclusion :

Le BPA est un composé qui a été largement étudié en population générale depuis plusieurs décennies (Pirard et Charlier, 2015). En Europe et Amérique du Nord, son utilisation dans les

objets de la vie courante a fait l'objet de plusieurs restrictions depuis le début des années 2000. Au sein de l'Union européenne, dès 2006 il a été inclus dans la liste des substances sujettes à autorisation dans le cadre du programme européen REACH (EC/1907/2006). Depuis, progressivement, il a été interdit dans les produits cosmétiques et les biberons, subi des restrictions (limites de migration) dans les jouets et articles de puériculture destinés à être mis en bouche, ainsi que dans les matériaux en contact avec l'alimentation, jusqu'à sa restriction à moins de 0.02% dans les papiers thermiques (i.e. tickets de caisse) en 2020. Ces interdictions et restrictions ont eu pour effet de diminuer les niveaux d'exposition de la population, diminution mise en évidence à plusieurs reprises par une diminution des concentrations urinaires lors d'études de biomonitoring (CDC, 2021; Frederiksen et al., 2020; Gyllenhammar et al., 2017; Huang et al., 2018; Van der Meer et al., 2021). Il n'est donc pas surprenant d'observer des concentrations en BPA dans notre population d'enfants largement inférieures aux concentrations mesurées dans l'urine d'enfants belges recrutés en 2011, que ce soit en Province de Liège (Pirard et al., 2012) ou lors du projet Democophes (Koppen et al., 2019). Lorsqu'on compare les résultats obtenus avec ceux rapportés lors d'études plus récentes, l'exposition de la population actuelle d'enfants wallons (2020-2021) reste très inférieure à celle évaluée pour des enfants en France en 2014-2016, en Allemagne en 2015-2017, aux USA en 2015-2016, et en Italie entre 2014 et 2018. Néanmoins, les concentrations mesurées sont très proches de celles rapportées dans l'étude Canadienne la plus récente et donc la plus proche de la nôtre dans le temps.

Le bisphénol-S

Tableau 26 : Concentrations en BPS urinaire mesurées dans différentes études

BPS						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
BMH-WAL						
Tous (3-11 ans)	600	2020-2021	0.19	0.17	2.38	2.30
3-5 ans	298	2020-2021	0.23	0.27	3.43	3.40
6-11 ans	302	2020-2021	0.16	0.10	1.59	1.50
France, ESTEBAN, Balicco et al., 2019						
Enfants (6-10 ans)	231	2014-2016	0.49	0.32	13.3	
Enfants (11-14 ans)	175	2014-2016	0.42	0.35	7.42	
Espagne (BIOVAL), Dualde et al., 2021						
Enfants (5-12 ans)	562	2016	<0.2	<0.2	6.80	
USA (NHANES), CDC 2021						
Enfants (3-5 ans)	141	2015-2016	0.40	0.30	2.90	
Enfants (6-11 ans)	415	2015-2016	0.37	0.30	3.00	
Corée du Sud (KoNEHS), Jung et al., 2022						
Enfants 3-5 ans	571	2015-2017	-	0.02	0.19	
Enfants 6-11 ans	884	2015-2017	-	0.02	0.52	

Conclusion :

Les études de biomonitoring incluant la mesure du BPS sont encore peu nombreuses, rendant difficile la comparaison des résultats. Les concentrations urinaires en population d'enfants wallons semblent inférieures à celles mesurées en France ou aux Etats-Unis entre 2014 et 2016, mais supérieures aux concentrations mesurées entre 2015 et 2017 en Corée du Sud. Il sera intéressant de continuer à surveiller l'imprégnation des alternatives au BPA (BPS et BPF) en population wallonne car au vu des différentes restrictions imposées récemment sur l'utilisation du BPA, on s'attend à une augmentation de l'incorporation de ces substituts dans les objets de la vie courante, et donc à une augmentation de l'exposition des populations européennes dont la population belge.

Le bisphénol-Z

Une recherche dans la littérature n'a pas permis de trouver d'étude ayant mesuré ce bisphénol dans l'urine en population générale.

7.1.3. Les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAPs)

Les 1- et 2-naphtols

Tableau 27 : Concentrations urinaires en 1-et 2-naphtol mesurées dans différentes études

1-naphtol						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
BMH-WAL						
Tous (3-11 ans)	584	2020-2021	0.53	0.52	2.88	2.80
Espagne,Fernández et al., 2021						
Enfants 5-12 ans	566	2016	0.30	0.60	3.10	
Allemagne (GerES), Murawski et al., 2020						
Enfants et adolescents (3-17 ans)	516	2015-2017	0.79	0.74	7.14	
USA (NHANES), CDC 2009						
Enfants 3-5 ans	471	2015-2016	0.80	0.70	6.09	
Enfants 6-11 ans	373	2015-2016	0.86	0.84	5.77	
Canada, CHMS cycle 4						
Enfants 3-5 ans	474	2014-2015	0.64	0.62	-	
Enfants 6-11 ans	508	2014-2015	0.62	0.57	3.70	

Tableau 27 suite

2-naphtol						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
BMH-WAL						
Tous (3-11 ans)	584	2020-2021	6.59	6.31	54.1	54.0
Espagne,Fernández et al., 2021						
Enfants 5-12 ans	566	2016	10.0	11.0	53.0	
Allemagne (GerES), Murawski et al., 2020						
Enfants et adolescents (3-17 ans)	516	2015-2017	4.23	4.08	23.7	
USA (NHANES), CDC 2009						
Enfants 3-5 ans	475	2015-2016	3.39	3.23	18.9	
Enfants 6-11 ans	375	2015-2016	3.76	3.98	26.2	
Canada, CHMS cycle 4						
Enfants 3-5 ans	467	2014-2015	3.00	3.00	13.0	
Enfants 6-11 ans	503	2014-2015	3.80	3.60	19.0	

Conclusion :

Les concentrations urinaires en 1-naphtol mesurées dans l'urine des enfants wallons sont assez proches des concentrations mesurées lors d'une étude menée en Espagne en 2016, et au Canada lors du 4ème cycle CHMS, mais semblent légèrement inférieures aux valeurs rapportées lors de l'étude NHANES aux Etats-Unis ou l'étude allemande GerES. Pour le 2-napthol, si la P95 est comparable à la P95 estimée pour les enfants espagnols, la médiane parait un peu plus basse. D'autre part, les concentrations retrouvées dans les urines des enfants wallons sont globalement plus élevées que celles rapportées pour des enfants allemands, américains ou Canadien. Il est assez surprenant d'observer des tendances différentes entre les 2 métabolites du naphtalène. Une des raisons pourrait être l'existence de sources d'exposition particulière au 1- ou 2-naphtol (en plus du napthalène). Par exemple, le 2-naphtol est également utilisé tel quel dans l'industrie des teintures et des pigments, comme antioxydant dans certains aliments, dans la fabrication de médicaments ou la synthèse de pesticides.

Les 2-, 3- et 9-hydroxyfluorènes

Tableau 28 : Concentrations urinaires en 2-, 3- et 9-hydroxyfluorène mesurées dans différentes études

2-hydroxyfluorène						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
BMH-WAL						
Tous (3-11 ans)	584	2020-2021	<0.10	<0.10	<0.10	-
Espagne,Fernández et al., 2021						
Enfants 5-12 ans	566	2016	0.2	0.2	0.6	
Allemagne (GerES), Murawski et al., 2020						
Enfants et adolescents (3-17 ans)	516	2015-2017	0.39	0.45	1.27	
USA (NHANES), CDC 2009						
Enfants 3-5 ans	475	2015-2016	0.10	0.10	0.46	
Enfants 6-11 ans	375	2015-2016	0.13	0.12	0.47	
Canada, CHMS cycle 4						
Enfants 3-5 ans	478	2014-2015	0.16	0.16	0.55	
Enfants 6-11 ans	510	2014-2015	0.21	0.20	0.65	
3-hydroxyfluorène						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
BMH-WAL						
Tous (3-11 ans)	584	2020-2021	<0.10	<0.10	0.32	0.32
Espagne,Fernández et al., 2021						
Enfants 5-12 ans	566	2016	<0.05	<0.05	0.3	
USA (NHANES), CDC 2009						
Enfants 3-5 ans	475	2015-2016	0.05	0.05	0.26	
Enfants 6-11 ans	375	2015-2016	0.06	0.06	0.30	
Canada, CHMS cycle 4						
Enfants 3-5 ans	478	2014-2015	0.07	0.07	0.22	
Enfants 6-11 ans	510	2014-2015	0.08	0.08	0.30	
9-hydroxyfluorène						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
BMH-WAL						
Tous (3-11 ans)	584	2020-2021	0.36	0.39	1.90	1.90
USA (NHANES), CDC 2009						
Enfants 6-11 ans	397	2011-2012	0.15	0.14	1.03	
Canada, CHMS cycle 4						
Enfants 3-5 ans	473	2014-2015	0.08	0.08	0.27	
Enfants 6-11 ans	510	2014-2015	0.09	0.09	0.40	

Conclusion :

Les métabolites du fluorène ont été mesurés en plus grandes concentrations dans l'urine des enfants wallons dans l'ordre suivant : 9-hydroxyfluorène> 3-hydroxyfluorène> 2-hydroxyfluorène. Le même ordre n'est pas observé dans l'étude américaine NHANES ni l'étude canadienne CHMS. Si le 2- et le 3-hydroxyfluorène sont très peu détectés ou en très faibles concentrations quelle que soit l'étude considérée, le 9-hydroxyfluorène parait être présent en plus grande concentration dans l'urine des enfants wallons comparés aux petits américains ou canadiens (presque 3x plus).

Les 1-, 2-, 3- et 4-hydroxyphénanthrènes

Tableau 29 : Concentrations urinaires en 1-, 2-, 3- et 4-hydroxyphénanthrène mesurées dans différentes études

1-hydroxyphénanthrène						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
BMH-WAL						
Tous (3-11 ans)	584	2020-2021	0.16	0.19	0.85	0.85
Espagne,Fernández et al., 2021						
Enfants 5-12 ans	566	2016	0.10	0.11	0.39	
Allemagne (GerES), Murawski et al., 2020						
Enfants et adolescents (3-17 ans)	516	2015-2017	0.14	0.14	0.56	
USA (NHANES), CDC 2009						
Enfants 3-5 ans	475	2015-2016	0.07	0.06	0.25	
Enfants 6-11 ans	375	2015-2016	0.08	0.08	0.33	
Canada, CHMS cycle 4						
Enfants 3-5 ans	476	2014-2015	0.10	0.10	0.40	
Enfants 6-11 ans	510	2014-2015	0.13	0.12	0.47	

Tableau 29 suite

2-hydroxyphénanthrène						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
BMH-WAL						
Tous (3-11 ans)	584	2020-2021	<0.10	<0.10	0.12	0.12
Espagne,Fernández et al., 2021						
Enfants 5-12 ans	566	2016	0.04	0.04	0.15	
Allemagne (GerES), Murawski et al., 2020						
Enfants et adolescents (3-17 ans)	516	2015-2017	0.085	0.080	0.330	
USA (NHANES), CDC 2009						
Enfants 6-11 ans	397	2011-2012	0.04	0.04	0.17	
Canada, CHMS cycle 4						
Enfants 3-5 ans	477	2014-2015	0.03	0.03	0.11	
Enfants 6-11 ans	510	2014-2015	0.04	0.04	0.14	
3-hydroxyphénanthrène						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
BMH-WAL						
Tous (3-11 ans)	584	2020-2021	0.10	<0.10	0.49	0.49
Espagne,Fernández et al., 2021						
Enfants 5-12 ans	566	2016	0.08	0.08	0.30	
Allemagne (GerES), Murawski et al., 2020						
Enfants et adolescents (3-17 ans)	516	2015-2017	0.131	0.130	0.410	
USA (NHANES), CDC 2009						
Enfants 6-11 ans	397	2011-2012	0.06	0.06	0.29	
Canada, CHMS cycle 4						
Enfants 3-5 ans	476	2014-2015	0.07	0.07	0.29	
Enfants 6-11 ans	510	2014-2015	0.09	0.08	0.33	
4-hydroxyphénanthrène						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
BMH-WAL						
Tous (3-11 ans)	584	2020-2021	<0.10	<0.10	0.42	0.42
3-5 ans	287	2020-2021	<0.10	<0.10	0.49	
6-11 ans	297	2020-2021	<0.10	<0.10	0.37	
Espagne,Fernández et al., 2021						
Enfants 5-12 ans	566	2016	0.02	0.02	0.11	
Allemagne (GerES), Murawski et al., 2020						
Enfants et adolescents (3-17 ans)	516	2015-2017	0.05	0.04	0.27	
USA (NHANES), CDC 2009						
Enfants 6-11 ans	397	2011-2012	0.02	0.02	0.07	
Canada, CHMS cycle 4						
Enfants 3-5 ans	475	2014-2015	0.01	0.01	0.06	
Enfants 6-11 ans	510	2014-2015	0.02	0.02	0.07	

Conclusion :

Les concentrations des métabolites urinaires de phénanthrène mesurées en population d'enfants wallons sont globalement très proches de celles rapportées lors des autres grandes études de biomonitoring humain en Allemagne, Espagne, au Canada ou aux Etats-Unis.

Le 1-hydroxypyrène

S'il existe beaucoup de données sur les concentrations urinaires du métabolite principal du pyrène en populations exposées (travailleurs) ou en population générale adulte, les études consacrées aux populations d'enfants sont moins nombreuses.

Tableau 30: Concentrations urinaires en 1-hydroxypyrène mesurées dans différentes études

1-hydroxypyrène						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
BMH-WAL						
Tous (3-11 ans)	584	2020-2021	<0.15	<0.15	0.51	0.51
Espagne (BIOVAL), Fernández et al., 2021						
Enfants 5-12 ans	566	2016	0.10	0.11	0.29	
Allemagne (GerES), Murawski et al., 2020						
Enfants et adolescents (3-17 ans)	516	2015-2017	0.099	0.100	0.360	
USA (NHANES), CDC 2009						
Enfants 3-5 ans	475	2015-2016	0.12	0.11	0.46	
Enfants 6-11 ans	375	2015-2016	0.13	0.12	0.67	
Canada, CHMS cycle 4						
Enfants 3-5 ans	476	2014-2015	0.09	0.10	0.33	
Enfants 6-11 ans	510	2014-2015	0.10	0.10	0.33	

Conclusion :

Les concentrations urinaires d'hydroxypyrène dans la population d'enfants wallons semblent comparables à celles observées dans les populations d'enfants espagnols, allemands, américains ou canadiens.

7.1.4. Le glyphosate et l'acide aminométhylphosphonique (AMPA)

Tableau 31: Concentrations urinaires en glyphosate et AMPA mesurées dans différentes études

Glyphosate						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
BMH-WAL						
Tous (3-11 ans)	601	2020-2021	<0.08	<0.08	0.30	0.30
France, ESTEBAN, Pécheux et al., 2021						
Enfants (6-17 ans)	498	2014-2016	-	<0.05	0.53	
Portugal, Ferreira et al., 2021						
Enfants (2-13 ans)	41	2018-2019	1.77 (MA)			
Allemagne, GerES, Lemke et al., 2021						
Enfants (3-17 ans)	2144	2015-2017	0.11	0.10	0.51	
Danemark, Democophes, Knudsen al., 2017						
Enfants (6-11 ans)	14	2011	1.96 (MA)			
Slovénie, Stanjko et al., 2020						
Enfants (7-10 ans)	149	2018		<0.1		
Mexique, Lozano-Kasten et al., 2021						
Enfants (5-15 ans)	95	2017 (octobre)	0.37			
Enfants (5-15 ans)	95	2018 (mai)	3.20			
USA, Trasande et al., 2020						
Enfants (3-8 ans)	66	?		<0.1		
USA, Fagan et al., 2020						
Enfants, alimentation conventionelle	9	2017		1.03		
Enfants (4-15 ans), alimentation bio	9	2017		0.25		

Acide aminométhylphosphonique (AMPA)						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
BMH-WAL						
Tous (3-11 ans)	601	2020-2021	<0.15	<0.15	0.32	0.32
3-5 ans	299	2020-2021	<0.15	<0.15	0.28	0.28
6-11 ans	302	2020-2021	<0.15	<0.15	0.36	0.35
France, ESTEBAN, Pécheux et al., 2021						
Enfants (6-17 ans)	498	2014-2016	0.16	0.16	0.52	
Allemagne, GerES, Lemke et al., 2021						
Enfants (3-17 ans)	2144	2015-2017	0.10	<0.10	0.48	
Slovénie, Stanjko et al., 2020						
Enfants (7-10 ans)	97	2018		0.10		
USA, Fagan et al., 2020						
Enfants, alimentation conventionelle	9	2017		0.27		
Enfants (4-15 ans), alimentation bio	9	2017		0.03		

MA = Moyenne arithmétique

Conclusion :

Peu d'études ont rapporté des concentrations urinaires en glyphosate et AMPA en population générale, et les données existantes concernent un petit nombre de participants à l'exception de l'étude GerES allemande. Les résultats en glyphosate et AMPA obtenus dans l'urine des

enfants wallons sont très proches de ce qui avait été mesuré lors de ce 5ème cycle du biomonitoring allemand (GerES) entre 2015 et 2017 ainsi que lors d'une étude sur des enfants slovènes en 2018, mais très inférieurs aux concentrations observées dans l'urine des quelques enfants participants danois (Democophes) ou portugais. Un gros impact de l'utilisation de glyphosate sur l'imprégnation de populations d'enfants (américains ou mexicains) avait été mis en évidence, mais les pratiques agricoles nord-américaines sont très différentes comparées aux pratiques et règlementations européennes.

7.1.5. Les métabolites de pesticides organophosphorés (spécifiques et non spécifiques)

Beaucoup d'études ont décrit dans la littérature les concentrations urinaires des dialkylphosphates, métabolites communs à plusieurs pesticides organophosphorés. Les tableaux ci-dessous reprennent les plus importantes et/ou les plus proches dans le temps et géographiquement.

Les diéthyl-, diéthylthio- et diéthyldithiophosphates (DEP, DETP, DEDTP)

Tableau 32: Concentrations en DEP, DETP et DEDTP mesurées dans différentes études

Diéthylphosphate (DEP)						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
BMH-WAL						
Tous (3-11 ans)	601	2020-2021	4.33	4.04	18.4	18.0
3-5 ans	300	2020-2021	4.73	4.60	19.8	
6-11 ans	301	2020-2021	3.97	3.62	14.7	
Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020						
Enfants (9-12 ans)	240	2016		1.80	30.0	
France, ESTEBAN, Tagne-Fotso et al., 2021						
Enfants (6-10 ans)	206	2014-2016	-	<0.6	6.51	6.0
Enfants (11-14 ans)	201	2014-2016	-	<0.6	3.00	6.0
Espagne (BIOVAL),Fernandez et al., 2020						
Enfants (5-12 ans)	568	2016	1.53	1.52	5.90	
Espagne, Roca et al. 2014						
Enfants (6-11 ans)	125	2010	1.77	2.28	10.62	
Allemagne, GerES IV, Becker et al., 2008						
Enfants (3-14 ans)	599	2003-2006	5.92	6.00	29.1	
USA (NHANES), CDC 2021						
Enfants (3-5 ans)	418	2017-2018	3.14	3.55	24.6	
Enfants (6-11 ans)	331	2017-2018	3.38	3.41	30.1	
Canada, CHMS cycle 6						
Enfants (3-5 ans)	517	2018-2019	3.80	3.80	23.0	
Enfants (6-11 ans)	498	2018-2019	3.60	3.60	24.0	

Tableau 32 suite

Diéthylthiophosphate (DETP)						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
BMH-WAL						
Tous (3-11 ans)	601	2020-2021	<0.50	<0.50	1.1	1.1
3-5 ans	300	2020-2021	<0.50	<0.50	1.2	
6-11 ans	301	2020-2021	<0.50	<0.50	0.89	
Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020						
Enfants (9-12 ans)	216	2016		<0.5	3.50	
France, ESTEBAN, Tagne-Fotso et al., 2021						
Enfants (6-10 ans)	206	2014-2016	-	<0.6	6.91	6.0
Enfants (11-14 ans)	201	2014-2016	-	<0.6	5.07	6.0
Espagne (BIOVAL),Fernandez et al., 2020						
Enfants (5-12 ans)	568	2016	<0.5	<0.5	3.60	
Espagne, Roca et al. 2014						
Enfants (6-11 ans)	125	2010	-	<0.4	7.08	
Allemagne, GerES IV, Becker et al., 2008						
Enfants (3-14 ans)	599	2003-2006	1.09	1.00	9.9	
USA (NHANES), CDC 2021						
Enfants (3-5 ans)	418	2017-2018	0.25	0.19	2.64	
Enfants (6-11 ans)	331	2017-2018	0.23	0.19	2.2	
Canada, CHMS cycle 6						
Enfants (3-5 ans)	510	2018-2019	0.58	0.62	4.20	
Enfants (6-11 ans)	491	2018-2019	0.46	0.45	6.00	
Diéthyldithiophosphate (DEDTP)						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
BMH-WAL						
Tous (3-11 ans)	601	2020-2021	<0.50	<0.50	<0.50	-
Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020						
Enfants (9-12 ans)	240	2016		<0.5	0.59	
France, ESTEBAN, Tagne-Fotso et al., 2021						
Enfants (6-10 ans)	206	2014-2016	-	<0.6	<0.6	-
Enfants (11-14 ans)	201	2014-2016	-	<0.6	<0.6	-
Espagne (BIOVAL),Fernandez et al., 2020						
Enfants (5-12 ans)	568	2016	<0.5	<0.5	<0.5	
Espagne, Roca et al. 2014						
Enfants (6-11 ans)	125	2010	-	<0.4	<0.4	
Allemagne, GerES IV, Becker et al., 2008						
Enfants (3-14 ans)	599	2003-2006	0.02	0.02	0.34	
USA (NHANES), CDC 2021						
Enfants (3-5 ans)	418	2017-2018	-	<0.1	<0.1	
Enfants (6-11 ans)	330	2017-2018	-	<0.1	<0.1	
Canada, CHMS cycle 6						
Enfants (3-5 ans)	515	2018-2019	-	<0.067	0.08	
Enfants (6-11 ans)	498	2018-2019	-	<0.067	0.10	

Conclusion :

Si la valeur P95 estimée pour le DETP (les valeurs médianes sont la plupart du temps inférieures à la LOQ dans les différentes études y compris BMH-WAL) est plus basse que celles

rapportées dans la plupart des études internationales présentées dans le tableau 15 (ESTEBAN en France, BIOVAL en Espagne, GerES en Allemagne, NHANES aux USA et CHMS au Canda), il n'en va pas de même pour le DEP. En effet pour ce métabolite, la concentration médiane et la valeur P95 sont 2 à 3 fois plus élevées dans l'urine des enfants wallons de BMH-WAL que celles observées pour des enfants français, espagnols ou américains. Elles sont par contre comparables aux valeurs rapportées lors des études canadiennes et allemandes. De manière surprenante, la P50 est également plus élevée dans la présente étude que celle estimée lors du projet EXPOPESTEN pour des enfants wallons recrutés en 2016, mais les valeurs extrêmes (P95) paraissent plus élevées chez ces derniers. Une diminution pouvait être attendue entre 2016 et 2020-2021 suite au non-renouvellement début 2020 en Europe de l'autorisation du chlorpyrifos (méthyl et éthyl), un des OP parents précurseurs du DEP et DETP.

Les diméthylthio- et diméthyldithiophosphates (DMTP, DMDTP)

Tableau 33: Concentrations urinaires en DMTP et DMDTP mesurées dans différentes études

Diméthylthiophosphate (DMTP)						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
BMH-WAL						
Tous (3-11 ans)	601	2020-2021	1.69	1.64	13.2	13.1
Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020						
Enfants (9-12 ans)	216	2016		1.01	13.7	
France, ESTEBAN, Tagne-Fotso et al., 2021						
Enfants (6-10 ans)	206	2014-2016	5.00	5.85	27.37	26.0
Enfants (11-14 ans)	201	2014-2016	3.33	3.78	19.15	26.0
Espagne (BIOVAL),Fernandez et al., 2020						
Enfants (5-12 ans)	568	2016	<0.5	<0.5	14.68	
Espagne, Roca et al. 2014						
Enfants (6-11 ans)	125	2010	-	<0.4	23.83	
Allemagne, GerES IV, Becker et al., 2008						
Enfants (3-14 ans)	599	2003-2006	15.9	16.8	112	
USA (NHANES), CDC 2021						
Enfants (3-5 ans)	417	2017-2018	1.17	1.04	18.2	
Enfants (6-11 ans)	331	2017-2018	1.08	0.92	16.4	
Canada, CHMS cycle 6						
Enfants (3-5 ans)	517	2018-2019	3.00	2.60	49.0	
Enfants (6-11 ans)	497	2018-2019	2.30	2.30	34.0	

Diméthyldithiophosphate (DMDTP)						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
BMH-WAL						
Tous (3-11 ans)	601	2020-2021	<0.50	<0.50	1.46	1.40
Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020						
Enfants (9-12 ans)	216	2016		<0.5	1.31	
France, ESTEBAN, Tagne-Fotso et al., 2021						
Enfants (6-10 ans)	206	2014-2016	-	<0.6	<0.6	-
Enfants (11-14 ans)	201	2014-2016	-	<0.6	<0.6	-
Espagne (BIOVAL),Fernandez et al., 2020						
Enfants (5-12 ans)	568	2016	<0.5	<0.5	2.51	
Espagne, Roca et al. 2014						
Enfants (6-11 ans)	125	2010	-	<0.4	4.95	
Allemagne, GerES IV, Becker et al., 2008						
Enfants (3-14 ans)	599	2003-2006	0.56	0.50	8.40	
USA (NHANES), CDC 2021						
Enfants (3-5 ans)	417	2017-2018	0.24	0.18	3.79	
Enfants (6-11 ans)	331	2017-2018	0.24	0.18	2.50	
Canada, CHMS cycle 6						
Enfants (3-5 ans)	517	2018-2019	0.38	0.34	12.0	
Enfants (6-11 ans)	498	2018-2019	0.32	0.26	6.90	

Conclusion :

La concentration médiane de DMTP mesurée dans l'urine des enfants de BMH-WAL est 2 à 3 fois plus basse que celles rapportées pour les enfants français, allemands, ou canadiens, similaire à celle calculée pour les enfants américains de NHANES 2011-2012, mais plus élevée que les P50 observées pour des enfants espagnols recrutés en 2010 ou 2016 ou que les enfants wallons du projet EXPOPESTEN. D'autre part, les valeurs extrêmes (P95) sont plus basses que dans la plupart des autres études. Le DMDTP a été retrouvé à des concentrations supérieures à la LOQ dans une minorité d'échantillons quelle que soit l'étude considérée, avec des P95 pouvant varier très fort d'une étude à l'autre (entre <0.6 et 12 µg/L).

Globalement pour les métabolites de pesticides organophosphorés non-spécifiques (diméthyl- ou diéthyl-phosphates), les tendances par rapport aux autres études varient en fonction des métabolites, traduisant probablement une utilisation différente des OP parents d'un continent à l'autre mais aussi au sein de l'Europe d'un pays à l'autre.

Le trichloropyridinol (TCPY)

Peu d'études ont mesuré le TCPY, métabolite spécifique du chlopryrifos.

Tableau 34: Concentrations urinaires en TCPY mesurées dans différentes études

Trichloropyridinol (TCPY)						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
BMH-WAL						
Tous (3-11 ans)	601	2020-2021	0.60	0.57	1.94	1.90
Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020						
Enfants (9-12 ans)	229	2016		3.87	12.1	
Espagne (BIOVAL),Fernandez et al., 2020						
Enfants (5-12 ans)	568	2016	1.19	1.13	11.08	
Espagne, Roca et al. 2014						
Enfants (6-11 ans)	125	2010	3.36	3.40	12.97	
USA (NHANES), CDC 2021						
Enfants (6-11 ans)	386	2009-2010	1.12	1.46	5.81	
Canada, CHMS cycle 4						
Enfants (3-5 ans)	479	2014-2015	1.30	1.10	7.30	
Enfants (6-11 ans)	489	2014-2015	1.60	1.40	-	

Conclusion :

Les concentrations mesurées en TCPY dans l'urine des enfants wallons de BMH-WAL sont très largement inférieures aux concentrations mesurées dans les différentes études, et notamment à celles mesurés dans l'urine des enfants recrutés en 2016 (projet EXPOPESTEN), effet probable de la décision européenne de ne pas renouveler l'autorisation du chlorpyrifos et du chlorpyrifos-methyl depuis décembre 2019. Il faut cependant noter que peu d'études récentes ont mesuré le TCPY dans les urines de populations générales, et que les programmes de biomonitoring comme NHANES ou CHMS ont arrêté les analyses de ce métabolite car sa fréquence de détection baisse d'année en année. De même, il a été mesuré lors de l'étude française ESTEBAN mais les résultats n'ont pas fait l'objet d'un rapport du fait du faible niveau de quantification observé. En Wallonie, malgré la diminution d'exposition de la population, il est encore détecté dans l'urine d'un très grand nombre de participants (99%).

7.1.6. Les métabolites de pesticides pyréthrinoïdes (spécifiques et non spécifiques)

Tableau 35: Concentrations urinaires en c-DCCA, t-DCCA, 4F-3-PBA, DBCA, et 3-PBA mesurées dans différentes études

c-DCCA						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
BMH-WAL						
Tous (3-11 ans)	601	2020-2021	0.34	0.36	2.12	2.10
Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020						
Enfants (9-12 ans)	206	2016		<0.5	2.01	
France (ESTEBAN), Chaperon et al., 2021						
Enfants (6-10 ans)	206	2014-2016	0.35	0.31	1.96	1.9
Enfants (11-14 ans)	201	2014-2016	0.30	0.30	3.08	1.9
Espagne, Roca et al. 2014						
Enfants (6-11 ans)	125	2010	-	<0.4	1.26	
Allemagne, GerES IV, Becker et al., 2008						
Enfants (3-14 ans)	599	2003-2006	0.14	0.12	1.00	
Canada, CHMS cycle 6						
Enfants (3-5 ans)	512	2018-2019	0.14	0.12	1.40	
Enfants (6-11 ans)	498	2018-2019	0.15	0.12	2.70	
t-DCCA						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
BMH-WAL						
Tous (3-11 ans)	601	2020-2021	0.96	1.01	5.42	5.40
Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020						
Enfants (9-12 ans)	220	2016		0.66	4.29	
France (ESTEBAN), Chaperon et al., 2021						
Enfants (6-10 ans)	205	2014-2016	0.25	0.21	1.94	1.1
Enfants (11-14 ans)	201	2014-2016	0.13	0.17	0.85	1.1
Espagne, Roca et al. 2014						
Enfants (6-11 ans)	125	2010	-	<0.4	4.44	
Allemagne, GerES IV, Becker et al., 2008						
Enfants (3-14 ans)	599	2003-2006	0.28	0.25	2.46	
USA (NHANES), CDC 2021						
Enfants (6-11 ans)	416	2013-2014	-	<0.6	3.87	
Canada, CHMS cycle 6						
Enfants (3-5 ans)	514	2018-2019	0.31	0.24	3.10	
Enfants (6-11 ans)	499	2018-2019	0.32	0.25	5.20	

Tableau 35 suite

DBCA						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
BMH-WAL						
Tous (3-11 ans)	601	2020-2021	0.38	0.38	1.73	1.70
France (ESTEBAN), Chaperon et al., 2021						
Enfants (6-10 ans)	205	2014-2016	1.06	1.11	5.49	5.7
Enfants (11-14 ans)	201	2014-2016	1.03	1.14	5.41	5.7
Espagne (BIOVAL),Fernandez et al., 2020						
Enfants (5-12 ans)	568	2016	-	<1.25	5.56	
Espagne, Roca et al. 2014						
Enfants (6-11 ans)	125	2010	-	<0.4	3.77	
Allemagne, GerES IV, Becker et al., 2008						
Enfants (3-14 ans)	599	2003-2006	0.11	<0.10	0.91	
USA (NHANES), CDC 2021						
Enfants (6-11 ans)	386	2009-2010	-	<0.50	<0.50	
Canada, CHMS cycle 6						
Enfants (3-5 ans)	509	2018-2019	0.03	0.04	0.41	
Enfants (6-11 ans)	488	2018-2019	0.03	0.03	0.23	
3-PBA						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
BMH-WAL						
Tous (3-11 ans)	601	2020-2021	1.31	1.29	5.94	5.90
Filles (p = 0.0003451)	293	2020-2021	1.18	1.18	5.32	5.30
Garçons	308	2020-2021	1.45	1.40	6.30	6.20
Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020						
Enfants (9-12 ans)	229	2016		0.98	5.33	
France (ESTEBAN), Chaperon et al., 2021						
Enfants (6-10 ans)	205	2014-2016	1.20	1.06	6.92	7.3
Enfants (11-14 ans)	201	2014-2016	0.98	1.01	12.42	7.3
Espagne (BIOVAL),Fernandez et al., 2020						
Enfants (5-12 ans)	568	2016	1.51	1.63	11.57	
Espagne, Roca et al. 2014						
Enfants (6-11 ans)	125	2010	-	<0.8	12.33	
Allemagne, GerES IV, Becker et al., 2008						
Enfants (3-14 ans)	599	2003-2006	0.49	0.43	3.80	
USA (NHANES), CDC 2021						
Enfants (6-11 ans)	420	2013-2014	0.73	0.81	5.41	
Canada, CHMS cycle 6						
Enfants (3-5 ans)	509	2018-2019	0.48	0.39	4.00	
Enfants (6-11 ans)	495	2018-2019	0.55	0.46	5.90	

Tableau 35 suite

4F-3-PBA						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV_{95}
			µg/l	µg/l	µg/l	
BMH-WAL						
Tous (3-11 ans)	601	2020-2021	<0.11	<0.11	<0.11	-
Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020						
Enfants (9-12 ans)	229	2016		<0.11	<0.11	
France (ESTEBAN), Chaperon et al., 2021						
Enfants (6-10 ans)	205	2014-2016	<0.015	<0.015	0.07	0.09
Enfants (11-14 ans)	201	2014-2016	<0.015	<0.015	0.12	0.09
Espagne (BIOVAL),Fernandez et al., 2020						
Enfants (5-12 ans)	568	2016	-	<0.125	<0.125	
Espagne, Roca et al. 2014						
Enfants (6-11 ans)	125	2010	-	<0.20	<0.20	
Allemagne, GerES IV, Becker et al., 2008						
Enfants (3-14 ans)	599	2003-2006	<0.10	<0.10	0.43	
USA (NHANES), CDC 2021						
Enfants (6-11 ans)	420	2013-2014	-	<0.10	0.24	
Canada, CHMS cycle 6						
Enfants (3-5 ans)	510	2018-2019	-	<0.006	0.53	
Enfants (6-11 ans)	495	2018-2019	-	<0.006	0.28	

Conclusion :

La comparaison entre les concentrations des métabolites de pesticides pyréthrinoïdes mesurées dans l'urine des enfants wallons et les valeurs rapportées dans la littérature pour d'autres pays montre des tendances qui varient d'un métabolite à l'autre. Pour les 2 isomères du DCCA, les concentrations urinaires mesurées semblent plus élevées que dans la plupart des autres études, surtout pour l'isomère trans. Le métabolite spécifique de la deltaméthrine (DBCA) a été retrouvé à des concentrations inférieures à ce qui a été mesuré en France ou en Espagne, mais largement supérieures aux valeurs rapportées pour les enfants allemands, américains ou canadiens. Les concentrations en 3-PBA mesurées dans l'urine des enfants de BMH-WAL sont comparables aux valeurs rapportées lors des études françaises, espagnoles et américaines, mais sont plus élevées que celle observées dans l'urine d'enfants allemands et canadiens. Le F-BPA (métabolite de la cyfluthrine) a été retrouvé en faibles concentrations ou pas détecté du tout dans la plupart des études de référence.

Dans l'ensemble, on a observé peu de différences entre les résultats wallons actuels et ceux obtenus lors du projet EXPOPESTEN mené en 2016. Cette sorte de stabilité d'exposition aux pesticides pyréthrinoïdes en Wallonie n'est pas surprenante car leur réglementation en Wallonie a peu ou pas évolué. Il n'est pas non plus étonnant d'observer des grandes différences avec les USA ou le Canada. En effet, les produits couramment utilisés pour lutter contre les insectes sont différents outre-Atlantique, avec par exemple une utilisation historique importante de N,N-diethyl-m-toluamide ou DEET, développé initialement par l'armée américaine et utilisé par plus d'un américain sur 3, alors qu'en Europe les produits à base de DEET sont autorisés mais réglementés depuis 2016. D'autre part, des niveaux d'exposition différents observés entre études récentes européennes (ESTEBAN en France et

BIOVAL en Espagne) n'étaient pas particulièrement attendus.

8. CONCLUSIONS

Ce rapport présente les données de référence obtenues lors des 2 premières phases du programme de Biomonitoring Humain Wallon réalisé en 2019-2020 (phase 1) et 2020-2021 (phase 2) pour le mercure urinaire, plusieurs bisphénols dont le bisphénol-A (BPA, BPS, BPF, BPZ, BPP), des métabolites d'hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAPs), le glyphosate et son produit de dégradation l'AMPA, des métabolites spécifiques et non spécifiques de pesticides organophosphorés (DEP, DETP, DEDTP, DMTP, DMDTP, TCPY), des métabolites de pesticides pyréthrinoïdes (c- et t-DCCA, 3-PBA, DBCA et 4-F-3-PBA), des pesticides organochlorés dont le 4,4'-DDE et l'hexachlorobenzène, et 4 PCBs, et ce pour différentes tranches d'âge: les adolescents de 12 à 19 ans et les jeunes adultes de 20 à39 ans (phase 1), et les enfants de 3 à 11 ans (phase 2). De plus, des valeurs de référence ont également été calculées pour les hommes et les femmes séparément, pour chaque tranche d'âge, et en fonction du statut tabagique lorsque cela était pertinent. D'autre part, les pesticides organochlorés et PCBs ont également été mesurés pour la tranche d'âge des nouveau-nés, mais pas pour les enfants de 3 à 11 ans. Les tableaux 36 et 37 synthétisent les RV_{95} établies pour l'ensemble des paramètres mesurés pour les populations recrutées lors de la phase 1 et 2. Des comparaisons entre les classes d'âge ont été réalisées au sein d'une même phase (3-5 ans vs 6-11 ans, et 12-19 ans vs 20-39 ans), mais aussi entre les 4 classes d'âge quelle que soit la période de recrutement. Les p-values obtenues lors des tests de Dunn sont présentées à titre indicatif dans l'annexe 5. Cles comparaisons statistiques entre les classes d'âges de la phase 1 (12-19 ans et 20-39 ans) et celles de la phase 2 (3-5 ans, 6-11 ans) doivent être faites avec prudence, les collectes n'ayant pas été faites lors de la même période (phase 1 : 2019-2020 ; phase 2 : 2020-2021).

Tableau 36: RV_{95} pour les marqueurs urinaires mesurés pour la population wallonne (µg/l)

Marqueur	Population	Age	Années	RV_{95}
Hg	Ado + adultes	12-39 ans	2019-2020	0.45 µg/l
	sans amalgame	12-39 ans	2019-2020	0.36 µg/l
	Adolescents	12-19 ans	2019-2020	0.37 µg/l
	Adultes	20-39 ans	2019-2020	0.52 µg/l
	Enfants	3-11 ans	2020-2021	0.39 µg/l
	Enfants sans consommation poisson	3-11 ans	2020-2021	0.27 µg/l
	Enfants avec consommation poisson	3-11 ans	2020-2021	0.52 µg/l
BPF	Ado + adultes	12-39 ans	2019-2020	0.84 µg/l
	Enfants	3-11 ans	2020-2021	0.78 µg/l
	Enfants*	3-5 ans	2020-2021	0.38 µg/l
	Enfants*	6-11 ans	2020-2021	1.00 µg/l
BPA	Ado + adultes	12-39 ans	2019-2020	3.70 µg/l
	Enfants	3-11 ans	2020-2021	3.20 µg/l
BPS	Ado + adultes	12-39 ans	2019-2020	2.20 µg/l
	Enfants	3-11 ans	2020-2021	2.30 µg/l

Tableau 36 suite

Marqueur	Population	Age	Années	RV_{95}
1-napthol	Ado + adultes	12-39 ans	2019-2020	8.70 µg/l
	non fumeur	12-39 ans	2019-2020	2.50 µg/l
	Adolescents*	12-19 ans	2019-2020	3.30 µg/l
	Adultes*	20-39 ans	2019-2020	17.0 µg/l
	Enfants	3-11 ans	2020-2021	2.80 µg/l
2-naphtol	Ado + adultes	12-39 ans	2019-2020	31.0 µg/l
	non fumeur	12-39 ans	2019-2020	28.0 µg/l
	Enfants	3-11 ans	2020-2021	54.0 µg/l
2-hydroxyfluorène	Ado + adultes	12-39 ans	2019-2020	1.20 µg/l
	non fumeur	12-39 ans	2019-2020	0.19 µg/l
	Femmes	12-39 ans	2019-2020	0.42 µg/l
	Hommes	12-39 ans	2019-2020	1.30 µg/l
	Adolescents	12-19 ans	2019-2020	0.25 µg/l
	Adultes	20-39 ans	2019-2020	2.01 µg/l
	Enfants	3-11 ans	2020-2021	-
3-hydroxyfluorène	Ado + adultes	12-39 ans	2019-2020	0.75 µg/l
	non fumeur	12-39 ans	2019-2020	0.16 µg/l
	Adolescents	12-19 ans	2019-2020	0.22 µg/l
	Adultes	20-39 ans	2019-2020	1.20 µg/l
	Enfants	3-11 ans	2020-2021	0.32 µg/l
9-hydroxyfluorène	Ado + adultes	12-39 ans	2019-2020	1.40 µg/l
	Enfants	3-11 ans	2020-2021	1.90 µg/l
1-hydroxyphénanthrène	Ado + adultes	12-39 ans	2019-2020	0.62 µg/l
	Enfants	3-11 ans	2020-2021	0.85 µg/l
2-hydroxyphénanthrène	Ado + adultes	12-39 ans	2019-2020	0.24 µg/l
	non fumeur	12-39 ans	2019-2020	0.22 µg/l
	Adolescents	12-19 ans	2019-2020	0.20 µg/l
	Adultes	20-39 ans	2019-2020	0.26 µg/l
	Enfants	3-11 ans	2020-2021	0.12 µg/l
3-hydroxyphénanthrène	Ado + adultes	12-39 ans	2019-2020	0.55 µg/l
	non fumeur	12-39 ans	2019-2020	0.42 µg/l
	Femmes	12-39 ans	2019-2020	0.41 µg/l
	Hommes	12-39 ans	2019-2020	0.58 µg/l
	Enfants	3-11 ans	2020-2021	0.49 µg/l
4-hydroxyphénanthrène	Ado + adultes	12-39 ans	2019-2020	0.26 µg/l
	Enfants	3-11 ans	2020-2021	0.42 µg/l
1-hydroxypyrène	Ado + adultes	12-39 ans	2019-2020	0.32 µg/l
	non fumeur	12-39 ans	2019-2020	0.26 µg/l
	Adolescents*	12-19 ans	2019-2020	0.24 µg/l
	Adultes*	20-39 ans	2019-2020	0.37 µg/l
	Femmes*	12-39 ans	2019-2020	0.26 µg/l
	Hommes*	12-39 ans	2019-2020	0.34 µg/l
	Enfants	3-11 ans	2020-2021	0.51 µg/l
	Enfants*	3-5 ans	2020-2021	0.42 µg/l
	Enfants*	6-11 ans	2020-2021	0.57 µg/l

Tableau 36 suite

Marqueur	Population	Age	Années	RV_{95}
Glyphosate	Ado + adultes	12-39 ans	2019-2020	0.23 µg/l
	Femmes	12-39 ans	2019-2020	0.13 µg/l
	Hommes	12-39 ans	2019-2020	0.25 µg/l
	Enfants	3-11 ans	2020-2021	0.30 µg/l
AMPA	Ado + adultes	12-39 ans	2019-2020	0.22 µg/l
	Enfants	3-11 ans	2020-2021	0.32 µg/l
Diéthylphosphate (DEP)	Ado + adultes	12-39 ans	2019-2020	10.8 µg/l
	Enfants	3-11 ans	2020-2021	18.0 µg/l
Diéthylthiophosphate (DETP)	Ado + adultes	12-39 ans	2019-2020	1.40 µg/l
	Enfants	3-11 ans	2020-2021	1.10 µg/l
Diméthylthiophosphate (DMT	Ado + adultes	12-39 ans	2019-2020	7.50 µg/l
	Enfants	3-11 ans	2020-2021	13.1 µg/l
Diméthyldithiophosphate (DM	Ado + adultes	12-39 ans	2019-2020	0.81 µg/l
	Enfants	3-11 ans	2020-2021	1.40 µg/l
Trichloropyridinol (TCPY)	Ado + adultes	12-39 ans	2019-2020	1.90 µg/l
	Femmes	12-39 ans	2019-2020	1.40 µg/l
	Hommes	12-39 ans	2019-2020	2.20 µg/l
	Enfants	3-11 ans	2020-2021	1.90 µg/l
c-DCCA	Ado + adultes	12-39 ans	2019-2020	1.02 µg/l
	Enfants	3-11 ans	2020-2021	2.10 µg/l
t-DCCA	Ado + adultes	12-39 ans	2019-2020	2.70 µg/l
	Enfants	3-11 ans	2020-2021	5.40 µg/l
DBCA	Ado + adultes	12-39 ans	2019-2020	1.60 µg/l
	Femmes	12-39 ans	2019-2020	1.10 µg/l
	Hommes	12-39 ans	2019-2020	1.80 µg/l
	Enfants	3-11 ans	2020-2021	1.70 µg/l
3-PBA	Ado + adultes	12-39 ans	2019-2020	2.80 µg/l
	Enfants	3-11 ans	2020-2021	5.90 µg/l

* Sous-groupes pour lesquels les tests de Mann Whitney n'était pas significatifs mais les z-tests à une proportion sur les P95 présentaient une p-value <0.001.

Tableau 37: RV_{95} pour les marqueurs sanguins mesurés pour la population wallonne (ng/g lip)

Marqueur	Population	Age	Années	RV_{95}
PCB-153	Ado + adultes	12-39 ans	2019-2020	52 ng/g lip
	Adolescents	12-19 ans	2019-2020	44 ng/g lip
	Adultes	20-39 ans	2019-2020	56 ng/g lip
PCB-180	Ado + adultes	12-39 ans	2019-2020	42 ng/g lip
	Adolescents	12-19 ans	2019-2020	34 ng/g lip
	Adultes	20-39 ans	2019-2020	46 ng/g lip
Hexachlorobenzène	Ado + adultes	12-39 ans	2019-2020	22 ng/g lip
	Femmes	12-39 ans	2019-2020	18 ng/g lip
	Hommes	12-39 ans	2019-2020	23 ng/g lip

Adolescents (12-19 ans) et jeunes adultes (20-39 ans) recrutés entre 2019 et 2020 (phase 1)

Seuls 10% de la population wallonne étudiée présentent un taux de mercure urinaire quantifiable. Comme attendu, les adultes et les participants portant des amalgames dentaires montrent des concentrations significativement plus élevées. D'une manière générale, les concentrations en mercure urinaire mesurées chez les participants wallons sont proches de celles rapportées récemment pour les populations belge, allemande, ou nord-américaine.

Le BPA est le bisphénol qui a été mesuré en plus grande concentration, suivi par le BPS et le BPF. Des concentrations plus élevées ont été mesurées dans l'urine des adolescents par rapport aux adultes, et chez les hommes par rapport aux femmes. Les concentrations de BPA mesurées dans l'urine des participants wallons sont bien inférieures à celles rapportées dans toutes les études réalisées entre 2007 et 2017, confirmant une tendance à la baisse dans le temps résultant des différentes restrictions d'utilisation imposées en Europe et aux Etats-Unis. Les concentrations des autres bisphénols semblent également être inférieures dans la population wallonne par rapport aux concentrations rapportées dans la littérature.

Des métabolites de HAPs ont été retrouvés dans un grand nombre d'échantillons d'urine, en concentrations supérieures chez les fumeurs, et chez les hommes comparativement aux femmes. Dans l'ensemble, les résultats observés pour les métabolites de HAPs en Wallonie paraissent proches ou légèrement inférieurs à ceux rapportés pour d'autres populations.

Différentes classes de pesticides ont été examinées dans la population wallonne. Si le glyphopsate n'a été retrouvé dans l'urine que d'un participant sur cinq, au moins un métabolite de pesticides organophosphorés et un métabolite de pyréthrinoïdes ont été détectés positivement dans respectivement 94% et 93% des échantillons d'urine, avec des concentrations supérieures chez les adolescents et chez les hommes. Si les résultats obtenus pour le glyphosate et les métabolites de pyréthrinoïdes sont comparables aux valeurs rapportées dans la littérature, les concentrations des marqueurs de pesticides organophosphorés observées dans la population wallonne entre fin 2019 et début 2020 sont largement inférieures à celles mesurées dans d'autres études nationales ou internationales (à l'exception d'une étude récente canadienne). C'est notamment le cas pour le TCPY, métabolite du chlorpyrifos, pour lequel on observe une diminution importante comparée aux résultats obtenus pour des enfants wallons recrutés en 2016 (projet EXPOPESTEN), conséquence probable du non-renouvellement de l'autorisation du chlorpyrifos et du chlorpyrifos-methyl en Europe fin 2019.

Sur les 14 pesticides organochlorés initialement dosés, seul l'hexachlorobenzène, le 4,4'-DDE, et le béta-hexachlorohexane ont été détectés dans le sérum des adolescents et adultes (dans 20%, 7% et 3% des échantillons respectivement). Les PCBs (153 et -180) ont été mesurés à des concentrations supérieures chez les adultes par rapport aux adolescents. Les concentrations mesurées sont largement inférieures aux concentrations rapportées pour des études plus

anciennes (2008-2011) quel que soit le pays considéré, mais proches des valeurs rapportées récemment comme par exemple pour des adolescents flamands recrutés entre 2017 et 2018.

Dans les sangs de cordon, très peu de résidus de pesticides organochlorés ou de PCBs ont été retrouvés (entre 0 et 5% selon le marqueur recherché), et à des concentrations très faibles.

Globalement, les résultats obtenus pour les marqueurs mesurés dans le cadre de ce premier programme de Biomonitoring Humain Wallon sont pour la plupart proches de ceux rapportés dans d'autres études nationales ou internationales, voir inférieurs pour les substances qui ont subi ces dernières années des restrictions au niveau belge et/ou européen.

Enfants (3-5 ans et 6-11 ans) recrutés entre 2020-2022 (la phase 2)

Moins de un enfant sur 10 avait dans ses urines des taux détectables de mercure, et ce quels que soient l'âge ou le sexe de l'enfant. La RV95 est plus élevée pour les enfants ayant consommé du poisson dans les 4 derniers jours, et est proche de celle obtenue pour les adolescents (12-19 ans) recrutés lors de la première phase (2019-2020). Les concentrations de mercure urinaire mesurées chez les enfants wallons sont beaucoup plus basses que celles mesurées dans l'urine d'enfants français (recrutés entre 2014 et 2016), mais légèrement supérieures aux concentrations urinaires retrouvées chez des enfants allemands pour qui les obturations dentaires avec des amalgames au mercure ne sont plus recommandées depuis 1993.

Le BPA et le BPS sont les bisphénols mesurés en plus grand concentrations dans les urines des enfants, concentrations significativement plus élevées chez les plus jeunes (3-5 ans vs 6-11 ans). Cette différence en fonction de l'âge provient probablement au moins en partie d'une plus grande exposition des plus jeunes via les poussières domestiques et la mise en bouche d'objets contenant des bisphénols. Les études de biomonitoring estimant l'exposition aux bisphénols autres que le BPA sont encore peu nombreuses et rendent donc difficile la comparaison des résultats avec d'autres populations. Dans l'ensemble, les niveaux de concentrations semblent être comparables ou inférieures dans la population wallonne par rapport aux concentrations rapportées dans la littérature. Les concentrations en BPA dans notre population d'enfants sont largement inférieures aux concentrations mesurées dans l'urine d'enfants belges recrutés en 2011, que ce soit en Province de Liège ou lors du projet Democophes. Cette diminution est le reflet de la baisse des niveaux d'exposition de la population suite aux restrictions et interdictions de l'utilisation du BPA au sein de l'Union Européenne depuis deux décennies. Néanmoins, la mesure sur le long terme des niveaux d'imprégnation des alternatives au BPA (BPS et BPF) est nécessaire au sein de la population générale afin de surveiller une probable augmentation de l'exposition suite à l'augmentation de l'incorporation des alternatives au BPA dans les objets de la vie courante.

Les 1- et 2-naphtol, le 9 hydroxyfluorène, et le 1-hydroxyphnénanthrène sont les métabolites de HAPs retrouvés dans le plus grand nombre d'échantillons d'urine et en plus grandes

concentrations, les autres métabolites n'ayant été détectés que dans très peu d'échantillons. Aucune différence n'a été observée en fonction de l'âge ou du sexe de l'enfant, excepté pour le 4-hydroxyphénanthrène, et aucun impact du tabagisme passif n'a été mis en évidence. Il semblerait qu'on observe un profil de métabolites différent entre les enfants (3-11 ans), et les adolescents et jeunes adultes (12-19 ans et 20-39 ans) qui pourrait être le résultat d'un métabolisme légèrement différent. Comparés aux résultats rapportés dans des études de biomonitoring à grande échelle en Espagne, Allemagne, aux USA ou au Canada, les concentrations urinaires de métabolites de HAPs mesurées en population d'enfants en Wallonie sont du même ordre de grandeur, mais varient d'un métabolite à un autre et d'une étude à l'autre.

Le glyphosate a été détecté dans plus de 1 échantillon d'urine d'enfant sur 3. Ce taux de détection semble plus élevé que ceux obtenus dans l'urine des adolescents et des adultes. Peu d'études ont rapporté des concentrations urinaires en glyphosate et AMPA en population générale, mais les résultats obtenus en Wallonie sont très proches de ceux mesurés lors du biomonitoring allemand (GerES) entre 2015 et 2017.

Au moins 2 métabolites de pesticides organophosphorés et 2 métabolite de pyréthrinoïdes ont été retrouvés dans plus de 90% des échantillons d'urine des enfants, avec des concentrations souvent supérieures chez les plus jeunes, et plus élevées que celles observées dans l'urine des adolescents et les adultes lors de la première phase (BMH-WAL I). Cette plus grande exposition pour les enfants pourrait provenir d'une différence d'alimentation selon l'âge, ou des habitudes de vie différentes (et pour les plus jeunes notamment une plus grande partie du temps passée en extérieur, un comportement main-bouche, etc). Par rapport aux autres pays et régions du monde, les concentrations mesurées en métabolites de pesticides organophosphorés et pyréthrinoïdes diffèrent d'une étude à l'autre, traduisant probablement une utilisation différente des pesticides parents entre les continents mais aussi au sein de l'Europe d'un pays à l'autre. Les concentrations mesurées en TCPY (métabolite du chlopyrifos) dans l'urine des enfants wallons en 2020-2021 sont très largement inférieures aux concentrations mesurées dans l'urine des enfants recrutés en 2016 (projet EXPOPESTEN), effet probable de la décision européenne de ne pas renouveler l'autorisation du chlorpyrifos et du chlorpyrifos-methyl depuis décembre 2019. Pour les autres pesticides, on a observé dans l'ensemble peu de différences entre les résultats actuels et ceux obtenus en 2016.

RÉFÉRENCES

Agency for Toxic Substances and Disease Registry (ATSDR), 1999.Toxicological profile for mercury. Available online: https://www.atsdr.cdc.gov/toxprofiles/tp46.pdf

Allen, R.; Mage, D.; Gondy, G.; Christensen, C.; Barr, D.; Needham, L. The use of a creatinine correction for reporting children's urinary pesticide concentrations, Epidemiology 2004, 15 S69-S70

Apostoli, P., Cortesi, I., Mangili, A., Elia, G., Drago, I., Gagliardi, T., et al. Assessment of reference values for mercury in urine: the results of an Italian polycentric study. Sci. Tot. Environ. 2002, 289, 13-24. https://doi.org/10.1016/S0048-9697(01)01013-0

Aprea, C., Sciarra, G., Orsi, D., Boccalon, P., Sartorelli, P., Sartorelli, E., Sciarpa, G., Orsi, D. Urinary excretion of alkylphosphates in the general population. Sci. Total Environ. 1996, 177, 37-41

Aquilina, N.J., Delgado-Saborit, J.M., Meddings, C., Baker, S., Harrison, R.M., JacobIII, P., Wilson, M., Yu, L., Duan, M., Benowitz, N.L. Environmental and biological monitoring of exposures to PAHs and ETS in the general population. Environ. Int. 2010, 36, 763-771. doi:10.1016/j.envint.2010.05.015."

ATSDR, Agency for Toxic Substances and Disease Registry. Toxicological profile for polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) (update). 1995, US Department of Health and Human Services: Atlanta. https://www.atsdr.cdc.gov/toxprofiles/tp69.pdf

Balicco, A.; Bidondo, M.-L.; Fillol, C.; Gane, J.; Oleko, A.; Saoudi, A.; Zeghnoun, A. Imprégnation de la population française par les bisphénols A, S ET F, Programme national de biosurveillance, Esteban 2014-2016. Saint-Maurice : Santé publique France, 2019, 60 p. https://www.santepubliquefrance.fr

Balicco, A.; Bidondo, M.-L.; Fillol, C.; Gane, J.; Oleko, A.; Saoudi, A.; Zeghnoun, A. Imprégnation de la population française par le mercure, Programme national de biosurveillance, Esteban 2014-2016. Saint-Maurice : Santé publique France, 2021, 60 p. https://www.santepubliquefrance.fr

Barregaard, L. Biological monitoring of exposure to mercury vapor. Scand. J. Work Environ. Health 1993, 19, 45-49.

Bartel-Steinbach, M.; Lermen, D.; Gwinner, F.; Schaefer, M.; Goeen, T.; Conrad, A.; Weber, T.; von Briesen, H.; Kolossa-Gehring, M. Long-term monitoring of mercury in young German adults: Time trend analyses from the German Environmental Specimen Bank, 1995-2018. Environmental Research (2022), 207, 112592.

Bartolomé, M.; Ramos, J. J.; Cutanda, F.; Huetos, O.; Esteban, M.; Ruiz-Moraga, M.; Calvo, E.; Pérez-Gómez, B.; González, O.; Castaño, A. Urinary Polycyclic Aromatic Hydrocarbon Metabolites Levels in a Representative Sample of the Spanish Adult Population: The BIOAMBIENT.ES Project. Chemosphere 2015, 135, 436–446. https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2014.12.008.

Becher, G. and A. Bjorseth, Determination of exposure to polycyclic aromatic hydrocarbons by analysis of human urine. Cancer Lett, 1983. 17(3): p. 301-11.

Becker, K.; Müssig-Zufika, M.; .; Conrad, A.; Lüdecke, A.; Schulz, C ; Seiwert, M.; Kolossa-Gehring, M. German Environmental Survey for Children 2003/06- GerES IV- Human Biomonitoring Levels of selected substances in blood and urine of children in Germany. Umweltbundesamt, 2008. http:/www.umweltbundesamt.de

Becker, K.; Güen, T.; Seiwert, M.; Conrad, A.; Pick-Fuß, H.; Müller, J.; Wittassek, M.; Schulz, C.; Kolossa-Gehring, M. GerES IV: Phthalate Metabolites and Bisphenol A in Urine of German Children. International Journal of Hygiene and Environmental Health 2009, 212 (6), 685–692. https://doi.org/10.1016/j.ijheh.2009.08.002.

Becker, K.; Schroeter-Kermani, C. ; Seiwert, M.; Rüther, M.; Conrad, A.; Schulz, C.; Wilhelm, M.; Wittsiepe, J.; Günsel, A.; Dobler, L.; Kolossa-Gehring, M. German health-related environmental monitoring: Assessing time trends of the general population's exposure to heavy metals. International Journal of Hygiene and Environmental Health 2013, 216, 250-254. https://doi.org/10.1016/j.ijheh.2013.01.002.

Berglund, A, Pohl, L., Olsson, S., Bergman, M. Determination of the Rate of Release of Intra-Oral Mercury Vapor Amalgam. J. Dent. Res. 1988, 67, 1235-1242

Bevan, R.; Jones, K.; Cocker, J.; Assem, F. L.; Levy, L. S. Reference Ranges for Key Biomarkers of Chemical Exposure within the UK Population. International Journal of Hygiene and Environmental Health 2013, 216 (2), 170–174. https://doi.org/10.1016/j.ijheh.2012.03.005.

Canadian Health Measures Survey (CHMS), Fourth Report on Human Biomonitoring of Environmental Chemicals in Canada. 2017. https://www.canada.ca/en/health-canada/services/environmental-workplace-health/reports-publications/environmental-contaminants/fourth-report-human-biomonitoring-environmental-chemicals-canada.html

Center for Disease Control and Prevention (CDC), 2009. Fourth National Report on Human Exposure to Environmental Chemicals.http://www.cdc.gov/exposurereport/pdf/fourthreport.pdf

Chaperon, L. ; Fillol, C. ; Gane, J. ; Amivi, O. ; Rambaud, L. ; Saoudi, A. ; Zeghnoun, A. Imprégnation de la population française par les pyréthrinoïdes. Programme national de biosurveillance, Esteban 2014-2016. Saint-Maurice : Santé publique France, 2021. 62 p. https://www.santepubliquefrance.fr

Chen, Da, Kurunthachalam Kannan, Hongli Tan, Zhen-Gui Zheng, Yong-Lai Feng, Yan Wu, and Margaret Widelka. 2016. "Bisphenol Analogues Other Than BPA: Environmental Occurrence, Human Exposure, and Toxicity - A Review." Environ Sci Technol 50:5438-5453. doi: 10.1021/acs.est.5b05387

Connolly, A., Koslitz, S., Bury, D., Brüning, T., Conrad, A., Kolossa-Gehring, M., Coggins M.A., Koch, H.M. Sensitive and selective quantification of glyphosate and aminomethylphosphonic acid (AMPA) in urine of the general population by gas chromatography-tandem mass spectrometry. Journal of Chromatography B, 2020, 1158, 122348. https://doi.org/10.1016/j.jchromb.2020.122348

Connolly, Alison; Coggins, Marie A.; Koch, Holger M. Human biomonitoring of glyphosate exposures: state-of-the-art and future research challenges. Toxics (2020), 8(3), 60

Conrad, A., Schröter-Kermani, C., Hoppe,H.W., Rüther, M., Pieper, S., Kolossa-Gehring, M. Glyphosate in German adults–Time trend (2001 to 2015) of human exposure to a widely used herbicide. International Journal o fHygiene and Environmental Health, 2017, 220, 8–16

Dereumeaux, C.; Saoudi, A.; Pecheux, M.; Berat, B.; de Crouy-Chanel, P.; Zaros, C.; Brunel, S.; Delamaire, C.; le Tertre, A.; Lefranc, A.; Vandentorren, S.; Guldner, L. Biomarkers of Exposure to Environmental Contaminants in French Pregnant Women from the Elfe Cohort in 2011. Environment International 2016, 97, 56–67. https://doi.org/10.1016/j.envint.2016.10.013.

Dereumeaux, C., Saoudi, A., Goria, S., Wagner, V., De Crouy-Chanel, P., Pecheux, M., Berat, B., Zaros, C., Guldner, L. Urinary levels of pyrethroid pesticides and determinants in pregnant French women from the Elfe cohort. Environment International 2018, 119, 89-99

Dhooge, W, Den Hond, E., Koppen, G., Bruckers, L., Nelen, V., Van De Mieroop, E., Bilau, M., Croes, K., Baeyens, W., Schoeters, G., et al. Internal exposure to pollutants and body size in Flemish adolescents and adults: Associations and dose-response relationships. Environment International (2010), 36(4), 330-337

Dualde, P., León, N., Sanchis, Y., Corpas-Burgos, F., Fernández, S.F., Hernández, C.S., Saez, G., Pérez-Zafra, E., Mora-Herranz, A., Pardo, O., et al. Biomonitoring of phthalates, bisphenols and parabens in children: exposure, predictors and risk assessment. Int. J. Environ. Res. Public Health 2021, 18, 8909

Egerer, E., Roßbach, B., Muttray, A., Schneider, M., Letzel, S. Biomonitoring of pyrethroid metabolites in environmental medicine. Umweltmed. Forsch. Prax. 2004, 9, p. 235

Esteban-Lopez, M.; Arrebola, J.P.; Julia, M.; Part, P.; Soto, E.; Canas, A.; Pedraza-Diaz, S.; Gonzalez-Rubio, J.; Castano, A. Selecting the best non-invasive matrix to measure mercury exposure in human biomonitoring surveys. Environmental Research (2022), 204(Part_D), 112394.

Fagan, J., Bohlen, L., Patton, S., Klein, K. Organic diet intervention significantly reduces urinary glyphosate levels in U.S. children and adults. Environmental Research, 2020, 189, 109898. https://doi.org/10.1016/j.envres.2020.109898.

Fernández, S.F.; Pardo, O.; Corpas-Burgos, F.; Yusà, V. Exposure and cumulative risk assessment to non-persistent pesticides in Spanish children using biomonitoring. Science of The Total Environment 2020, 746,140983. https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.140983.

Fernández, S.F.; Pardo, O.; Hernández, C.S.; Garlito, B.; Yusà, V. Children's exposure to polycyclic aromatic hydrocarbons in the Valencian Region (Spain): Urinary levels, predictors of exposure and risk assessment. Environment International 2021, 153, 106535.

Ferreira, C.; Duarte, S.C.; Costa, E.; Pereira, A.; Silva, L.J.G.; Almeida, A.; Lino, C.; Pena, A. Urine biomonitoring of glyphosate in children: exposure and risk assessment. Environ Res 2021, 198:111294

Frederiksen, H.; Nielsen, O.; Koch, H. M.; Skakkebaek, N. E.; Juul, A.; Jørgensen, N.; Andersson, A.-M. Changes in Urinary Excretion of Phthalates, Phthalate Substitutes, Bisphenols and Other Polychlorinated and Phenolic Substances in Young Danish Men; 2009–2017. International Journal of Hygiene and Environmental Health 2020, 223 (1), 93–105. https://doi.org/10.1016/j.ijheh.2019.10.002.

Frery, N., Saoudi, A., Garnier, R., Zeghnoun, A., Falq, G. Exposition de la population française aux substances chimiques de l'environnement. Saint-Maurice: Institut de veille sanitaire: p58. Available online: http://www.invs.sante.fr

Garí M, González-Quinteiro Y, Bravo N, Grimalt JO. Analysis of metabolites of organophosphate and pyrethroid pesticides in human urine from urban and agricultural populations (Catalonia and Galicia). Sci Total Environ. 2018, 622-623, 526-533. doi: 10.1016/j.scitotenv.2017.11.355

Geens, T., Bruckers, L., Covaci, A., Schoeters, G., Fierens, T., Sioen, I., Vanermen, G., Baeyens, W., Morrens, B., Loots,I., Nelen, V., Nemery de Bellevaux, B., Van Larebeke, N., Den Hond, H. Determinants of bisphenol A and phthalate metabolites in urineof Flemish adolescents. Environ. Res. 2014, 134, 110-117.

Giusti, A., Champon, L., Remy, S. EXPOSPESTEN – VOLET 2 : Biomonitoring des pesticides dans des populations d'enfants vivant dans des zones d'expositions aux pesticides contrastées. 2018. Rapport n°01323/2018

Gyllenhammar, I.; Glynn, A.; Jönsson, B. A. G.; Lindh, C. H.; Darnerud, P. O.; Svensson, K.; Lignell, S. Diverging Temporal Trends of Human Exposure to Bisphenols and Plastizisers, Such as Phthalates, Caused by Substitution of Legacy EDCs? Environmental Research 2017, 153, 48–54. https://doi.org/10.1016/j.envres.2016.11.012.

HBM4EU priority substances. https://www.hbm4eu

Hardell, E., Carlberg, M., Nordstrom, M., van Bavel, B., 2010. Time trends of persistent organic pollutants in Sweden during 1993–2007 and relation to age, gender, body mass index, breast-feeding and parity. Sci. Total Environ. 408, 4412–4419

HBM4EU priority substances. https://www.hbm4eu

Heudorf U, Butte W, Schulz C, Angerer J. Reference values for metabolites of pyrethroid and organophosphorous insecticides in urine for human biomonitoring in environmental medicine. Int J Hyg Environ Health. 2006, 209, 293-9. doi: 10.1016/j.ijheh.2006.01.001

Hoet, P., Jacquerye, C., Deumer, G., Lison, D., Faufroid, V. Reference values and upper reference limits for 26 trace elements in the urine of adults living in Belgium. Clin. Chem. Lab. Med. 2013, 51, 839-849. https://doi.org/10.1515/cclm-2012-0688

Huang, R.; Liu, Z.; Yin, H.; Dang, Z.; Wu, P.; Zhu, N.; Lin, Z. Bisphenol A Concentrations in Human Urine, Human Intakes across Six Continents, and Annual Trends of Average Intakes in Adult and Child Populations Worldwide: A Thorough Literature Review. Science of The Total Environment 2018, 626, 971–981. https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2018.01.144.

IPCS - Glyphosate. Environmental Health Criteria 159. World Health Organization : Genève ; 1994 : 177 p.

Jung, Sun Kyoung; Choi, Wookhee; Kim, Sung Yeon; Hong, Sooyeon; Jeon, Hye Li; Joo, Youngkyung; Lee, Chulwoo; Choi, Kyungho; Kim, Sungkyoon; Lee, Kee-Jae; et al. Profile of Environmental Chemicals in the Korean Population-Results of the Korean National Environmental Health Survey (KoNEHS) Cycle 3, 2015-2017. International journal of environmental research and public health (2022), 19(2)

Knudsen, L.E.; Hansen, P.W.; Mizrak, S.; Hansen, H.K.; Mørck, T.A.; Nielsen, F.; Siersma, V.; Mathiesen, L. Biomonitoring of Danish school children and mothers including biomarkers of PBDE and glyphosate. *Reviews on Environmental Health* 2017, 32 (3), 279-290. https://doi.org/10.1515/reveh-2016-0067

Koch, H. M.; Kolossa-Gehring, M.; Schröter-Kermani, C.; Angerer, J.; Brüning, T. Bisphenol A in 24 h Urine and Plasma Samples of the German Environmental Specimen Bank from 1995 to 2009: A Retrospective Exposure Evaluation. Journal of Exposure Science & Environmental Epidemiology 2012, 22 (6), 610–616. https://doi.org/10.1038/jes.2012.39.

Koppen, G.; Govarts, E.; Vanermen, G.; Voorspoels, S.; Govindan, M.; Dewolf, M.-C.; Den Hond, E.; Biot, P.; Casteleyn, L.; Kolossa-Gehring, M.; Schwedler, G.; Angerer, J.; Koch, H. M.; Schindler, B. K.; Castaño, A.; López, M. E.; Sepai, O.; Exley, K.; Bloemen, L.; Knudsen, L. E.; Joas, R.; Joas, A.; Schoeters, G.; Covaci, A. Mothers and Children Are Related, Even in Exposure to Chemicals Present in Common Consumer Products. Environmental Research 2019, 175, 297–307. https://doi.org/10.1016/j.envres.2019.05.023.

Krieger, R. (Ed.) 2001. Handbook of pesticides toxicology. Principles and agents, 2nd ed., Acadameci Press, London.

Lafontaine M, Champmartin C, Simon P, Delsaut P et al. - 3-Hydroxybenzo[a]pyrene in the urine of smokers and non-smokers. Toxicol Lett. 2006 ; 162 (2-3) : 181-85.

Lemke, N.; Murawski, A.; Schmied-Tobies, M.I.H.; Rucic, E.; Hoppe, H.W.; Conrad, A.; Kolossa-Gehring, M. Glyphosate and amino-methylphosphonic acid (AMPA) in urine of children and adolescents in Germany - human biomonitoring results of the German Environmental Survey 2014–2017 (GerES V). Environ Int 2021, 156:106769

Li, Yaping; Zhang, Yu; Yu, Meng; Hu, Liqin; Zeng, Ting; Liu, Ling; Wang, Limei; Deng, Liangqiong; Li, Xiang; Liu, Ping; et al. Biological monitoring and health assessment of 21 metal(loid)s in children and adolescents in Liuzhou City, Southwest China. Environmental Science and Pollution Research (2022) 29:18689–18701

Llop, S., Murcia, M., Iñiguez, C., Roca, M., González, L., Yusà, V., Rebagliato, M., & Ballester, F. Distributions and determinants of urinary biomarkers of organophosphate pesticide exposure in a prospective Spanish birth cohort study. Environmental health : a global access science source, 2017, 16, 46. https://doi.org/10.1186/s12940-017-0255-z

Lozano-Kasten, F.; Sierra-Diaz, E. ; Gonzalez Chavez, H. ; Aarón Peregrina Lucano,A. ; Cremades, R. ; Sandoval Pinto, E. Seasonal Urinary Levels of Glyphosate in Children From Agricultural Communities. Dose-Response 2021, 19, 1-6.

Melgarejo M, Mendiola J, Koch HM, Moñino-García M, Noguera-Velasco JA, Torres-Cantero AM. Associations between urinary organophosphate pesticide metabolite levels and reproductive parameters in men from an infertility clinic. Environ Res. 2015, 137, 292-8. doi: 10.1016/j.envres.2015.01.004

Moos, R. K.; Angerer, J.; Wittsiepe, J.; Wilhelm, M.; Brüning, T.; Koch, H. M. Rapid Determination of Nine Parabens and Seven Other Environmental Phenols in Urine Samples of German Children and Adults. International Journal of Hygiene and Environmental Health 2014, 217 (8), 845–853. https://doi.org/10.1016/j.ijheh.2014.06.003.

Murawski, A.; Roth, A.; Schwedler, G.; Schmied-Tobies, M. I. H.; Rucic, E.; Pluym, N.; Scherer, M.; Scherer, G.; Conrad, A.; Kolossa-Gehring, M. Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAH) in Urine of Children and Adolescents in Germany – Human Biomonitoring Results of the German Environmental Survey 2014–2017 (GerES V). International Journal of Hygiene and Environmental Health 2020, 226, 113491. https://doi.org/10.1016/j.ijheh.2020.113491.

Noest, T.H., Breivik, K., Fuskevaag, O.M., Nieboer, E., Odland, J.O., Sandanger, T.M., 2013. Persistent organic pollutants in Norwegian menfrom 1979 to 2007: intraindividual changes, age-period-cohort effects, and model predictions. Environ. Health Perspect. 1292–1298.

Nova, P., Calheiros, C.S.C., Silva, M. Glyphosate in Portuguese Adults – A Pilot Study. Environmental Toxicology and Pharmacology, 2020, 80, 103462. https://doi.org/10.1016/j.etap.2020.103462.

Pécheux, M., Fillol, C., Gane, J., Oleko, A., Saoudi, A., Zeghnoun, A. Imprégnation de la population française par les herbicides, Programme national de biosurveillance, Esteban 2014-2016. Saint-Maurice : Santé publique France, 2021, 57 p. https://www.santepubliquefrance.fr

Petrik, J., Drobna, B., Pavuk, M., Jursa, S., Wimmerova, S., Chovancova, J., 2006. Serum PCBs and organochlorine pesticides in Slovakia: age, gender, and residence as determinants of organochlorine concentrations. Chemosphere 65, 410–418

Pirard, C., Sagot, C., Deville, M., Dubois, N., Charlier, C. Urinary levels of bisphenol A, triclosan and 4-nonylphenol in a general Belgian population. Environ. Int. 2012, 48, 78-83.

Pirard, C; Charlier, C. Chapter 4: Human exposure of Bisphenol a: review of the urinary biomarker levels in the general population, in Bisphenol A – Sources, risks of environmental exposure and human health effects edited by Gibert, Y. Nova Science Publishers Inc., 2015.

Pirard, C., Compere, S., Firquet, K., Charlier, C. The current environmental levels of endocrine disruptors (mercury, cadmium, organochlorine pesticides and PCBs) in a Belgian adult population and their predictors of exposure. Int. J. Hyg. Environ. Health 2018, 221, 211-222. https://doi.org/10.1016/j.ijheh.2017.10.010

Pirard, C., Remy, S., Giusti, A., Champon, L., Charlier, C. Assessment of children's exposure to currently used pesticides in wallonia, Belgium. Toxicology Letters, 2020, 329, 1-11. https://doi.org/10.1016/j.toxlet.2020.04.020.

Rancière Fanny; Botton Jérémie; Slama Rémy; Lacroix Marlène Z.; Debrauwer Laurent; Charles Marie Aline; Roussel Ronan; Balkau Beverley; Magliano Dianna J.;. Exposure to Bisphenol A and Bisphenol S and Incident Type 2 Diabetes: A Case–Cohort Study in the French Cohort D.E.S.I.R. Environmental Health Perspectives 127 (10), 107013. https://doi.org/10.1289/EHP5159.

Raponi, F.; Bauleo, L.; Ancona, C.; Forastiere, F.; Paci, E.; Pigini, D.; Tranfo, G. Quantification of 1-Hydroxypyrene, 1- and 2-Hydroxynaphthalene, 3-Hydroxybenzo[a]Pyrene and 6-Hydroxynitropyrene by HPLC-MS/MS in Human Urine as Exposure Biomarkers for Environmental and Occupational Surveys. Biomarkers 2017, 22 (6), 575–583. https://doi.org/10.1080/1354750X.2016.1252959.

Roca, M. ; Miralles-Marco, A. ; Ferré, J. ; Pérez, R. ; Yusà, V. Biomonitoring exposure assessment to contemporary pesticides in a school children population of Spain. Environmental Research 2014, 131, 77-85.

Santé Publique France 2019. Imprégnation de la population française par les bisphénols A, S et F. Programme national de biosurveillance, Esteban 2014-2016. https://www.santepubliquefrance.fr/determinants-de-sante/exposition-a-des-substances-chimiques/perturbateurs-endocriniens

Schoeters, G., Colles, A., Den Hond, E., Croes, K., Vrijens, J., Baeyens, W., et al. The Flemish environment and health study (FLEHS)-second survey (2007-2011): establishing reference values for biomarkers of exposure in the Flemish population. Issues Toxicol. 2012, 9, 135-165. https://doi.org/10.1039/9781849733373-00135

Schoeters, G.; Govarts, E.; Bruckers, L.; Den Hond, E.; Nelen, V.; De Henauw, S.; Sioen, I.; Nawrot, T. S.; Plusquin, M.; Vriens, A.; Covaci, A.; Loots, I.; Morrens, B.; Coertjens, D.; Van Larebeke, N.; De Craemer, S.; Croes, K.; Lambrechts, N.; Colles, A.; Baeyens, W. Three Cycles of Human Biomonitoring in Flanders − Time Trends Observed in the Flemish Environment and Health Study. International Journal of Hygiene and Environmental Health 2017, 220 (2, Part A), 36–45. https://doi.org/10.1016/j.ijheh.2016.11.006.

Schulz, C., Angerer, J., Ewers, U. Heudorf, U., Wilhelm, M. Revised and new reference values for environmental pollutants in urine or blood of children in Germany derived from the German Environmental Survey on Children 2003-2006 (GerES IV). Int. J. Hyg. Environ. Health 2009, 212, 637-647. http://dx.doi.org/10.1016/j.ijheh.2009.05.003

Schulz, C., Wilhelm, M., Heudorf, U., Kolossa-Gehring, M. Update of the reference and HBM values derived by the German Human Biomonitoring Commission. Int. J. Hyg. Environ. Health 2011, 215, 26-35

Service Public Fédéral (SPF). Santé Publique, sécurité de la chaîne alimentaire et Environnement. Hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP). 2016. https://www.health.belgium.be/fr/alimentation/securite-alimentaire/contaminants-chimiques/contaminants-de-processus/hydrocarbures

Stajnko, Anja; Snoj Tratnik, J.; Kosjek, T.; Mazej, D.; Jagodic, M.; Erzen, I.; Horvat, M. Seasonal glyphosate and AMPA levels in urine of children and adolescents living in rural regions of Northeastern Slovenia. Environment International, 2020, 143, 105985.

Tagne-Fotso, R. ; Fillol, C. ; Gane, J. ; Oleko, A. ; Saoudi, A. ; Zeghnoun, A. Imprégnation de la population française par les organophosphorés spécifiques et non spécifiques. Programme national de biosurveillance, Esteban 2014-2016. Saint-Maurice : Santé publique France, 2021, 60 p. htpps://www.santepubliquefrance.fr

Tait, S.; Carli, F.; Busani, L.; Ciociaro, D.; Della Latta, V.; Deodati, A.; Fabbrizi, E.; Pala, A.P.; Maranghi, F.; Tassinari, R.; et al. Italian Children Exposure to Bisphenol A: Biomonitoring Data from the LIFE PERSUADED Project. Int. J. Environ. Res. Public Health 2021, 18, 11846.

Trasande, L;, Aldana, S.I.; Trachtman, H.; Kannan, K., Morrison, D.; Christakis, D.A.; Whitlock, K.; Messito, M.J.; Gross, R.S.; Karthikraj, R.; Sathyanarayana,S. Glyphosate exposures and kidney injury biomarkers in infants and young children, Environmental Pollution 2020, 256, 113334.

Tschersich, C.; Murawski, A.; Schwedler, G. ; Rucic, E. ; Moos, R.K.; Kasper-Sonnenberg, M. ; Koch, H.M. ; Brüning, T., Kolossa-Gehring, M. Bisphenol A and six other environmental phenols in urine of children and adolescents in Germany – human biomonitoring results of the German

Environmental Survey 2014–2017 (GerES V). Science of The Total Environment 2021, 763, 144615.

UNEP. Stockholm Convention on Persistent Organic Pollutants, 2007. Available online: http://www.pops.int

Vandenberg, LN; Hauser, R; Marcus, M; Olea N; Welshons, WV. Human exposure to bisphenol A (BPA). Reprod Toxicol 2007; 24:139–77.

van der Meer, T. P.; Chung, M. K.; van Faassen, M.; Makris, K. C.; van Beek, A. P.; Kema, I. P.; Wolffenbuttel, B. H. R.; van Vliet-Ostaptchouk, J. V.; Patel, C. J. Temporal Exposure and Consistency of Endocrine Disrupting Chemicals in a Longitudinal Study of Individuals with Impaired Fasting Glucose. Environmental Research 2021, 197, 110901. https://doi.org/10.1016/j.envres.2021.110901.

Vogel, N.; Murawski, A.; Schmied-Tobies, M.I.H.; Rucic, E.; Doyle, U.; Kaempfe, A.; Hoera, C.; Hildebrand, J.; Schaefer, M.; Drexler, H.; et al. Lead, cadmium, mercury, and chromium in urine and blood of children and adolescents in Germany - Human biomonitoring results of the German Environmental Survey 2014-2017 (GerES V). International Journal of Hygiene and Environmental Health (2021), 237, 113822.

Weiss, B., Amler, S., Amler, R., 2004. Pesticides. Pediatrics 113, 1030–1036

WHO and the Convention Task Force on the Health Aspects of Air Pollution (2003) Health risks of persistent organic pollutants from long range transboundary air pollution. World Health Organisation Regional Office for Europe, Copenhagen, Denmark. http://www.euro.who.int/__data/assets/pdf_file/0009/78660/e78963.pdf.

World Health Organization (WHO). Biological monitoring of chemical exposure in the workplace-guidelines. 1996.
Available at http://whqlibdoc.who.int/hq/1996/WHO_HPR_OCH_96.1.pdf.
Wilhelm, M.; Hardt, J.; Schulz, C.; Angerer, J. New Reference Value and the Background Exposure for the PAH Metabolites 1-Hydroxypyrene and 1- and 2-Naphthol in Urine of the General Population in Germany: Basis for Validation of Human Biomonitoring Data in Environmental Medicine. International Journal of Hygiene and Environmental Health 2008, 211 (3), 447–453. https://doi.org/10.1016/j.ijheh.2007.09.002.

ANNEXES

ANNEXE 1 - Histogrammes des distributions de valeurs dans la population étudiée pour chacun des biomarqueurs étudiés pour la phase 1.

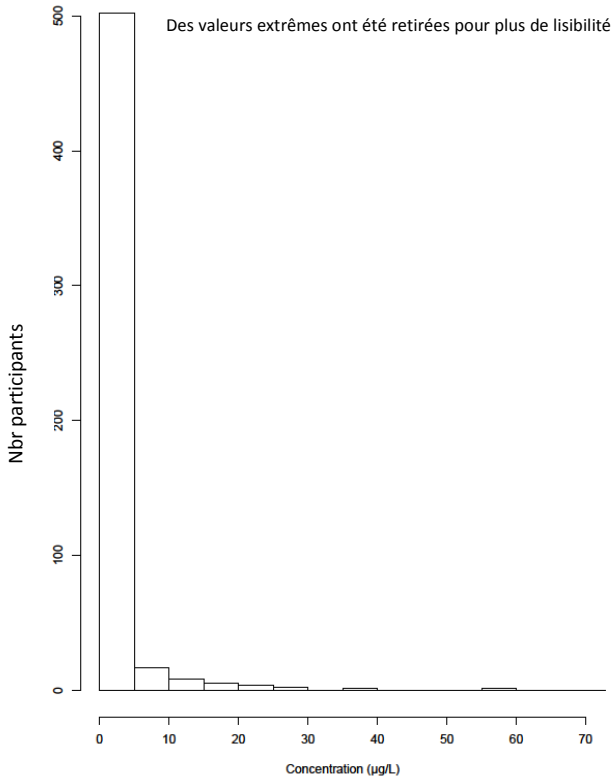
ANNEXE 2 - Histogrammes des distributions de valeurs dans la population étudiée pour chacun des biomarqueurs étudiés pour la phase 2.

ANNEXE 3 - Statistiques descriptives pour les biomarqueurs urinaires ajustés par rapport à la créatinine (en µg/g creatinine) pour la phase 1

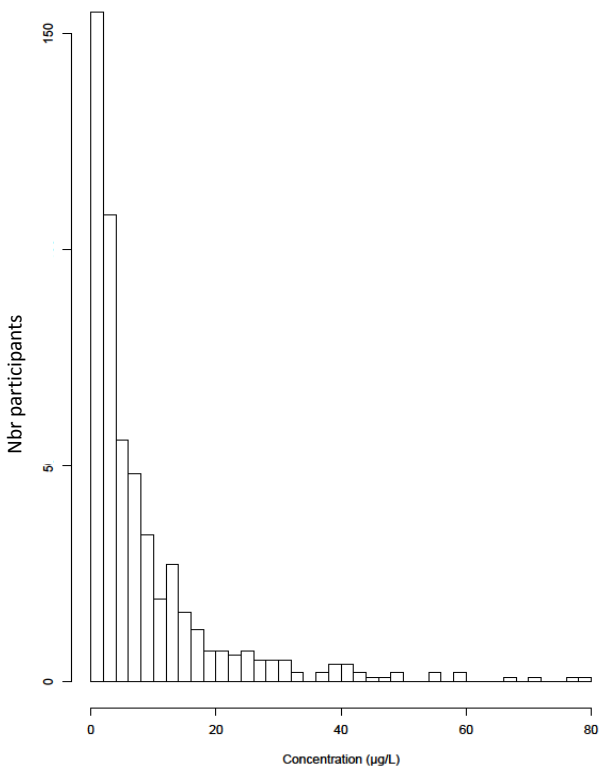
ANNEXE 4 - Statistiques descriptives pour les biomarqueurs urinaires ajustés par rapport à la créatinine (en µg/g creatinine) pour la phase 2

Annexe 1 : Histogrammes des distributions de valeurs mesurées dans la population étudiée lors de la phase 1 (adolescents et jeunes adultes)

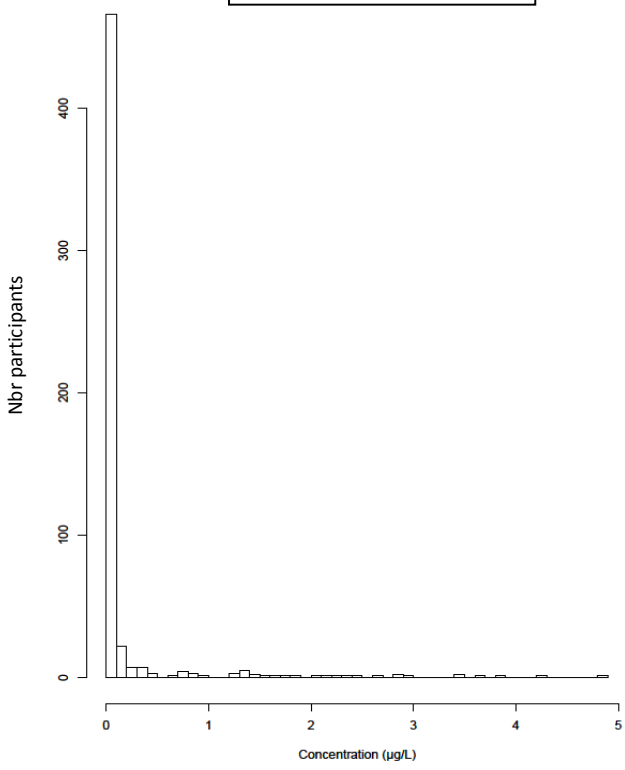
1-naphtol



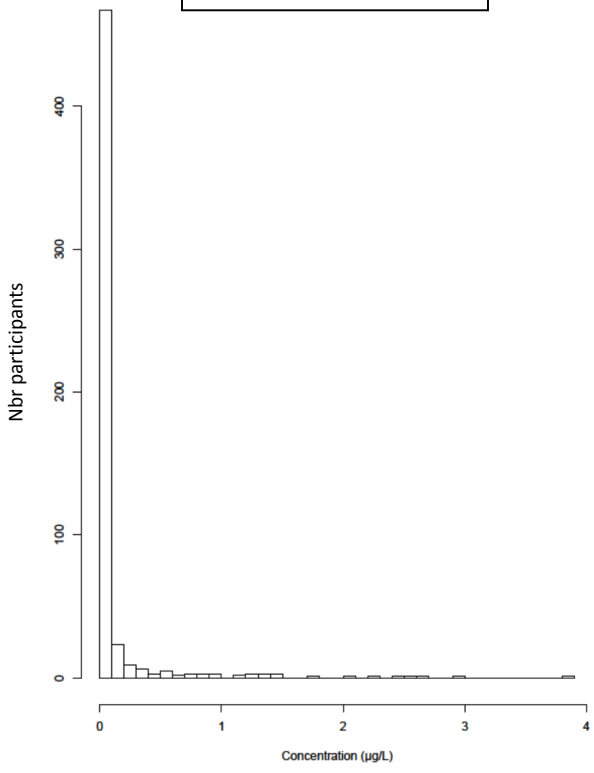
2-naphtol



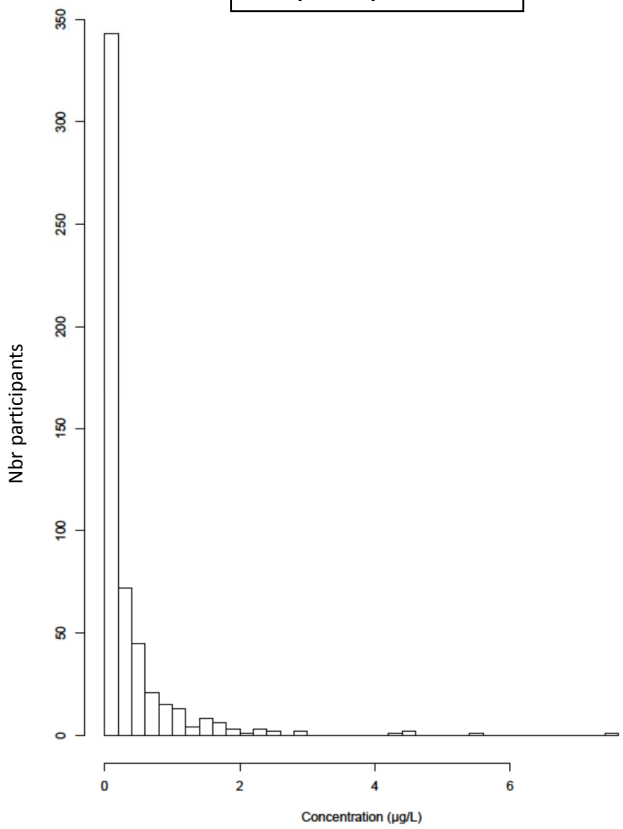
2-hydroxyfluorène



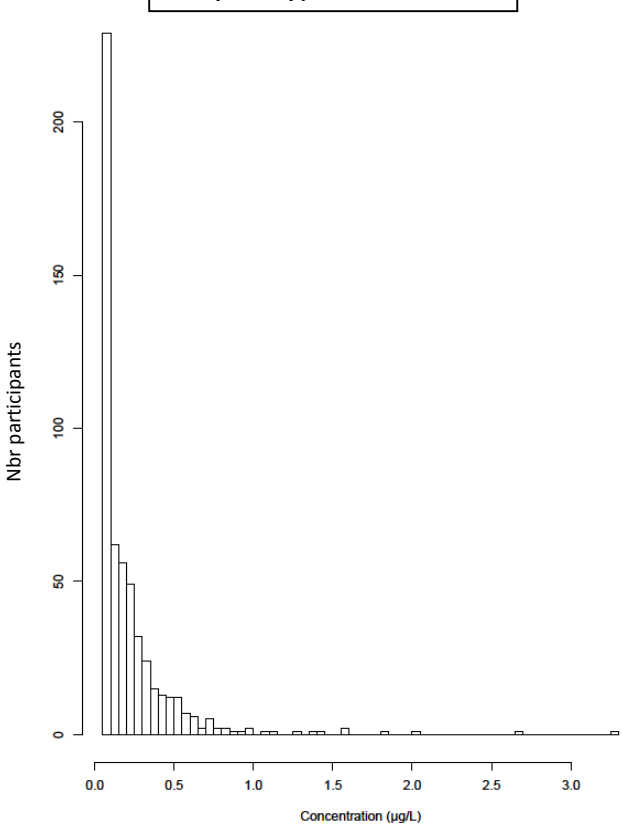
3-hydroxyfluorène



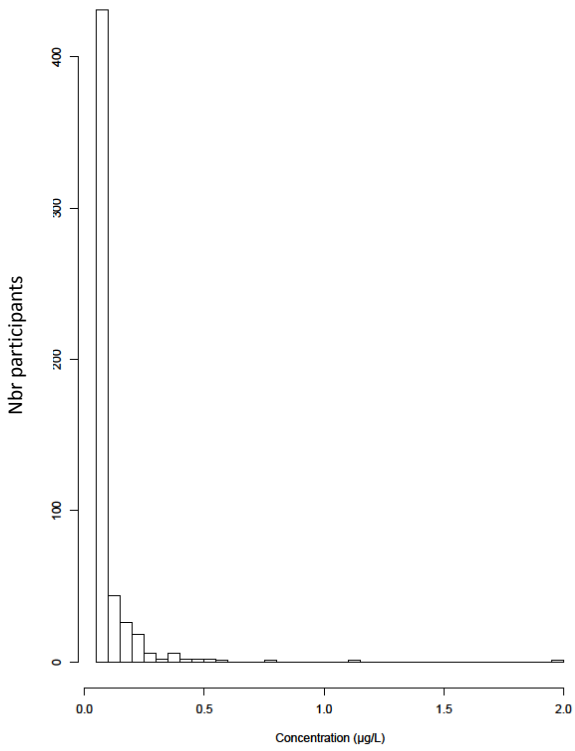
9-hydroxyfluorène



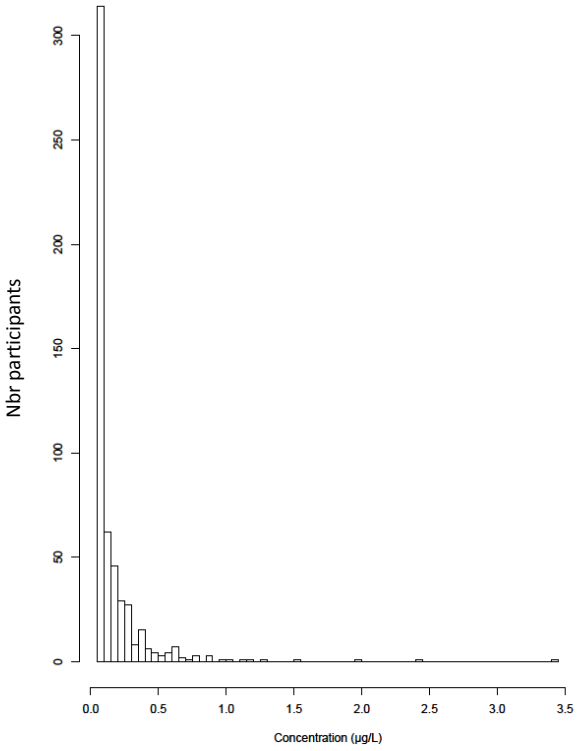
1-hydroxyphénanthrène



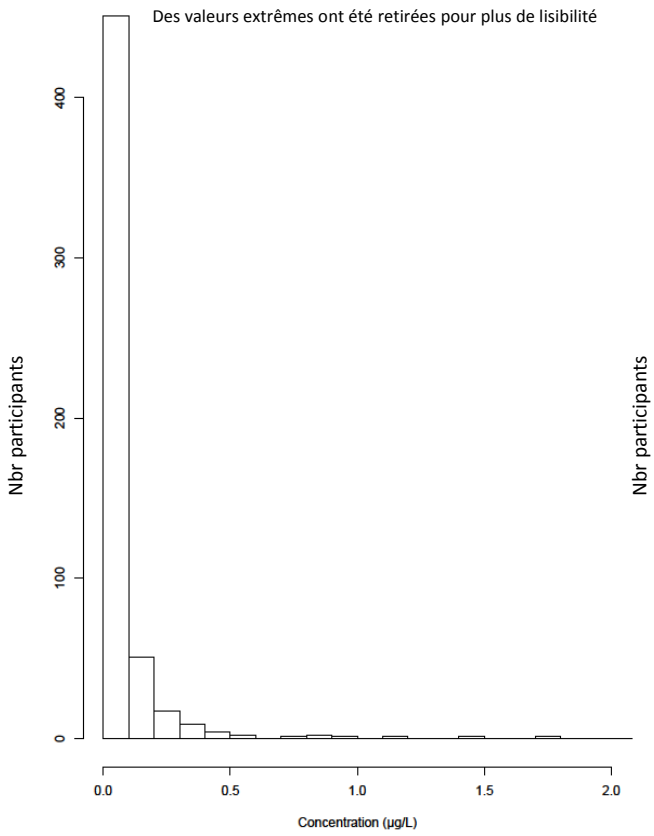
2-hydroxyphénanthrène



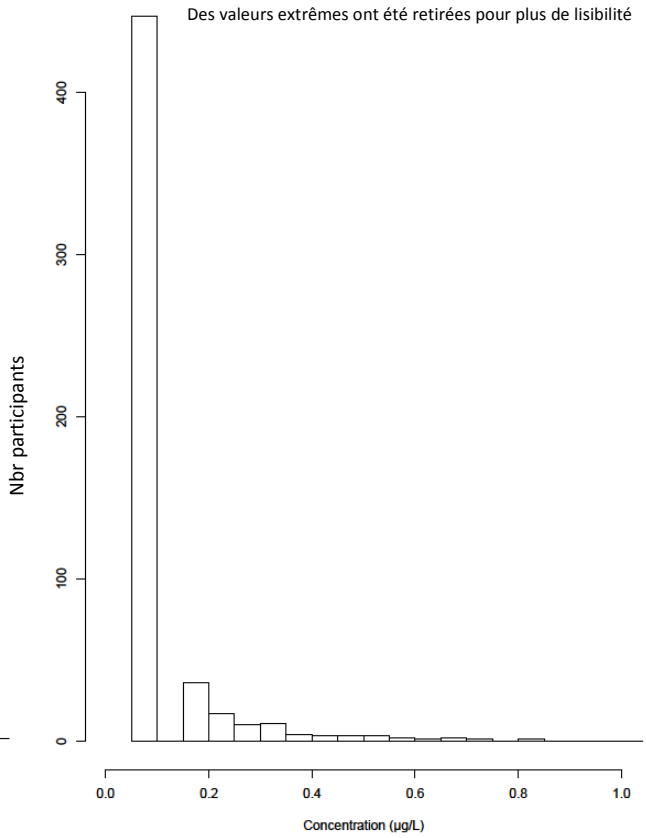
3-hydroxyphénanthrène



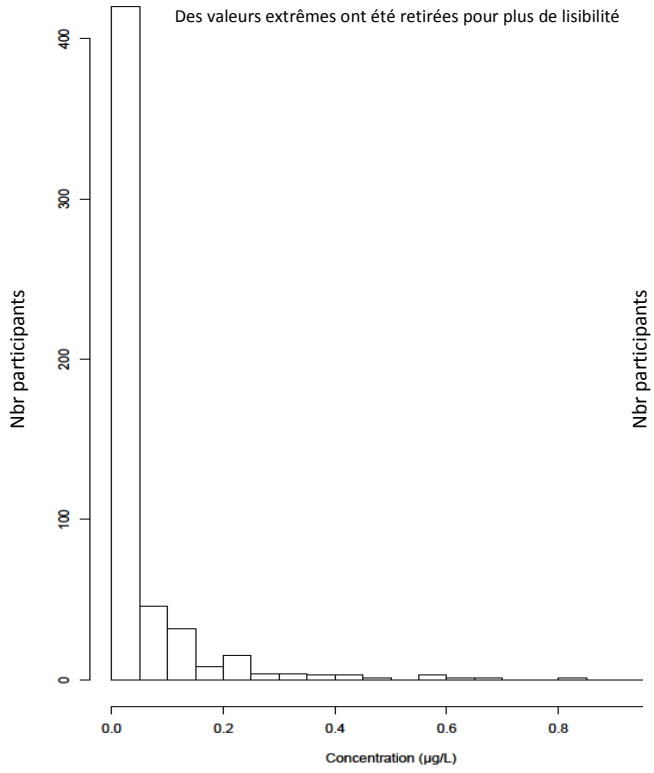
4-hydroxyphénanthrène



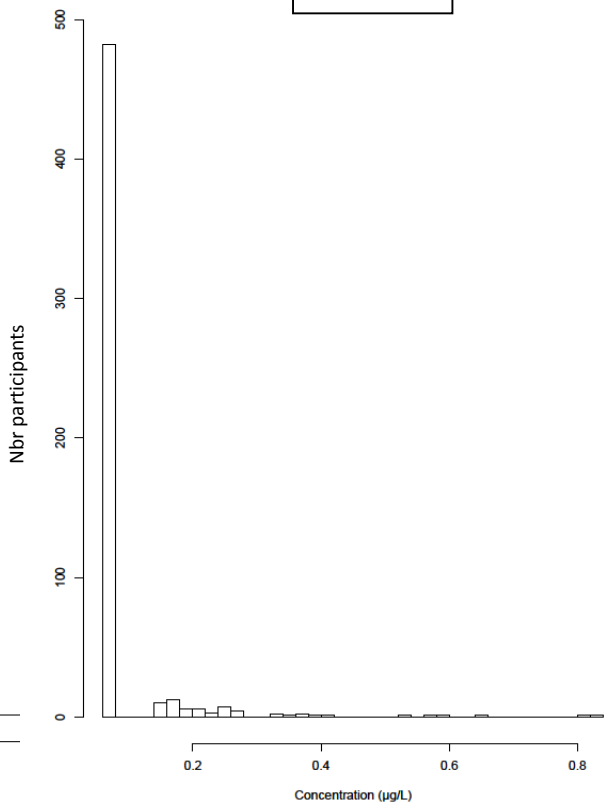
1-hydroxypyrène



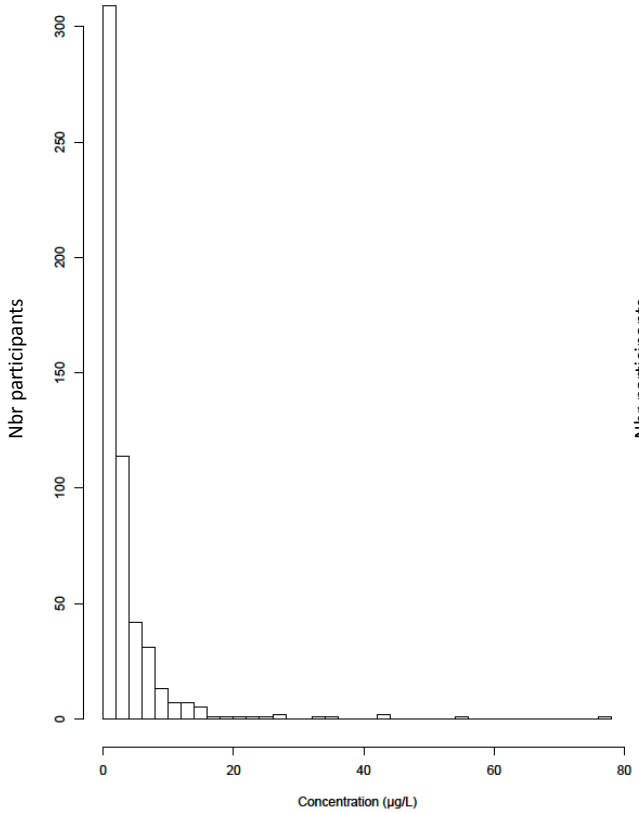
Glyphosate



AMPA

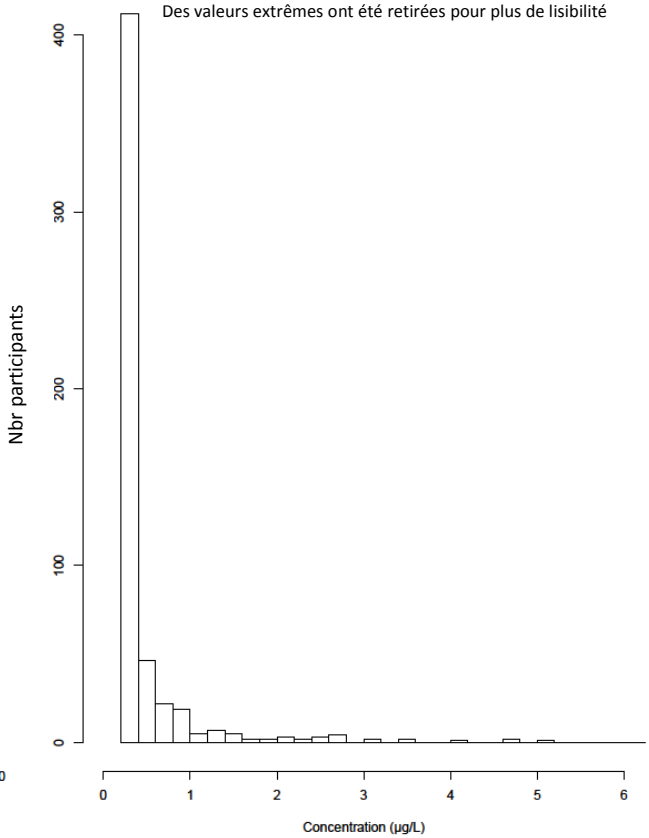


DEP

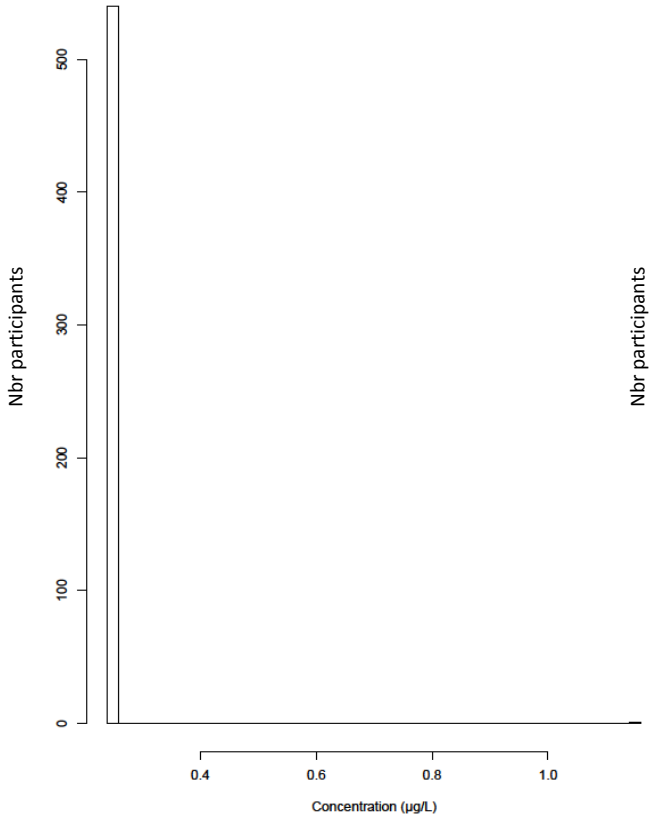


DETP

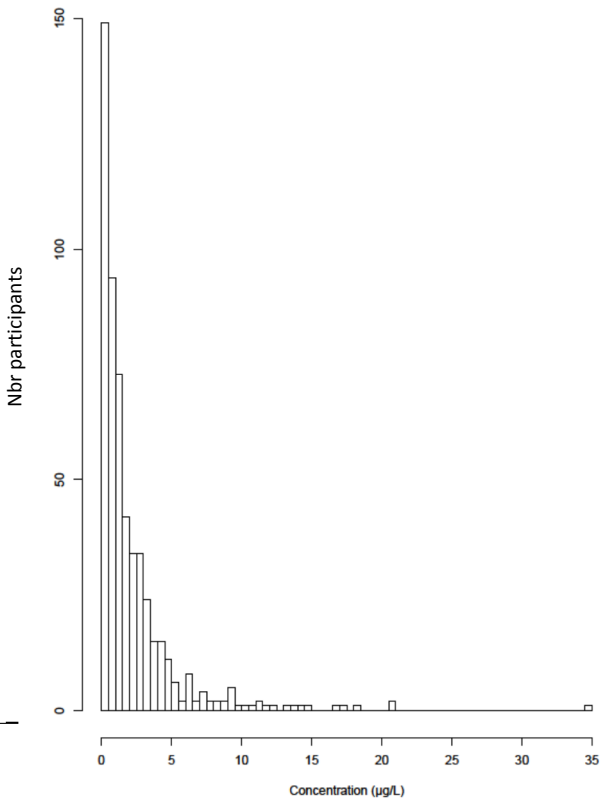
Des valeurs extrêmes ont été retirées pour plus de lisibilité



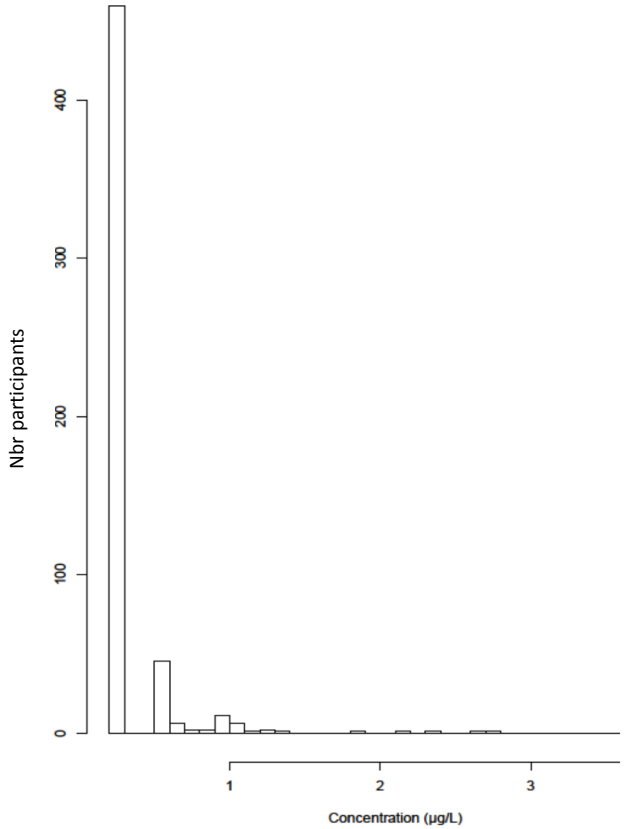
DEDTP



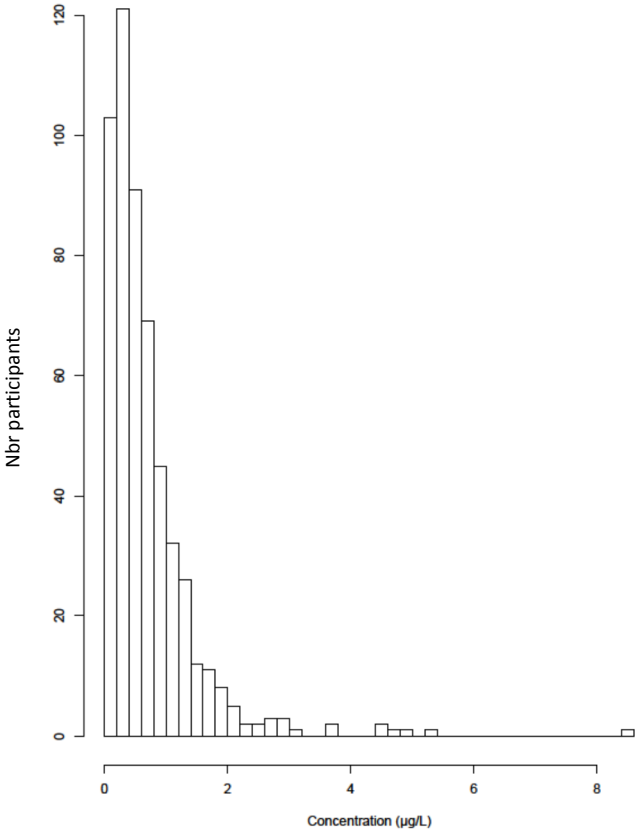
DMTP



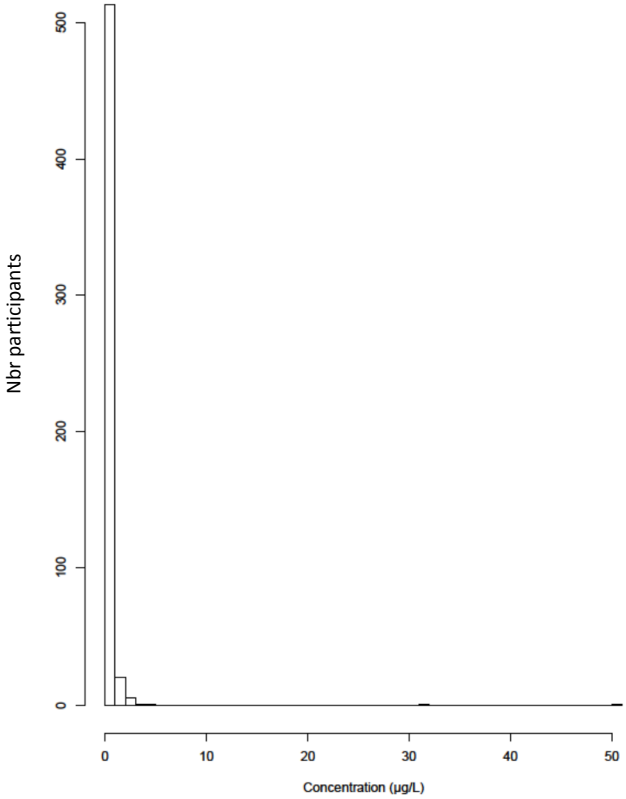
DMDTP



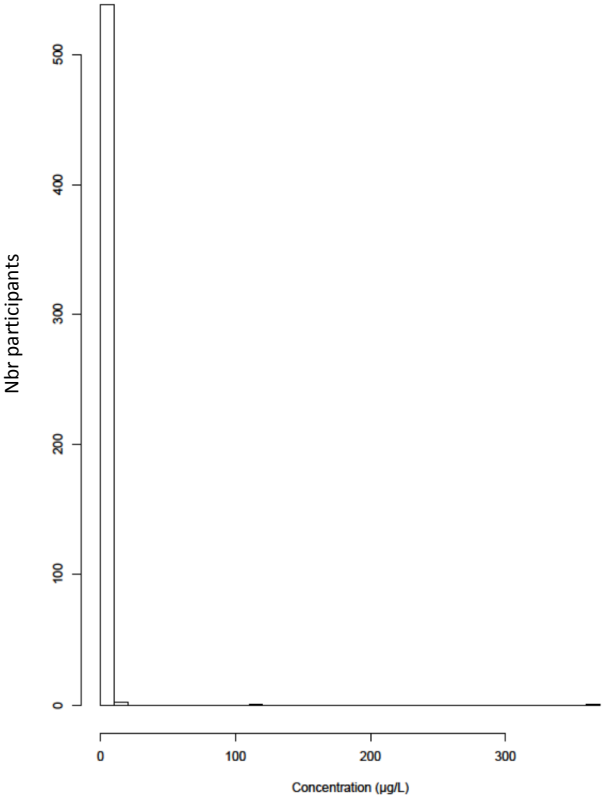
TCPY



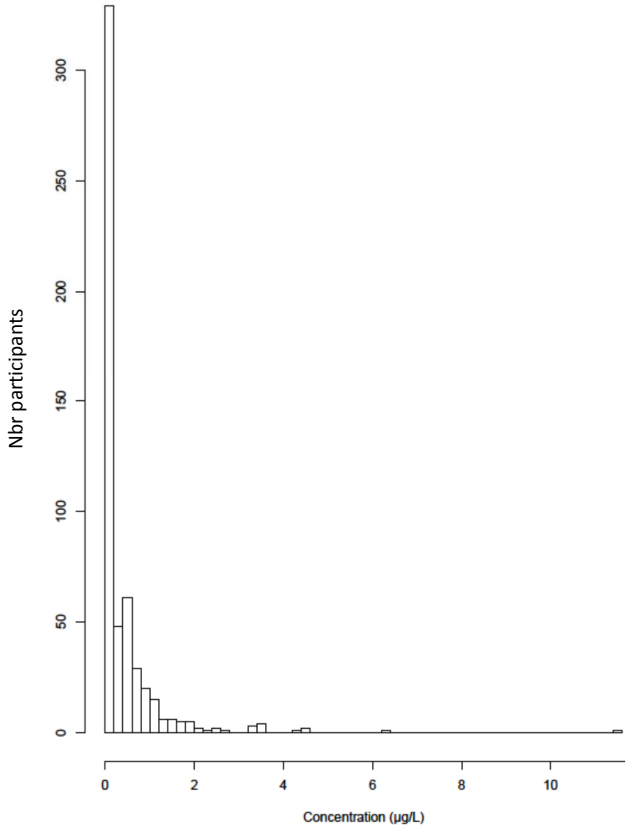
c-DCCA



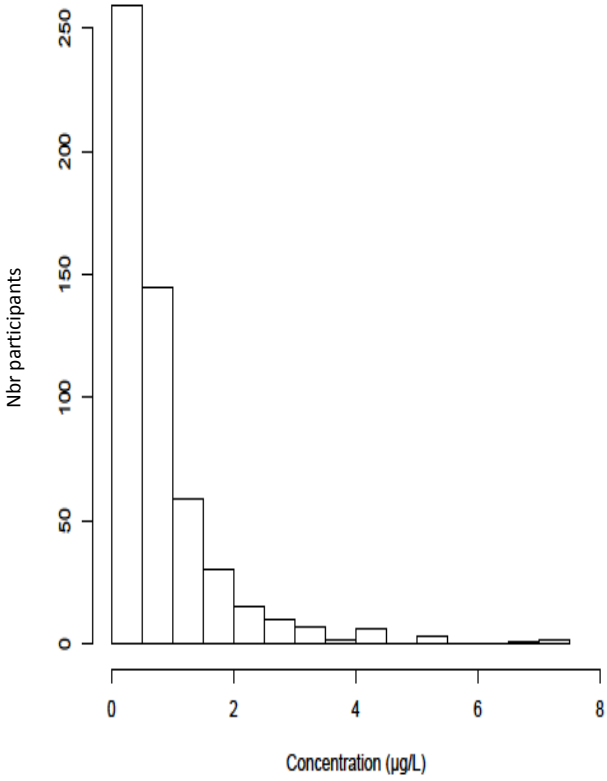
t-DCCA



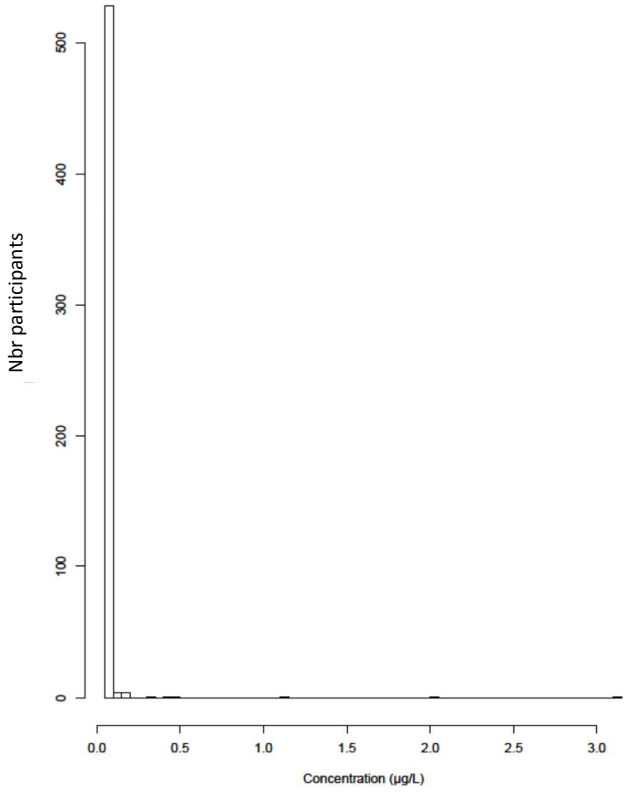
DBCA



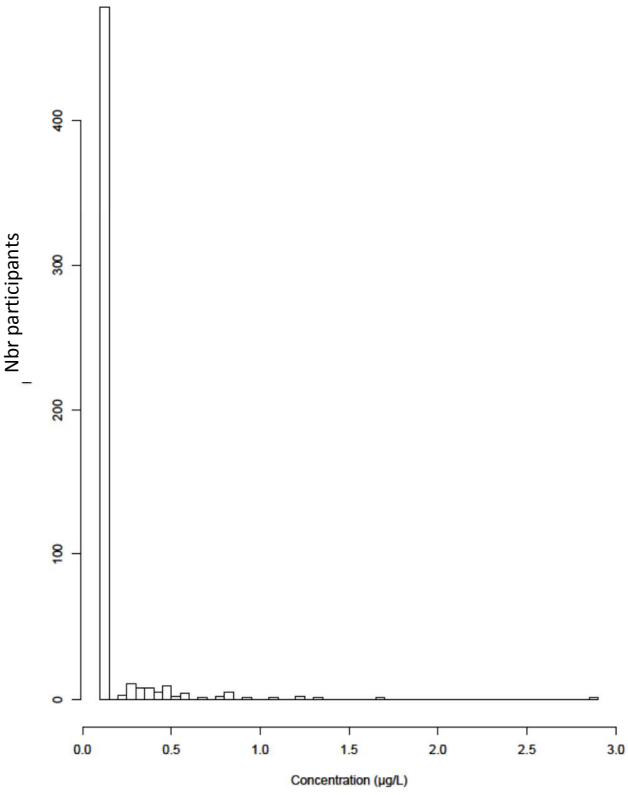
3-PBA



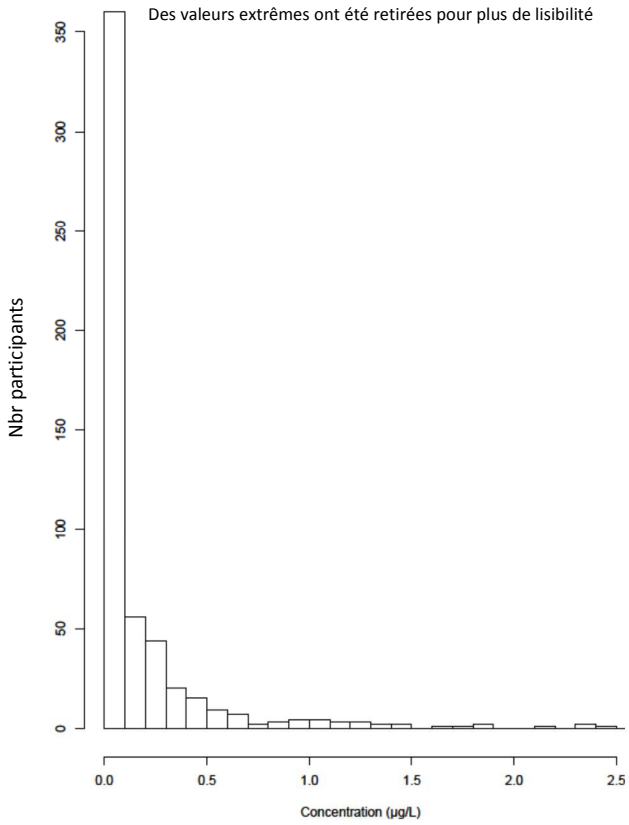
4-F-3-PBA



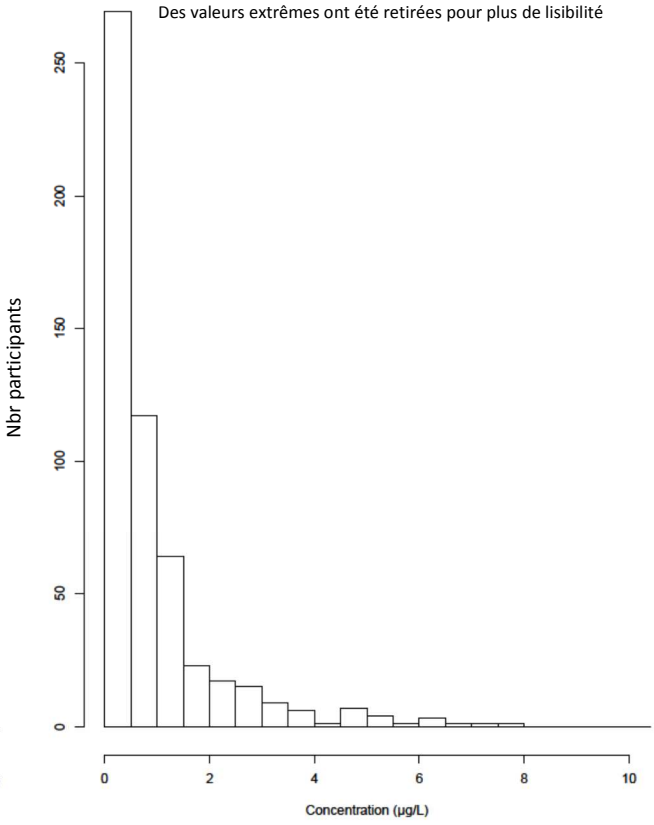
Hg



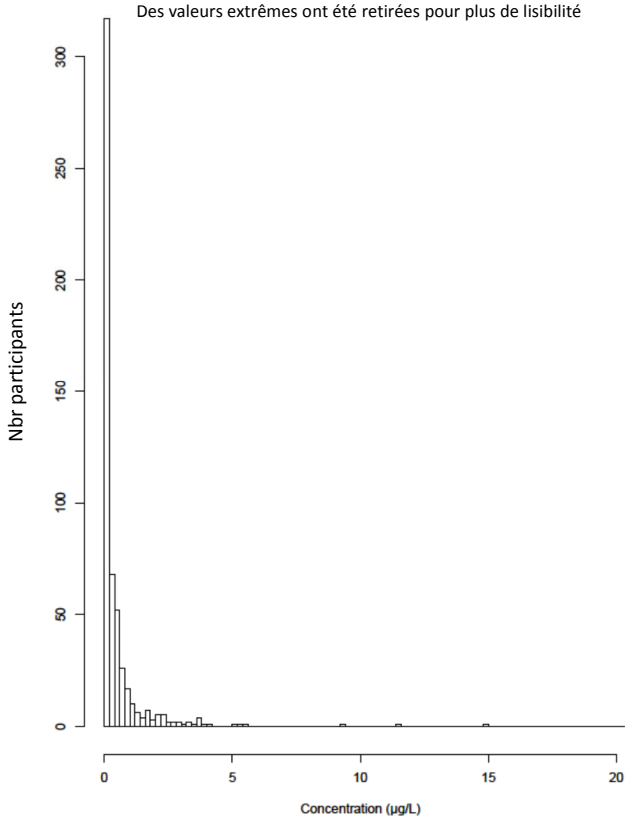
BPF



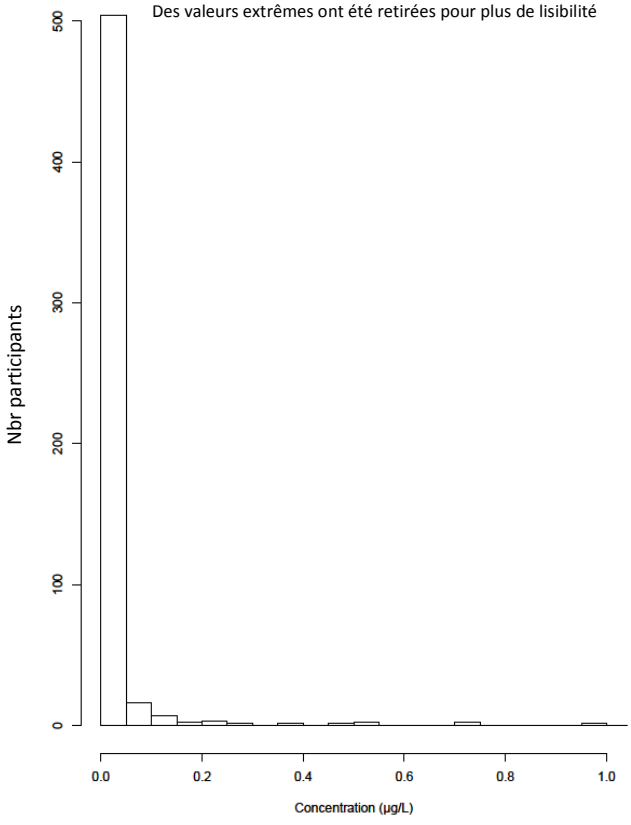
BPA



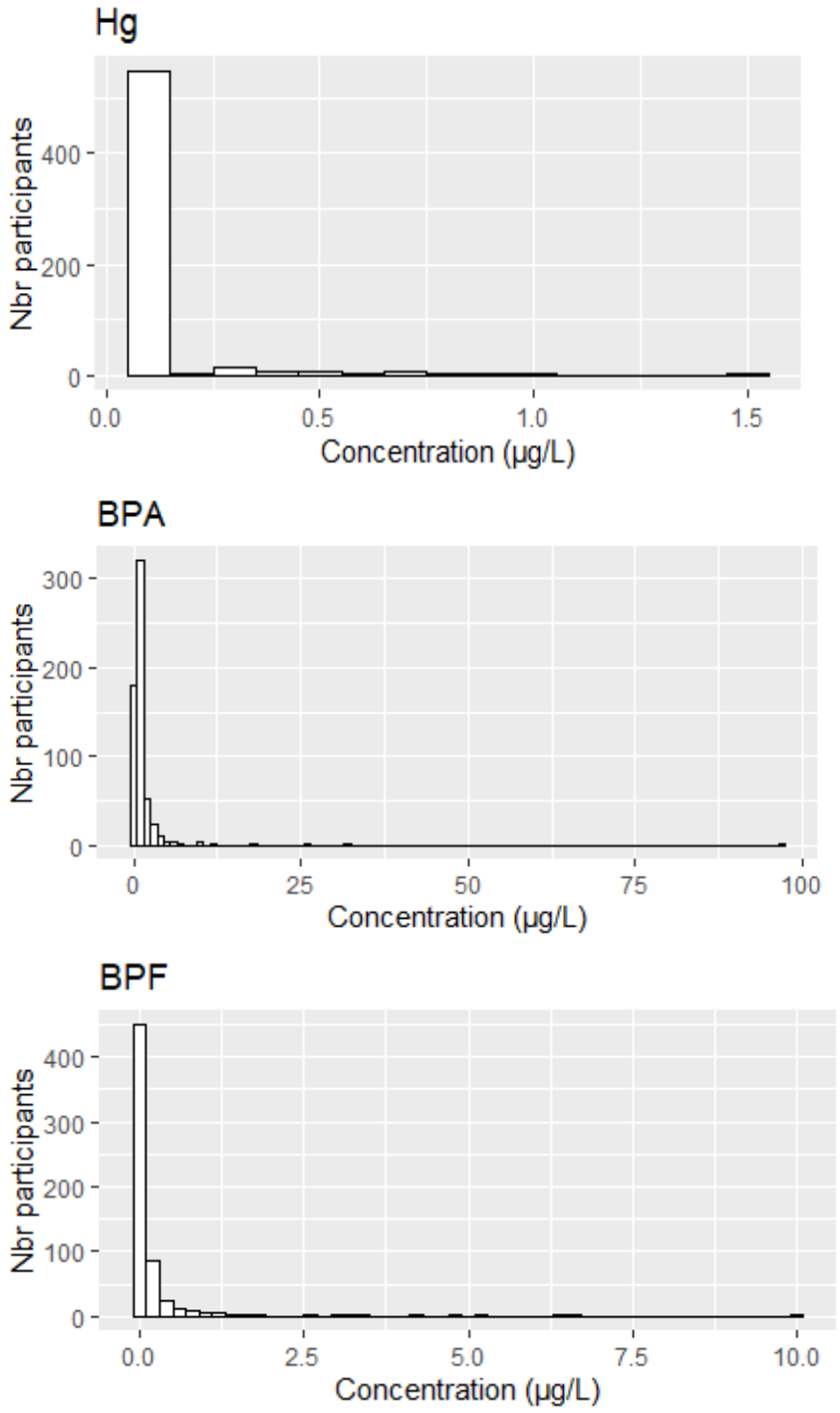
BPS

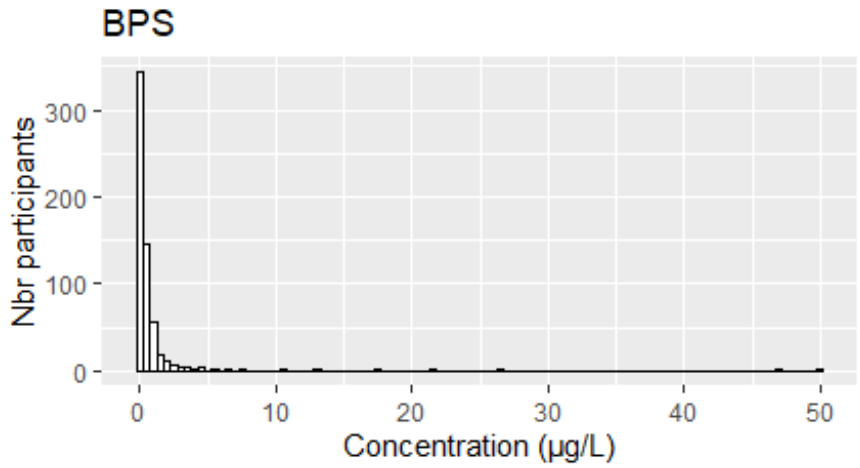


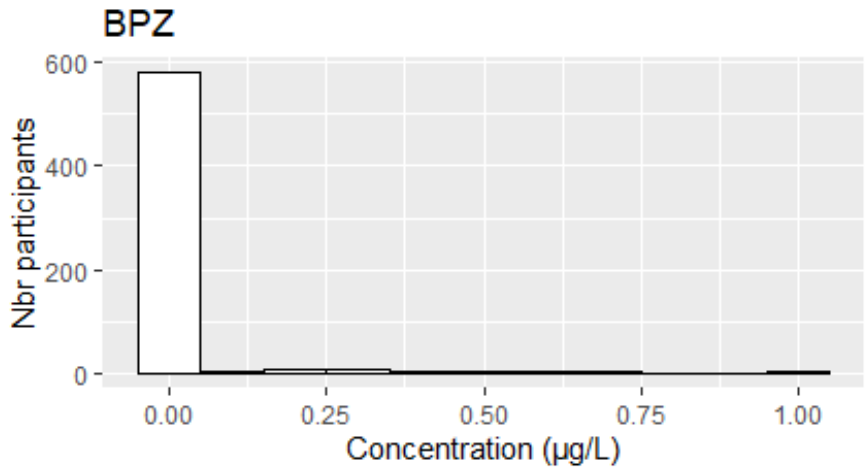
BPZ

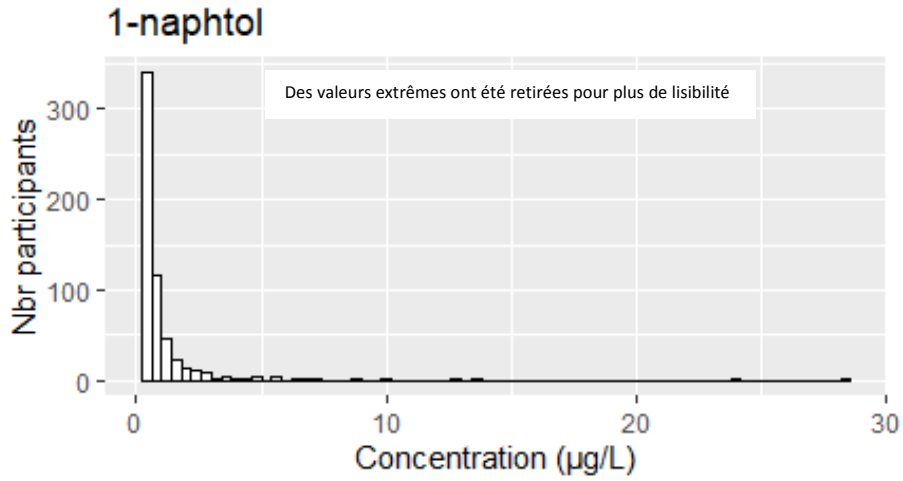


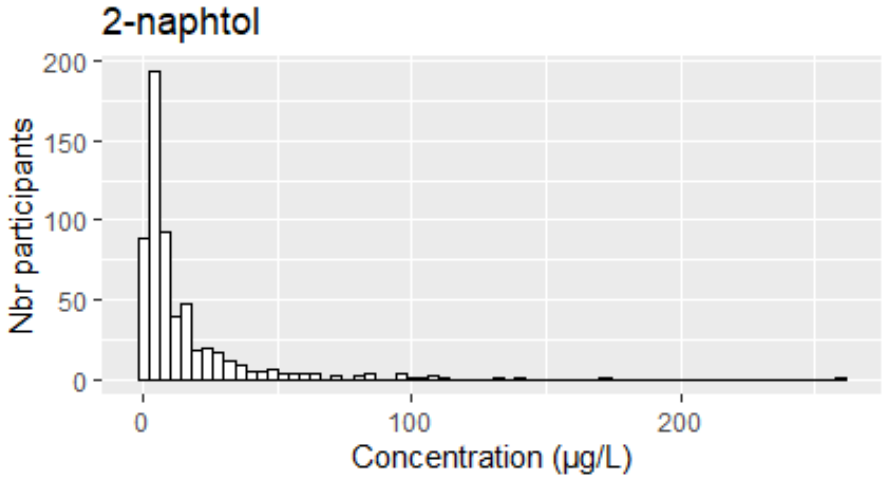
Annexe 2 : Histogrammes des distributions de valeurs mesurées dans la population étudié lors de la phase2 (enfants 3-11 ans)

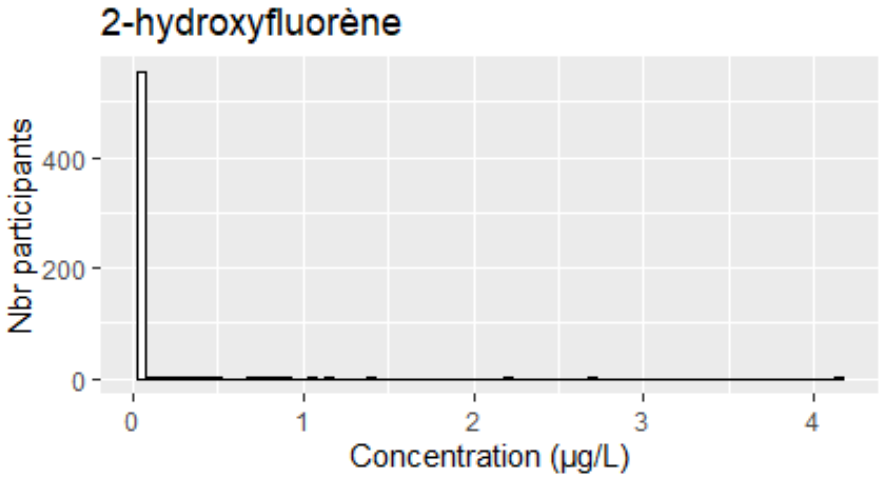


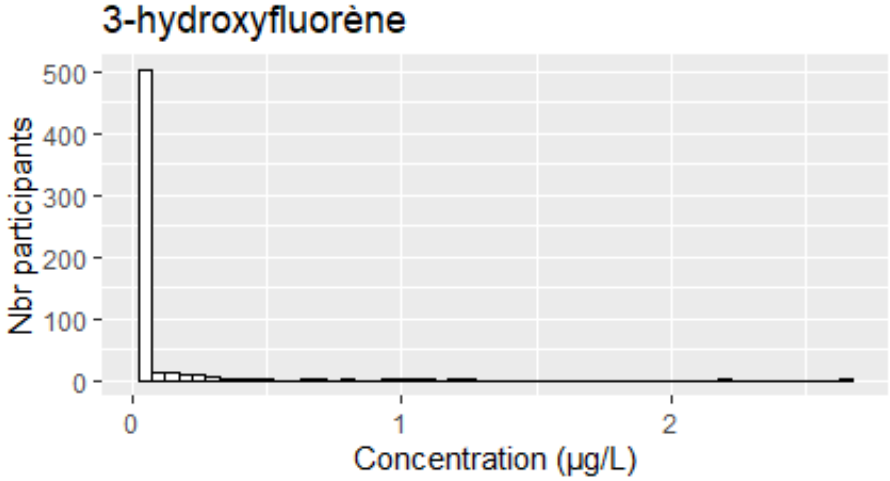

BPS
Nbr participants
300
200
100
0
0
10
20
30
40
50
Concentration (µg/L)

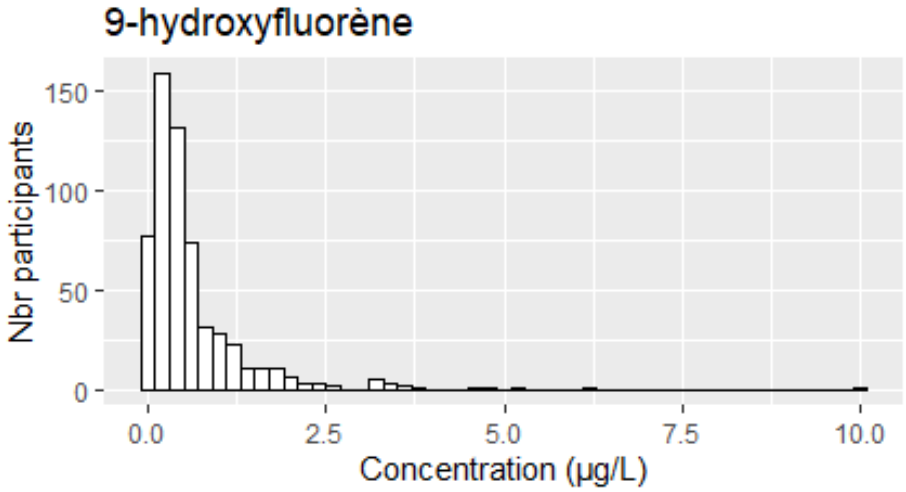

BPZ
Nbr participants
600
400
200
0
0.00
0.25
0.50
0.75
1.00
Concentration (µg/L)

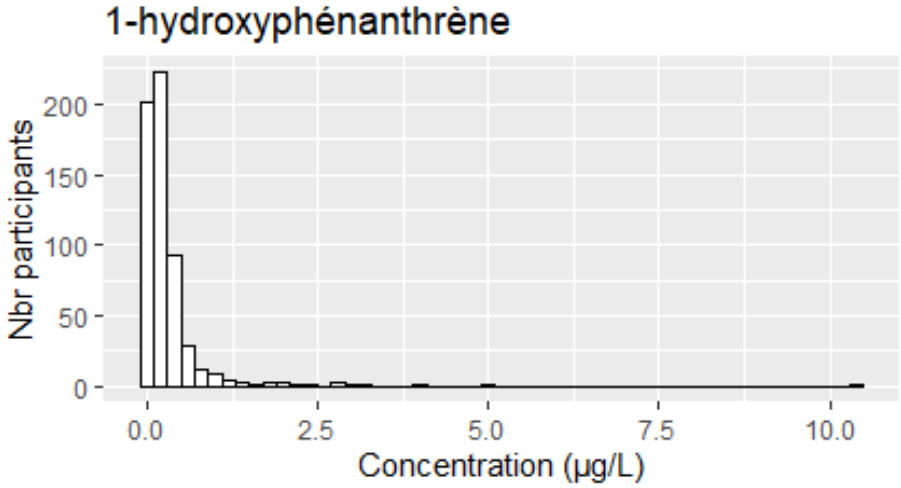

1-naphtol
Des valeurs extrêmes ont été retirées pour plus de lisibilité
Nbr participants
300
200
100
0
0
10
20
30
Concentration (µg/L)

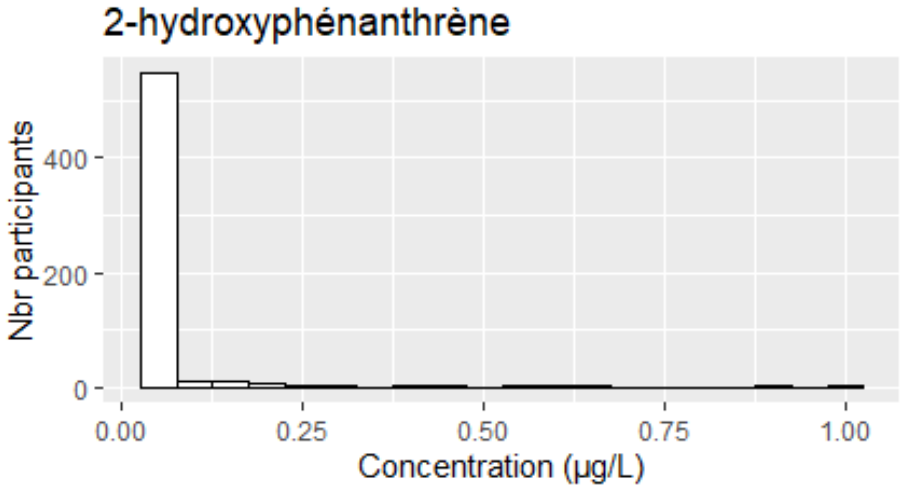

2-naphtol
Nbr participants
200
150
100
50
0
0
100
200
Concentration (µg/L)

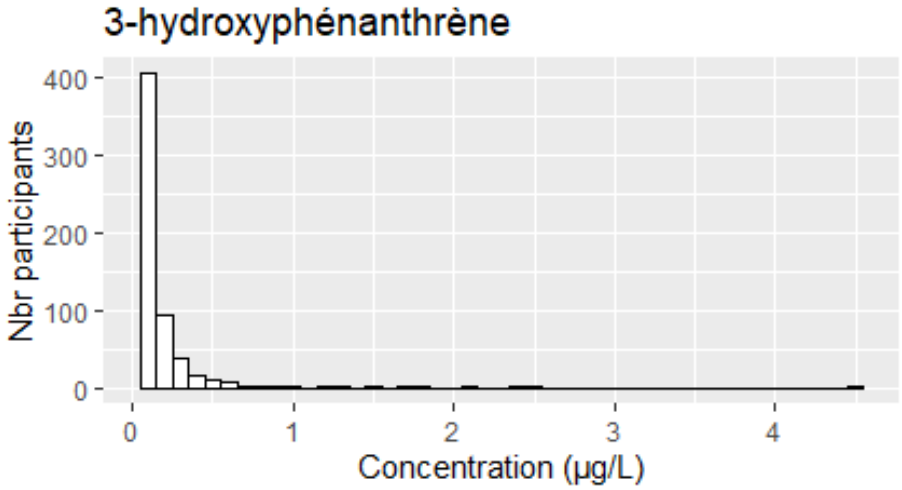

2-hydroxyfluorène
Nbr participants
400
200
0
0
1
2
3
4
Concentration (µg/L)

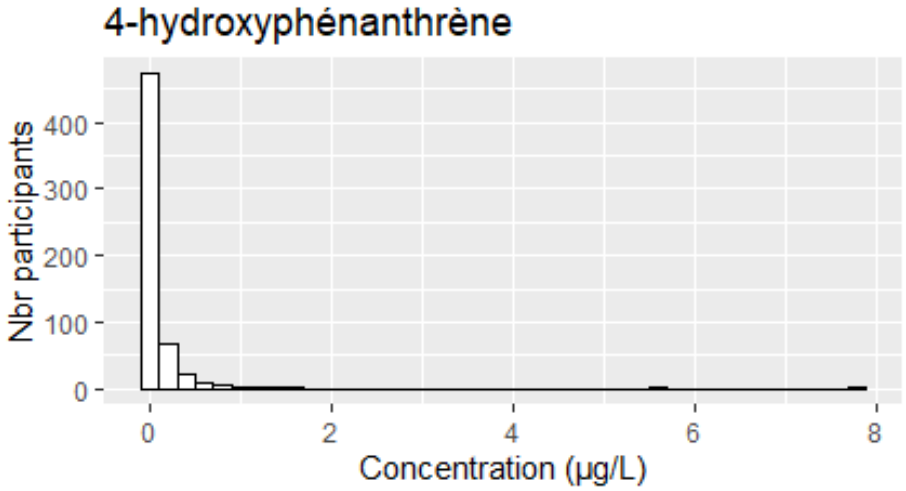

3-hydroxyfluorène
Nbr participants
500
400
300
200
100
0
0
1
2
Concentration (µg/L)

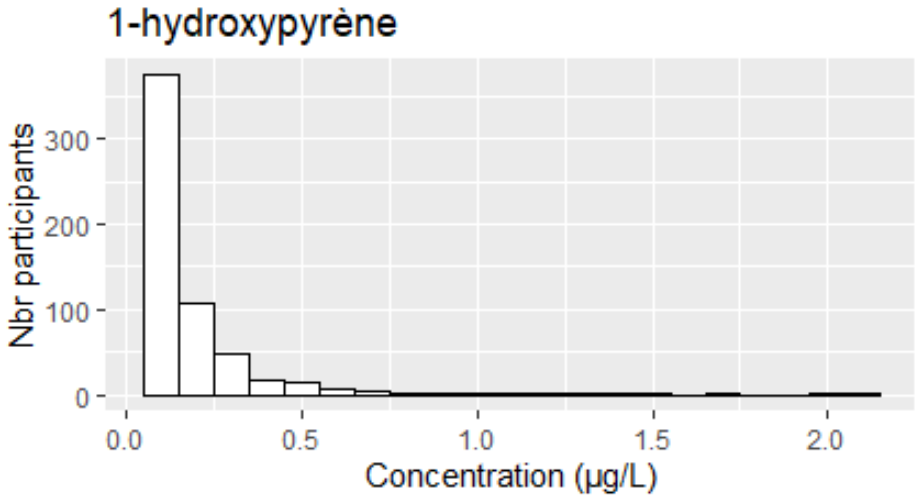

9-hydroxyfluorène
Nbr participants
150
100
50
0
0.0
2.5
5.0
7.5
10.0
Concentration (µg/L)

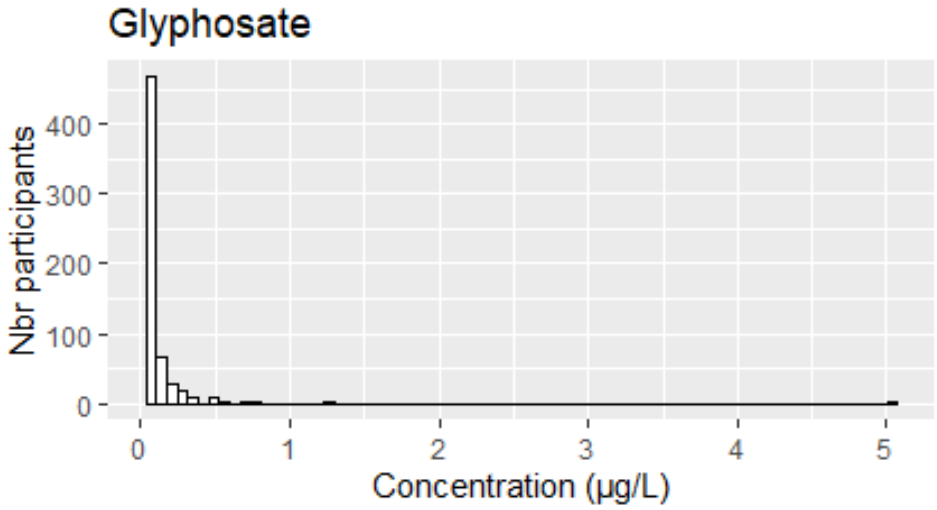

1-hydroxyphénanthrène
Nbr participants
200
150
100
50
0
0.0
2.5
5.0
7.5
10.0
Concentration (µg/L)

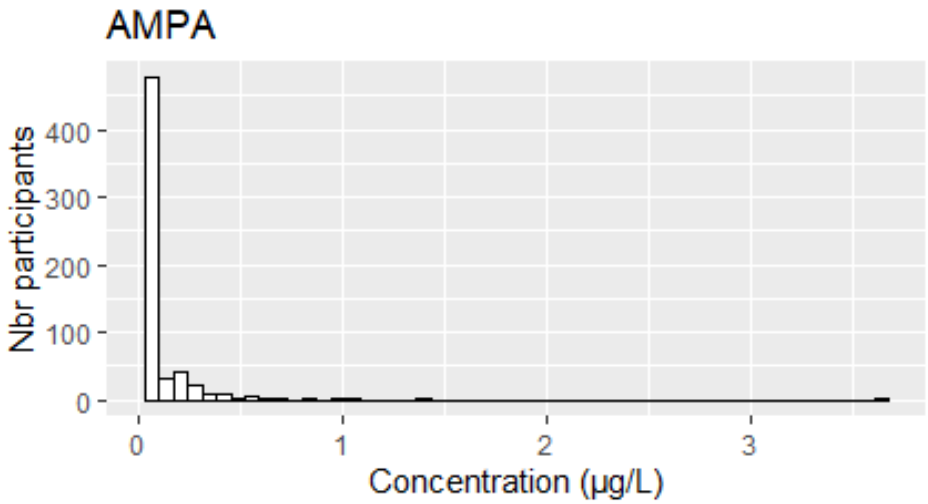

2-hydroxyphénanthrène
Nbr participants
400
200
0
0.00
0.25
0.50
0.75
1.00
Concentration (µg/L)

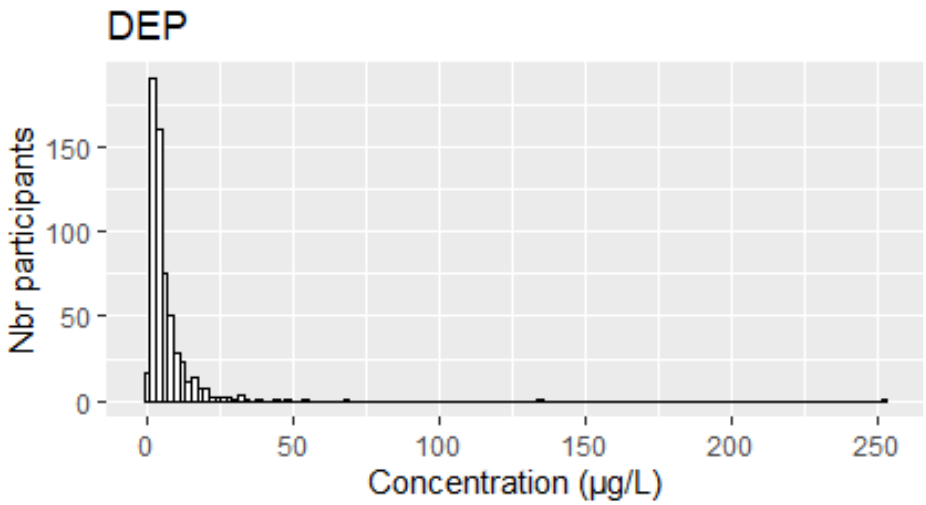

3-hydroxyphénanthrène
Nbr participants
400
300
200
100
0
0
1
2
3
4
Concentration (µg/L)

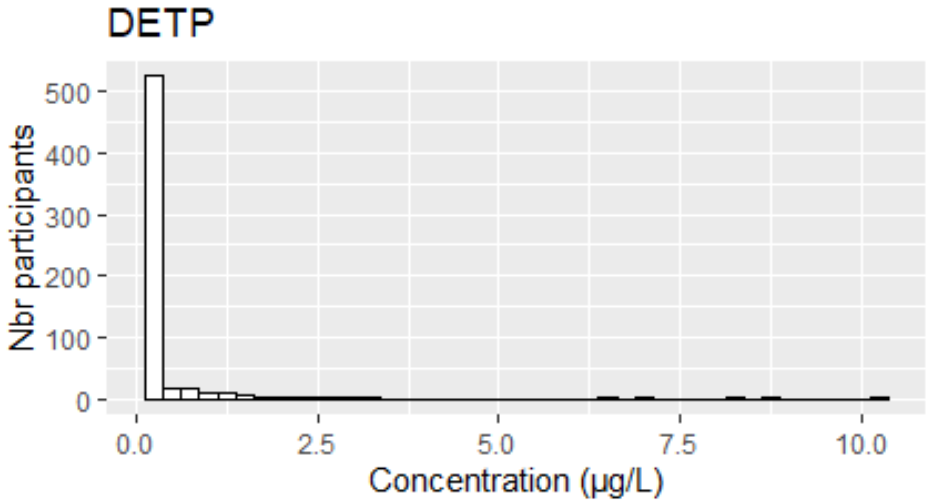

4-hydroxyphénanthrène
Nbr participants
400
300
200
100
0
0
2
4
6
8
Concentration (µg/L)

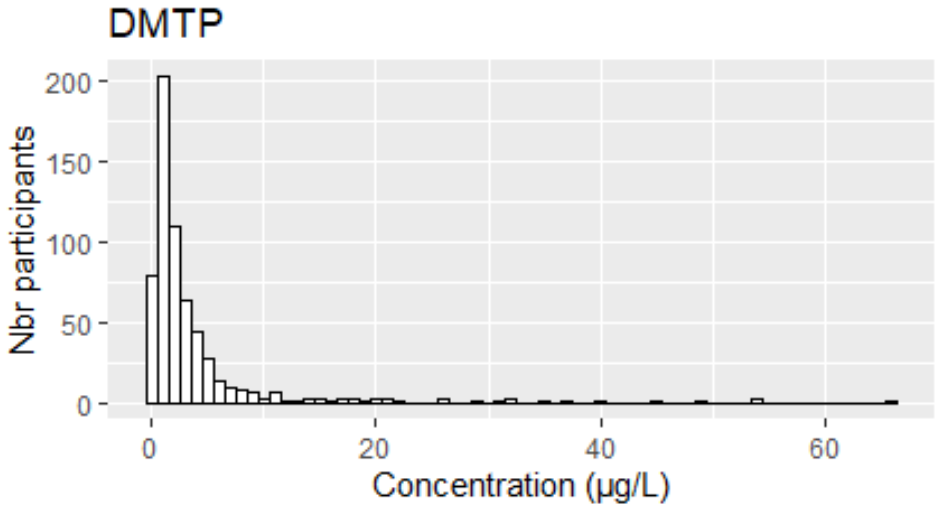

1-hydroxypyrène
Nbr participants
300
200
100
0
0.0
0.5
1.0
1.5
2.0
Concentration (µg/L)

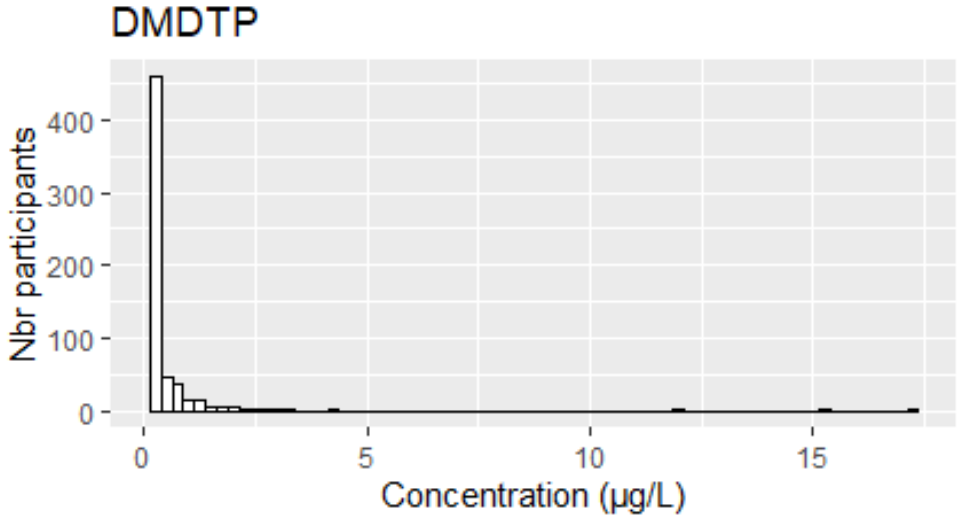

Glyphosate
Nbr participants
400
300
200
100
0
0
1
2
3
4
5
Concentration (µg/L)

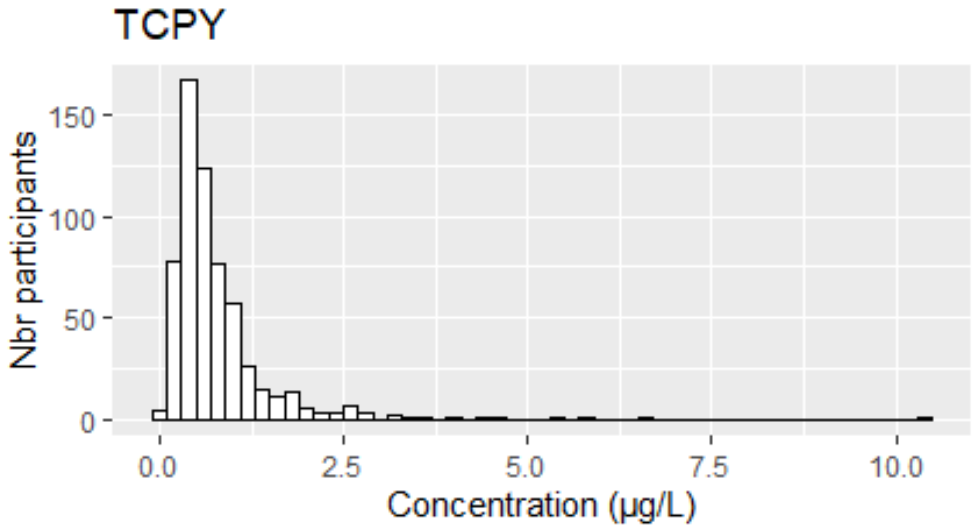

AMPA
Nbr participants
400
300
200
100
0
0
1
2
3
Concentration (µg/L)

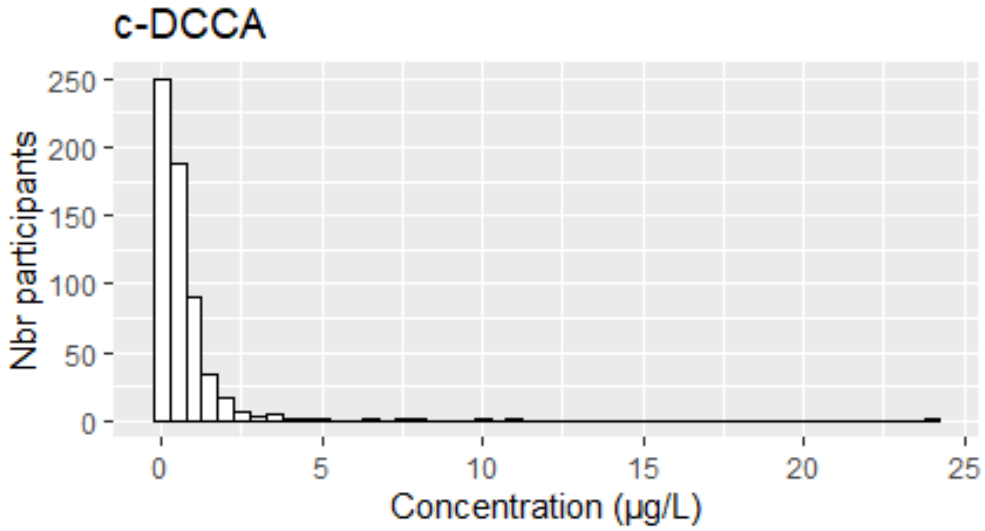

DEP
Nbr participants
150
100
50
0
0
50
100
150
200
250
Concentration (µg/L)

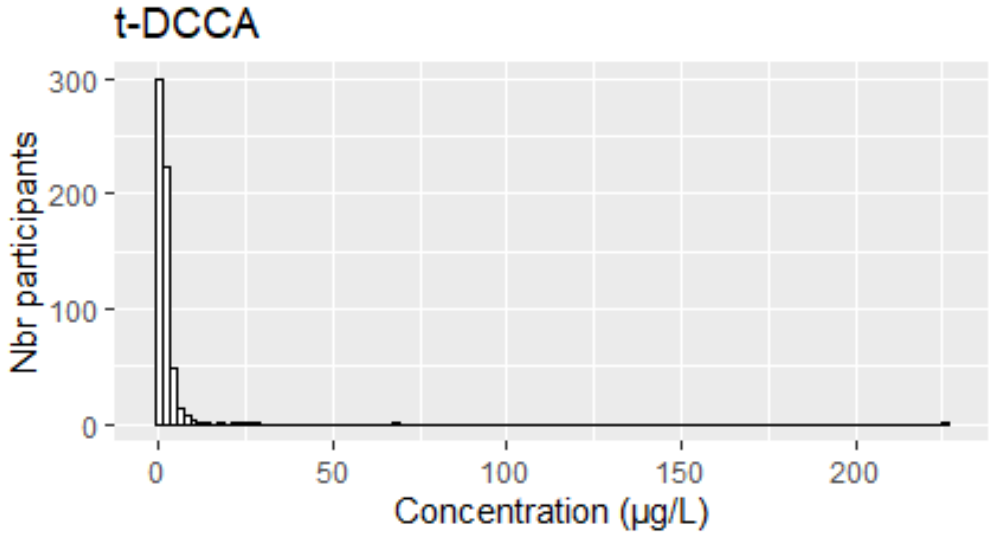

DETP
Nbr participants
500
400
300
200
100
0
0.0
2.5
5.0
7.5
10.0
Concentration (µg/L)

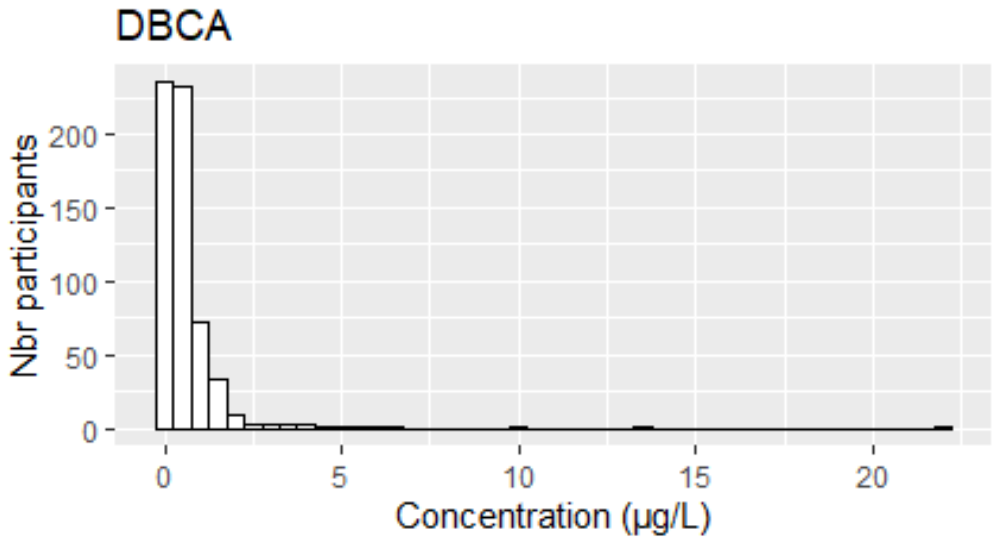

DMTP
Nbr participants
200
150
100
50
0
0
20
40
60
Concentration (µg/L)

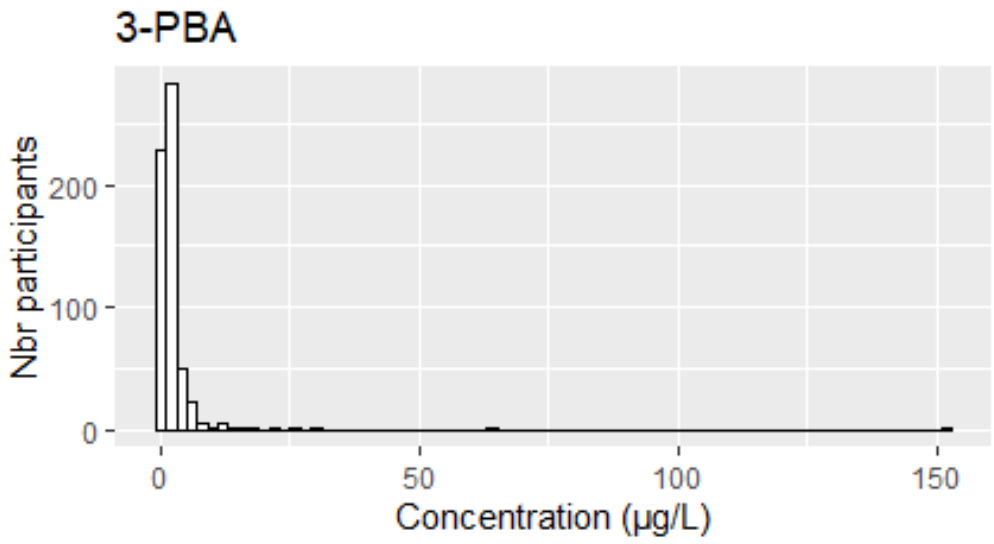

DMDTP
Nbr participants
400
300
200
100
0
0
5
10
15
Concentration (µg/L)

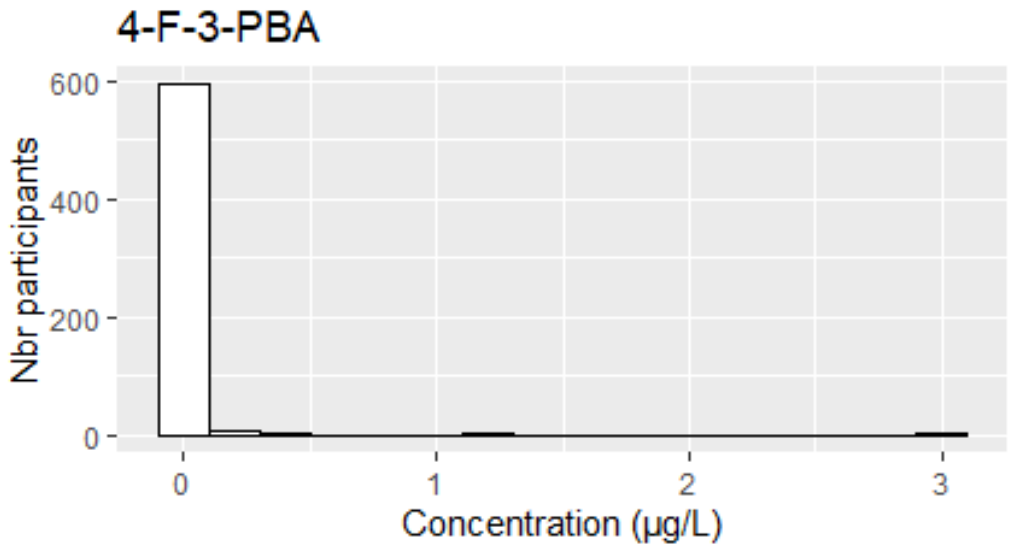

TCPY
Nbr participants
150
100
50
0
0.0
2.5
5.0
7.5
10.0
Concentration (µg/L)


c-DCCA
Nbr participants
250
200
150
100
50
0
0
5
10
15
20
25
Concentration (µg/L)


t-DCCA
Nbr participants
300
200
100
0
0
50
100
150
200
Concentration (µg/L)


DBCA
Nbr participants
200
150
100
50
0
0
5
10
15
20
Concentration (µg/L)


3-PBA
Nbr participants
200
100
0
0
50
100
150
Concentration (µg/L)


4-F-3-PBA
Nbr participants
600
400
200
0
0
1
2
3
Concentration (µg/L)

Annexe 3 : Statistiques descriptives pour les biomarqueurs urinaires mesurés lors de la phase 1 ajustés par rapport à la créatinine[1]

	N TOT	LOQ	N>LOQ	N<LOQ	Moyenne géométrique (µg/g creat)			P5	P10	P25	P50	P75	P90	P95	P95 µg/g creat	
		µg/l	%	%	Moyenne	CI 95% inf.	CI 95% sup	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	CI 95% inf.	CI 95% sup.
Hg																
Tous	537	0.25	11.4	88.6	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.42	0.60	0.57	0.78
Groupes d'âge																
Adolescents	280	0.25	8.9	91.1	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.38	0.36	0.74
Adultes	257	0.25	14.2	85.8	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.48	0.68	0.62	0.96
Amalgames																
Sans amalgame	350	0.25	8.3	91.7	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.47	0.46	0.89
Avec amalgame(s)	110	0.25	24.3	75.7	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.65	0.72	0.67	2.00
BISPHENOLS																
BPP																
Tous	537	0.09	0.7	99.3												
BPF																
Tous	537	0.07	40.0	60.0	0.08	0.073	0.089	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.18	0.42	0.68	0.64	1.10
BPA																
Tous	537	0.29	68.1	31.9	0.53	0.49	0.58	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.53	0.99	1.80	2.89	2.71	4.52
Genre																
Femmes	288	0.29	63.1	36.9	0.54	0.48	0.61	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.52	0.99	1.82	3.04	2.85	11.22
Hommes	249	0.29	74.0	26.0	0.51	0.45	0.58	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.54	0.97	1.70	2.70	2.34	4.20
BPS																
Tous	537	0.09	52.7	47.3	0.16	0.14	0.18	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.14	0.45	1.12	2.01	1.79	3.19
Groupes d'âge																
Adolescents	280	0.09	59.2	40.8	0.17	0.14	0.20	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.15	0.48	1.11	1.94	1.46	3.60
Adultes	257	0.09	45.6	54.4	0.16	0.14	0.19	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.40	1.12	2.06	1.63	4.82
BPZ																
Tous	537	0.06	7.2	92.8	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.16	<LOQ	0.24
Groupes d'âge																
Adolescents	280	0.06	9.6	90.4	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.17	0.13	0.48
Adultes	257	0.06	4.6	95.4	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.14	<LOQ	0.24
HYDROCARBURES AROMATIQUES POLYCYCLIQUES (HAPs)																
1-naphtol																
Tous	537	0.40	56.7	43.3	0.58	0.52	0.65	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.48	0.93	2.54	9.00	7.05	14.82
Genre																
Femmes	288	0.40	49.1	50.9	0.60	0.51	0.70	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.92	1.95	6.44	5.01	31.55
Hommes	249	0.40	65.6	34.4	0.56	0.47	0.65	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.45	0.93	3.73	11.30	6.88	14.13
Statut tabagique																
Non-fumeurs	494	0.40	53.7	46.3	0.47	0.43	0.52	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.43	0.74	1.34	2.15	1.73	4.84
Fumeurs	43	0.40	93.0	7.0	6.17	4.41	8.63	<LOQ	1.20	3.96	7.82	13.65	19.96	23.20	19.73	31.55
2-naphtol																
Tous	537	0.40	96.5	3.5	4.18	3.83	4.55	0.83	1.15	1.98	4.17	8.74	16.48	20.90	20.37	34.17
Genre																
Femmes	288	0.40	95.9	4.1	4.51	4.01	5.07	1.01	1.32	2.14	4.35	9.72	18.04	22.79	21.42	47.21
Hommes	249	0.40	100.0	0.0	3.82	3.37	4.33	0.74	0.99	1.63	4.01	8.20	14.59	19.40	17.09	24.44

[1] Ont été exclus des statistiques descriptives les participants a-184, a-189, a-399, et a-572 en raison de leur créatinurie très faible (<0.1 g/L), et les participants a-370 et a-483 pour lesquels le résultat de créatinurie n'était pas disponible

Annexe 3 : Suite

	N TOT	LOQ	N>LOQ	N<LOQ	Moyenne géométrique (µg/g creat)			P5	P10	P25	P50	P75	P90	P95	P95 µg/g creat	
		µg/l	%	%	Moyenne	CI 95% inf.	CI 95% sup	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	CI 95% inf.	CI 95% sup.
Groupes d'âge																
Adolescents	280	0.40	97.9	2.1	4.25	3.79	4.77	1.03	1.26	2.14	4.18	8.26	15.00	20.69	18.48	32.35
Adultes	257	0.40	95.0	5.0	4.09	3.59	4.66	0.74	0.95	1.68	4.13	9.03	17.45	22.00	20.02	43.62
Statut tabagique																
Non-fumeurs	494	0.40	96.4	3.6	3.80	3.48	4.15	0.76	1.11	1.79	3.84	7.29	14.52	20.35	18.50	32.83
Fumeurs	43	0.40	100.0	0.0	12.17	10.03	14.77	4.20	4.61	9.11	13.80	18.10	23.95	29.35	21.99	49.89
2-hydroxyfluorène																
Tous	537	0.10	14.2	85.8	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.26	1.07	0.73	2.14
Genre																
Femmes	288	0.10	10.6	89.4	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.24	0.41	0.33	3.13
Hommes	249	0.10	18.4	81.6	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.36	1.37	0.64	2.14
Groupes d'âge																
Adolescents	280	0.10	11.0	89.0	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.15	0.28	0.21	0.53
Adultes	257	0.10	17.6	82.4	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.94	1.99	1.82	3.13
Statut tabagique																
Non-fumeurs	494	0.10	9.2	90.8	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.24	0.23	0.38
Fumeurs	43	0.10	72.1	27.9	0.63	0.39	1.01	<LOQ	<LOQ	<LOQ	1.25	2.12	2.73	3.03	2.62	4.86
3-hydroxyfluorène																
Tous	537	0.10	14.0	86.0	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.26	0.60	0.46	1.32
Groupes d'âge																
Adolescents	280	0.10	11.3	88.7	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.14	0.22	0.17	0.36
Adultes	257	0.10	16.9	83.1	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.61	1.19	1.03	2.39
Statut tabagique																
Non-fumeurs	494	0.10	8.2	91.8	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.24	0.21	0.36
Fumeurs	43	0.10	81.4	18.6	0.55	0.39	0.78	<LOQ	<LOQ	0.27	0.64	1.38	1.77	2.35	1.70	2.94
9-hydroxyfluorène																
Tous	537	0.10	49.2	50.8	0.14	0.13	0.16	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.30	0.64	1.01	0.89	1.56
1-hydroxyphénanthrène																
Tous	537	0.10	57.8	42.2	0.13	0.12	0.14	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.14	0.22	0.34	0.45	0.43	0.69
Statut tabagique																
Non-fumeurs	494	0.10	56.7	43.3	0.13	0.12	0.14	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.13	0.21	0.32	0.43	0.39	0.65
Fumeurs	43	0.10	72.1	27.9	0.20	0.15	0.25	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.22	0.34	0.49	0.80	0.45	1.08
2-hydroxyphénanthrène																
Tous	537	0.10	20.6	79.4	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.19	0.28	0.25	0.38
Genre																
Femmes	288	0.10	16.4	83.6	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.19	0.28	0.26	0.42
Hommes	249	0.10	25.6	74.4	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.10	0.17	0.24	0.20	0.38
Groupes d'âge																
Adolescents	280	0.10	14.2	85.8	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.13	0.17	0.15	0.31
Adultes	257	0.10	27.6	72.4	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.15	0.24	0.31	0.29	0.49
Statut tabagique																
Non-fumeurs	494	0.10	18.4	81.6	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.17	0.24	0.21	0.36
Fumeurs	43	0.10	46.5	53.5	0.10	0.08	0.14	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.22	0.30	0.37	0.29	0.49

Annexe 3 : Suite

	N TOT	LOQ	N>LOQ	N<LOQ	Moyenne géométrique (µg/g creat)			P5	P10	P25	P50	P75	P90	P95	P95 µg/g creat	
		µg/l	%	%	Moyenne	CI 95% inf.	CI 95% sup	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	CI 95% inf.	CI 95% sup.
3-hydroxyphénanthrène																
Tous	537	0.10	42.2	57.8	0.10	0.09	0.10	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.16	0.29	0.43	0.39	0.66
Genre																
Femmes	288	0.10	38.2	61.8	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.16	0.29	0.42	0.39	1.06
Hommes	249	0.10	46.8	53.2	0.09	0.08	0.10	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.15	0.28	0.44	0.36	0.73
Statut tabagique																
Non-fumeurs	494	0.10	39.1	60.9	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.15	0.23	0.34	0.29	0.49
Fumeurs	43	0.10	79.1	20.9	0.25	0.19	0.33	<LOQ	<LOQ	0.13	0.31	0.47	0.70	1.05	0.57	1.31
4-hydroxyphénanthrène																
Tous	537	0.10	16.8	83.2	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.21	0.30	0.28	0.43
1-hydroxypyrène																
Tous	537	0.15	17.7	82.3	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.26	0.36	0.35	0.52
Statut tabagique																
Non-fumeurs	494	0.15	14.0	86.0	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.24	0.30	0.29	0.45
Fumeurs	43	0.15	60.5	39.5	0.19	0.15	0.24	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.19	0.31	0.43	0.55	0.41	1.79
GLYPHOSATE ET MÉTABOLITE																
Glyphosate																
Tous	537	0.08	22.7	77.3	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.15	0.22	0.20	0.29
Genre																
Femmes	288	0.08	15.7	84.3	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.16	0.24	0.22	0.36
Hommes	249	0.08	30.8	69.2	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.10	0.13	0.18	0.14	0.26
Groupes d'âge																
Adolescents	280	0.08	27.3	72.7	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.12	0.21	0.15	0.26
Adultes	257	0.08	17.6	82.4	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.16	0.24	0.20	0.36
Acide aminométhylphosphonique (AMPA)																
Tous	537	0.15	11.2	88.8	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.23	0.30	0.29	0.44
PESTICIDES ORGANOPHOSPHORES																
Diéthylphosphate (DEP)																
Tous	535	0.50	79.5	20.5	1.54	1.41	1.68	<LOQ	<LOQ	0.81	1.69	2.97	5.44	7.93	7.09	14.80
Groupes d'âge																
Adolescents	279	0.50	90.0	10.0	1.84	1.65	2.06	<LOQ	0.57	1.03	1.87	3.27	5.83	8.13	6.85	19.27
Adultes	256	0.50	68.1	31.9	1.27	1.10	1.45	<LOQ	<LOQ	<LOQ	1.40	2.60	4.54	7.28	6.55	22.48
Diéthylthiophosphate (DETP)																
Tous	535	0.50	18.9	81.1	<0.50	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	1.00	1.68	1.50	3.32
Diéthyldithiophosphate (DEDTP)																
Tous	535	0.50	0.2	99.8												
Diméthylthiophosphate (DMTP)																
Tous	535	0.50	72.6	27.4	1.13	1.03	1.23	<LOQ	<LOQ	<LOQ	1.18	2.23	4.46	6.00	5.73	8.50
Groupes d'âge																
Adolescents	279	0.50	81.5	18.5	1.25	1.11	1.41	<LOQ	<LOQ	0.63	1.38	2.31	4.88	6.37	6.38	5.87
Adultes	256	0.50	63.1	36.9	1.01	0.88	1.15	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.98	2.12	4.28	5.27	4.79	15.93

Annexe 3 : Suite

	N TOT	LOQ	N>LOQ	N<LOQ	Moyenne géométrique (µg/g creat)			P5	P10	P25	P50	P75	P90	P95	P95 µg/g creat	
		µg/l	%	%	Moyenne	CI 95% inf.	CI 95% sup	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	CI 95% inf.	CI 95% sup.
Diméthyldithiophosphate (DMDTP)																
Tous	535	0.50	8.9	91.1	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	1.21	1.19	1.79
Groupes d'âge																
Adolescents	279	0.50	9.3	90.7	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	1.20	0.86	1.79
Adultes	256	0.50	8.5	91.5	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	1.22	1.19	3.96
Trichloropyridinol (TCPY)																
Tous	536	0.08	93.5	6.5	0.45	0.42	0.48	<LOQ	0.18	0.29	0.44	0.72	1.11	1.59	1.54	2.39
Genre																
Femmes	287	0.08	92.1	7.9	0.45	0.41	0.49	<LOQ	0.19	0.29	0.44	0.71	1.13	1.79	1.54	4.81
Hommes	249	0.08	95.2	4.8	0.55	0.49	0.62	0.12	0.18	0.29	0.44	0.73	1.09	1.58	1.33	1.98
Groupes d'âge																
Adolescents	279	0.08	94.7	5.3	0.43	0.40	0.47	<LOQ	0.21	0.30	0.42	0.66	0.94	1.38	1.09	1.96
Adultes	257	0.08	92.3	7.7	0.47	0.42	0.52	<LOQ	0.16	0.27	0.48	0.82	1.32	1.88	1.59	3.11
PESTICIDES PYRETHRINOIDES																
c-DCCA																
Tous	542	0.20	38.0	62.0	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.33	0.60	0.77	0.75	1.25
Groupes d'âge																
Adolescents	281	0.20	42.3	57.7	0.18	0.16	0.20	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.30	0.58	0.75	0.68	0.97
Adultes	261	0.20	33.3	66.7	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.35	0.60	0.81	0.71	2.15
t-DCCA																
Tous	542	0.15	72.3	27.7	0.35	0.32	0.39	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.36	0.68	1.31	1.83	1.65	2.62
Genre																
Femmes	292	0.15	67.5	32.5	0.36	0.31	0.41	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.36	0.68	1.39	1.99	1.65	13.07
Hommes	250	0.15	78.0	22.0	0.34	0.30	0.39	<LOQ	<LOQ	0.18	0.36	0.68	1.30	1.73	1.52	1.97
Groupes d'âge																
Adolescents	281	0.15	77.2	22.8	0.37	0.32	0.43	<LOQ	<LOQ	0.18	0.39	0.75	1.44	1.83	1.59	2.70
Adultes	261	0.15	67.0	33.0	0.33	0.29	0.37	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.31	0.64	1.11	1.65	1.57	4.66
DBCA																
Tous	542	0.30	39.3	60.7	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.47	0.77	1.23	1.09	1.96
Genre																
Femmes	292	0.30	32.2	67.8	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.48	0.80	1.24	1.00	2.97
Hommes	250	0.30	47.6	52.4	0.26	0.23	0.29	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.45	0.77	1.16	1.06	1.79
Groupes d'âge																
Adolescents	281	0.30	48.0	52.0	0.28	0.26	0.32	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.49	0.90	1.67	1.27	2.20
Adultes	261	0.30	29.9	70.1	<0.30	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.45	0.67	0.88	0.80	2.44
3-PBA																
Tous	542	0.09	93.4	6.6	0.49	0.45	0.53	<LOQ	0.16	0.29	0.48	0.82	1.38	1.84	1.73	2.79
Genre																
Femmes	292	0.09	91.8	8.2	0.51	0.46	0.57	<LOQ	0.17	0.32	0.49	0.80	1.46	1.92	1.73	14.62
Hommes	250	0.09	95.2	4.8	0.47	0.42	0.52	0.11	0.15	0.28	0.48	0.84	1.33	1.78	1.45	2.10
Groupes d'âge																
Adolescents	281	0.09	97.5	2.5	0.56	0.50	0.62	0.13	0.20	0.34	0.56	0.93	1.52	1.93	1.78	2.41
Adultes	261	0.09	88.9	11.1	0.42	0.38	0.47	<LOQ	<LOQ	0.26	0.42	0.71	1.09	1.60	1.38	3.48
4-F-3-PBA																
Tous	542	0.11	2.4	97.6												

Annexe 4 : Statistiques descriptives pour les biomarqueurs urinaires mesurés lors de la phase 2 ajustés par rapport à la créatinine[2]

	N TOT	LOQ	N>LOQ	N<LOQ	Moyenne géométrique (µg/g cre			P5	P10	P25	P50	P75	P90	P95	P95	
		µg/l	%	%	Moyenne	CI 95% inf.	CI 95% sup.	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	CI 95% inf.	CI 95% sup.
Hg																
Tous	581	0.25	8.1	91.9	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.46	0.34	0.53
Consommation de poisson dans les 4 derniers jours																
Pas de consommation	327	0.25	5.7	94.3	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.40	<LOQ	0.51
Consommation	254	0.25	11.3	88.7	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.32	0.52	0.35	0.64
BISPHENOLS																
BPP																
Tous	585	0.09	0.0	100.0												
BPF																
Tous	585	0.07	31.5	68.5	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.11	0.34	0.59	0.47	1.02
BPA																
Tous	585	0.29	88.2	11.8	0.71	0.65	0.76	<LOQ	<LOQ	0.42	0.71	1.19	2.12	3.18	2.52	4.15
Groupes d'âge																
3-5 ans (p = 0.010210)	287	0.29	90.6	9.4	0.92	0.83	1.11	<LOQ	0.33	0.53	0.91	1.54	2.52	4.16	3.15	7.28
6-11 ans	298	0.29	85.8	14.2	0.55	0.49	0.61	<LOQ	<LOQ	0.33	0.56	0.90	1.83	2.39	2.06	3.17
BPS																
Tous	585	0.09	56.8	43.2	0.17	0.15	0.19	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.17	0.52	1.09	2.01	1.47	2.93
Groupes d'âge																
3-5 ans (p = 0.002764)	287	0.09	63.4	36.6	0.24	0.21	1.19	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.27	0.61	1.68	2.98	2.02	5.92
6-11 ans	298	0.09	50.3	49.7	0.12	0.10	0.14	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.08	0.38	0.82	1.20	1.00	1.54
BPZ																
Tous	585	0.06	3.8	96.2												
HYDROCARBURES AROMATIQUES POLYCYCLIQUES (HAPs)																
1-naphtol																
Tous	584	0.40	56.7	43.3	0.50	0.46	0.54	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.46	0.87	1.56	2.30	1.86	3.84
2-naphtol																
Tous	584	0.40	96.2	3.8	6.19	5.59	6.86	0.97	1.60	2.87	6.06	14.75	29.57	46.74	39.35	58.82
2-hydroxyfluorène																
Tous	584	0.10	4.5	95.5												
3-hydroxyfluorène																
Tous	584	0.10	14.0	86.0	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.15	0.28	0.22	0.33
9-hydroxyfluorène																
Tous	584	0.10	87.2	12.8	0.34	0.31	0.37	<LOQ	<LOQ	0.20	0.35	0.63	1.17	1.84	1.47	2.16
1-hydroxyphénanthrène																
Tous	584	0.10	65.8	34.2	0.15	0.14	0.17	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.17	0.29	0.46	0.68	0.57	0.93
2-hydroxyphénanthrène																
Tous	584	0.10	6.3	93.7	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.14	0.13	0.19
3-hydroxyphénanthrène																
Tous	584	0.10	46.7	53.3	0.09	<LOQ	0.10	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.16	0.27	0.37	0.32	0.48

[2] Ont été exclus des statistiques descriptives les participants a2-008, a2-045, a2-073, a2-162, a2-401, a2-472, a2-531, a2-537, a2-542, a2-573, a2-576, a2-590, a2-611, a2-622, a2-679 et a2-687 pour lesquels le résultat de créatinurie n'était pas disponible

Annexe 4 : suite

	N TOT	LOQ	N>LOQ	N<LOQ	Moyenne géométrique (µg/g creat)			P5	P10	P25	P50	P75	P90	P95	P95 µg/g creat	
		µg/l	%	%	Moyenne	CI 95% inf.	CI 95% sup.	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	CI 95% inf.	CI 95% sup.
4-hydroxyphénanthrène																
Tous	584	0.10	19.3	80.7	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.22	0.38	0.30	0.50
Groupes d'âge																
3-5 ans	287	0.10	23.7	76.3	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.29	0.43	0.36	0.81
6-11 ans	297	0.10	15.2	84.8	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.17	0.27	0.22	0.46
1-hydroxypyrène																
Tous	584	0.15	38.4	61.6	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.19	0.29	0.38	0.36	0.46
GLYPHOSATE ET MÉTABOLITE																
Glyphosate																
Tous	585	0.08	34.3	65.7	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.09	0.16	0.24	0.22	0.30
Acide aminométhylphosphonique (AMPA)																
Tous	585	0.15	21.3	78.7	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.21	0.30	0.27	0.41
Groupes d'âge																
3-5 ans	287	0.15	16.4	83.6	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.22	0.32	0.25	0.44
6-11 ans	298	0.15	26.2	73.8	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.11	0.18	0.29	0.23	0.43
PESTICIDES ORGANOPHOSPHORES																
Diéthylphosphate (DEP)																
Tous	586	0.50	99.3	0.7	4.04	3.79	4.30	1.22	1.67	2.39	3.85	6.22	10.52	14.52	12.33	17.45
Groupes d'âge																
3-5 ans	288	0.50	99.7	0.3	5.21	4.77	5.68	1.90	2.33	3.14	4.83	7.77	12.71	16.60	14.20	29.00
6-11 ans	298	0.50	99.3	0.7	3.16	2.91	3.42	1.07	1.34	2.00	2.94	4.68	7.65	10.45	8.98	16.13
Diéthylthiophosphate (DETP)																
Tous	586	0.50	12.8	87.2	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.79	1.40	1.07	1.89
3-5 ans	288	0.50	16.3	83.7	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	1.06	1.72	1.28	2.30
6-11 ans	298	0.50	9.3	90.7	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.96	0.58	1.60
Diéthyldithiophosphate (DEDTP)																
Tous	586	0.50	0.0	100.0												
Diméthylthiophosphate (DMTP)																
Tous	586	0.50	86.9	13.1	1.60	1.45	1.75	<LOQ	<LOQ	0.78	1.53	3.23	6.74	12.45	9.15	17.35
Diméthyldithiophosphate (DMDTP)																
Tous	586	0.50	24.0	76.0	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.93	1.53	1.24	1.85
Trichloropyridinol (TCPY)																
Tous	586	0.08	99.3	0.7	0.56	0.53	0.59	0.22	0.26	0.35	0.54	0.84	1.27	1.82	1.54	2.03
PESTICIDES PYRETHRINOIDES																
c-DCCA																
Tous	586	0.20	62.1	37.9	0.32	0.29	0.35	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.37	0.74	1.30	1.85	1.58	2.42
t-DCCA																
Tous	586	0.15	91.0	9.0	0.90	0.82	0.99	<LOQ	0.25	0.47	0.97	1.90	3.19	4.83	3.98	7.22
DBCA																
Tous	586	0.30	61.1	38.9	0.36	0.34	0.39	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.34	0.65	1.03	1.52	1.31	1.90
3-PBA																

Annexe 4 : suite

	N TOT	LOQ	N>LOQ	N<LOQ	Moyenne géométrique (µg/g creat)			P5	P10	P25	P50	P75	P90	P95	P95 µg/g creat	
		µg/l	%	%	Moyenne	CI 95% inf.	CI 95% sup	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat	CI 95% inf.	CI 95% sup.
Tous	586	0.09	99.0	1.0	1.21	1.13	1.30	0.31	0.39	0.67	1.18	2.02	3.50	5.97	4.54	7.52
Genre																
Filles	285	0.09	98.3	1.7	1.10	0.99	1.23	0.25	0.36	0.65	1.09	1.82	3.14	5.08	3.71	8.34
Garçons	301	0.09	99.7	0.3	1.32	1.20	1.46	0.34	0.45	0.71	1.30	2.15	3.80	6.12	6.12	14.37
4-F-3-PBA																
Tous	586	0.11	1.5	98.5												

Annexe 5 : Comparaisons (tests de Dunn) entre les différentes tranches d'âge. Les comparaisons statistiques entre les classes d'âges de la PHASE 1 (adolescents 12-19 ans et adultes 20-39 ans) et celles de la PHASE 2 (enfants 3-5 ans et 6-11 ans) doivent être faites avec prudence, les collectes n'ayant pas été faites lors de la même période. Les résultats ne sont donnés qu'à titre indicatif.

Hg				
	3-5 ans	6-11 ans	12-19 ans	20-39 ans
N>LOQ	8%		9%	14%
P50 (µg/L)	<0.25		<0.25	<0.25
P95 (µg/L)	0.39		0.37	0.53
3-5 ans	-			
6-11 ans	0.38422	-		
12-19 ans	0.28200	0.38712	-	
20-39 ans	***0.00268***	***0.00618***	***0.01423***	-

BPF				
	3-5 ans	6-11 ans	12-19 ans	20-39 ans
N>LOQ	32%		40%	
P50 (µg/L)	<0.07		<0.07	
P95 (µg/L)	0.78		0.85	
3-5 ans	-			
6-11 ans	0.11916	-		
12-19 ans	***0.02583***	0.21469	-	
20-39 ans	***0.00004***	***0.00242***	***0.02222***	-

BPA				
	3-5 ans	6-11 ans	12-19 ans	20-39 ans
N>LOQ	91%	86%	68%	
P50 (µg/L)	0.84	0.72	0.51	
P95 (µg/L)	3.78	2.84	3.76	
3-5 ans	-			
6-11 ans	***0.01084***	-		
12-19 ans	***0.00001***	***0.01985***	-	
20-39 ans	***0.00000***	***0.00002***	***0.02176***	-

BPS				
	3-5 ans	6-11 ans	12-19 ans	20-39 ans
N>LOQ	63%	50%	59%	46%
P50 (µg/L)	0.27	0.10	0.17	<0.09
P95 (µg/L)	3.43	1.59	2.66	1.89
3-5 ans	-			
6-11 ans	***0.00139***	-		
12-19 ans	***0.09172***	***0.05393***	-	
20-39 ans	***0.00001***	***0.08897***	***0.00207***	-

BPZ				
	3-5 ans	6-11 ans	12-19 ans	20-39 ans
N>LOQ	4%		10%	5%
P50 (µg/L)	<0.06		<0.06	<0.06
P95 (µg/L)	<0.06		0.11	<0.06
3-5 ans	-			
6-11 ans	0.05267	-		
12-19 ans	***0.00006***	***0.01186***	-	
20-39 ans	0.12445	0.34473	***0.00519***	-

2-napthol				
	3-5 ans	6-11 ans	12-19 ans	20-39 ans
N>LOQ	96%		96%	100%
P50 (µg/L)	6.31		3.77	5.10
P95 (µg/L)	54.1		31.2	31.8
3-5 ans	-			
6-11 ans	0.32091	-		
12-19 ans	***0.00277***	***0.00989***	-	
20-39 ans	***<0.00001***	***<0.00001***	***0.00066***	-

2-hydroxyfluorène				
	3-5 ans	6-11 ans	12-19 ans	20-39 ans
N>LOQ	5%		11%	18%
P50 (µg/L)	<0.10		<0.10	<0.10
P95 (µg/L)	<0.10		0.25	2.02
3-5 ans	-			
6-11 ans	***0.02647***	-		
12-19 ans	***0.00018***	***0.04695***	-	
20-39 ans	***<0.00001***	***<0.00001***	***0.00142***	-

3-hydroxyfluorène				
	3-5 ans	6-11 ans	12-19 ans	20-39 ans
N>LOQ	14%		11%	17%
P50 (µg/L)	<0.10		<0.10	<0.10
P95 (µg/L)	0.32		0.22	1.27
3-5 ans	-			
6-11 ans	***0.03509***	-		
12-19 ans	0.49896	***0.03643***	-	
20-39 ans	***0.00997***	0.27838	***0.01050***	-

9-hydroxyfluorène				
	3-5 ans	6-11 ans	12-19 ans	20-39 ans
N>LOQ	87%		49%	
P50 (µg/L)	0.39		<0.10	
P95 (µg/L)	1.90		1.43	
3-5 ans	-			
6-11 ans	0.15624	-		
12-19 ans	***<0.00001***	***<0.00001***	-	
20-39 ans	***<0.00001***	***<0.00001***	0.06088	-

1-hydroxyphénanthrène				
	3-5 ans	6-11 ans	12-19 ans	20-39 ans
N>LOQ	66%		58%	
P50 (µg/L)	0.19		0.13	
P95 (µg/L)	0.85		0.62	
3-5 ans	-			
6-11 ans	0.31499	-		
12-19 ans	***<0.00001***	***<0.00001***	-	
20-39 ans	***<0.00001***	***<0.00001***	0.34658	-

2-hydroxyphénanthrène				
	3-5 ans	6-11 ans	12-19 ans	20-39 ans
N>LOQ	6%		14%	28%
P50 (µg/L)	<0.10		<0.10	<0.10
P95 (µg/L)	0.12		0.20	0.26
3-5 ans	-			
6-11 ans	0.20931	-		
12-19 ans	***<0.00001***	***<0.00001***	-	
20-39 ans	***<0.00001***	***<0.00001***	***0.00497***	-

4-hydroxyphénanthrène				
	3-5 ans	6-11 ans	12-19 ans	20-39 ans
N>LOQ	24%	15%	17%	
P50 (µg/L)	<0.10	<0.10	<0.10	
P95 (µg/L)	0.49	0.37	0.26	
3-5 ans	-			
6-11 ans	***0.00441***	-		
12-19 ans	0.07261	0.12861	-	
20-39 ans	***0.00093***	0.27665	***0.04683***	-

1-hydroxypyrène				
	3-5 ans	6-11 ans	12-19 ans	20-39 ans
N>LOQ	38%		18%	
P50 (µg/L)	<0.15		<0.15	
P95 (µg/L)	0.51		0.33	
3-5 ans	-			
6-11 ans	***<0.00001***	-		
12-19 ans	***<0.00001***	**0.04355**	-	
20-39 ans	***<0.00001***	0.40339	0.07967	-

Glyphosate				
	3-5 ans	6-11 ans	12-19 ans	20-39 ans
N>LOQ	34%		27%	18%
P50 (µg/L)	<0.08		<0.08	<0.08
P95 (µg/L)	0.3		0.23	0.23
3-5 ans	-			
6-11 ans	0.07293	-		
12-19 ans	0.07839	***0.00222***	-	
20-39 ans	***0.00023***	***<0.00001***	***0.01874***	-

AMPA				
	3-5 ans	6-11 ans	12-19 ans	20-39 ans
N>LOQ	16%	26%	11%	
P50 (µg/L)	<0.15	<0.15	<0.15	
P95 (µg/L)	0.28	0.36	0.22	
3-5 ans	-			
6-11 ans	***0.00058***	-		
12-19 ans	0.06223	***<0.00001***	-	
20-39 ans	***0.04807***	***<0.00001***	0.43620	-

Diéthylphosphate (DEP)				
	3-5 ans	6-11 ans	12-19 ans	20-39 ans
N>LOQ	100%	99%	90%	68%
P50 (µg/L)	4.60	3.62	2.16	1.20
P95 (µg/L)	19.8	14.7	13.4	7.13
3-5 ans	-			
6-11 ans	0.04084	-		
12-19 ans	***<0.00001***	***<0.00001***	-	
20-39 ans	***<0.00001***	***<0.00001***	***<0.00001***	-

Diéthylthiophosphate (DETP)				
	3-5 ans	6-11 ans	12-19 ans	20-39 ans
N>LOQ	16%	9%	19%	
P50 (µg/L)	<0.50	<0.50	<0.50	
P95 (µg/L)	1.21	0.89	1.42	
3-5 ans	-			
6-11 ans	***0.01003***	-		
12-19 ans	0.11367	***0.00025***	-	
20-39 ans	0.38639	***0.00596***	0.19105	-

Diméthylthiophosphate (DMTP)				
	3-5 ans	6-11 ans	12-19 ans	20-39 ans
N>LOQ	87%		82%	63%
P50 (µg/L)	1.64		1.56	0.82
P95 (µg/L)	13.2		8.46	6.68
3-5 ans	-			
6-11 ans	0.31391	-		
12-19 ans	0.18351	0.08433	-	
20-39 ans	***<0.00001***	***<0.00001***	***<0.00001***	-

Diméthyldithiophosphate (DMDTP)				
	3-5 ans	6-11 ans	12-19 ans	20-39 ans
N>LOQ	24%		9%	9%
P50 (µg/L)	<0.50		<0.50	<0.50
P95 (µg/L)	1.46		0.99	0.57
3-5 ans	-			
6-11 ans	0.12247	-		
12-19 ans	***<0.00001***	***0.00002***	-	
20-39 ans	***<0.00001***	***<0.00001***	0.29975	-

Trichloropyridinol (TCPY)				
	3-5 ans	6-11 ans	12-19 ans	20-39 ans
N>LOQ	99%		95%	92%
P50 (µg/L)	0.57		0.56	0.44
P95 (µg/L)	1.94		1.94	1.88
3-5 ans	-			
6-11 ans	0.10721	-		
12-19 ans	***0.01754***	0.18703	-	
20-39 ans	***<0.00001***	***<0.00001***	***0.00277***	-

t-DCCA				
	3-5 ans	6-11 ans	12-19 ans	20-39 ans
N>LOQ	91%		77%	67%
P50 (µg/L)	1.01		0.43	0.26
P95 (µg/L)	5.42		2.82	2.14
3-5 ans	-			
6-11 ans	0.32710	-		
12-19 ans	***<0.00001***	***<0.00001***	-	
20-39 ans	***<0.00001***	***<0.00001***	***0.00016***	-

c-DCCA				
	3-5 ans	6-11 ans	12-19 ans	20-39 ans
N>LOQ	62%		42%	33%
P50 (µg/L)	0.36		<0.20	<0.20
P95 (µg/L)	2.12		1.08	0.86
3-5 ans	-			
6-11 ans	0.25959	-		
12-19 ans	***<0.00001***	***<0.00001***	-	
20-39 ans	***<0.00001***	***<0.00001***	***0.01579***	-

DBCA				
	3-5 ans	6-11 ans	12-19 ans	20-39 ans
N>LOQ	61%		48%	30%
P50 (µg/L)	0.38		<0.30	<0.30
P95 (µg/L)	1.73		2.02	0.93
3-5 ans	-			
6-11 ans	0.04295	-		
12-19 ans	0.05138	0.00046	-	
20-39 ans	***<0.00001***	***<0.00001***	***<0.00001***	-

3-PBA				
	3-5 ans	6-11 ans	12-19 ans	20-39 ans
N>LOQ	99%		98%	89%
P50 (µg/L)	1.29		0.70	0.37
P95 (µg/L)	5.94		3.22	2.19
3-5 ans	-			
6-11 ans	0.22585	-		
12-19 ans	***<0.00001***	***<0.00001***	-	
20-39 ans	***<0.00001***	***<0.00001***	***<0.00001***	-