



Service de Toxicologie

**MISE A JOUR du document → voir Version 2 (nouveau document)**

**Evolution de la méthodologie d'élaboration des valeurs de référence d'exposition (VR95) de la population générale wallonne.**

*La science n'est pas un domaine figé. Elle est en constante progression. Ainsi entre la phase 1 du programme de biomonitoring wallon, BMH-Wal 1 et la phase 2, BMH-Wal 2, la méthodologie d'élaboration des valeurs de référence d'exposition a évolué.*

*Pour rappel, le percentile utilisé pour établir la valeur de référence VR95 est le percentile 95 et son intervalle de confiance à 95%.*

*La valeur de référence, VR95, de chaque biomarqueur peut être déterminée selon le sexe, les sous-classes d'âges ou d'autres critères (tabagisme et consommation de poisson par exemple). Afin d'estimer la pertinence d'établir des VR95 différentes en fonction de ces critères de partition, les P95 sont comparés au moyen du test Z pour une proportion (test unilatéral). Des VR95 spécifiques pour ces groupes ont été établies quand une différence au seuil <0.001 était constatée.*

*Le nombre de VR95 change. Certaines VR95 (BMH-Wal 1, sept. 2021) ont été abandonnées, d'autres ajoutées.*

**Programme de Biomonitoring humain Wallon (première phase) – Rapport valeurs de référence**

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

**Mars 2021**

Professeure Corinne Charlier

Catherine Pirard

Cheffe de Service

Responsable scientifique

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

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

## **TABLE DES MATIERES**

TABLE DES ACRONYMES.....	4
1. INTRODUCTION .....	5
2. PRÉSENTATIONS DES BIOMARQUEURS .....	6
2.1 Le mercure urinaire .....	6
2.2 Les bisphénols.....	7
2.3 Les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAPs).....	7
2.4 Le glyphosate et l'acide aminométhylphosphonique (AMPA).....	8
2.5 Les métabolites de pesticides organophosphorés (spécifiques et non spécifiques) ..	9
2.6 Les métabolites de pesticides pyréthrinoïdes (spécifiques et non spécifiques).....	10
2.7 Les pesticides organochlorés et PCBs.....	11
3. STATISTIQUES DESCRIPTIVES ET VALEURS DE RÉFÉRENCE .....	12
3.1. Biomarqueurs urinaires .....	13
3.1.1. Le mercure urinaire .....	19
3.1.2. Les bisphénols .....	19
3.1.3. Les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAPs) .....	19
3.1.4. Le glyphosate et l'acide aminométhylphosphonique (AMPA).....	20
3.1.5. Les métabolites de pesticides organophosphorés (spécifiques et non spécifiques).....	20
3.1.6. Les métabolites de pesticides pyréthrinoïdes (spécifiques et non spécifiques) 20	
3.2. Biomarqueurs sanguins .....	21
3.2.1. Les pesticides organochlorés et PCBs .....	21
4. COMPARAISON AVEC D'AUTRES ÉTUDES NATIONALES ET INTERNATIONALES .....	24
4.1. Biomarqueurs urinaires.....	24
4.1.1. Le mercure.....	24
4.1.2. Les bisphénols .....	25
4.1.3. Les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAPs) .....	28
4.1.4. Le glyphosate et l'acide aminométhylphosphonique (AMPA).....	35
4.1.5. Les métabolites de pesticides organophosphorés (spécifiques et non spécifiques) .....	36
4.1.6. Les métabolites de pesticides pyréthrinoïdes (spécifiques et non spécifiques)....	41

4.2. Biomarqueurs sanguins .....	45
4.2.1. Les pesticides organochlorés et PCBs .....	45
5. CONCLUSIONS .....	50
RÉFÉRENCES .....	52
ANNEXES.....	57
Annexe 1 : Histogrammes des distributions de valeurs mesurées dans la population étudiée .....	58
Annexe 2 : Statistiques descriptives pour les biomarqueurs urinaires ajustés par rapport à la créatinine (en µg/g créatinine).....	65

## TABLE DES ACRONYMES

---

HAPs : hydrocarbures aromatiques polycycliques  
PCBs : polychlorobiphényles  
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 : diéthylthiophosphate  
DMTP : diméthylthiophosphate  
DMDTP : diméthylthiophosphate  
TCPY : 3,5,6-trichloro-2-pyridinol  
c- DCCA : acide cis-3-(2,2-dichlorovinyle)-2,2-diméthylcyclopropane-1-carboxylique  
t-DCCA : acide trans-3-(2,2-dichlorovinyle)-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 : dichlorodiphényltrichloroéthane  
OPs : pesticides organophosphorés  
DAPs : dialkylphosphates  
LOQ : limite de quantification  
P5, P10, P25, P50, P75, P90, P95 : percentile 5, 10, 25, 75, 90 et 95 respectivement  
RV<sub>95</sub> : 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. La phase n°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 substances sélectionnées dans un premier temps sont des métaux et éléments traces, des plastifiants (bisphénols), des HAPs, plusieurs familles de pesticides et des PCBs.

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.

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-hydroxypyrene (métabolite du pyrene 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 diéthylthiophosphate (DEDTP), le diméthylthiophosphate (DMTP), et le diméthylthiophosphate (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 polychlorobiphényles (PCBs) : les PCB-118, -138, -153 et -180 ;
- 14 pesticides organochlorés :  $\alpha$ -,  $\beta$ -,  $\gamma$ - hexachlorohexane ( $\alpha$ -,  $\beta$ -,  $\gamma$ - HCH), hexachlorobenzène (HCB), aldrine et dieldrine, endrine, c- et t-chlordane, oxychlordane, c- et t-nonachlor, heptachlor époxyde,  $\beta$ -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, l'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 aiguë (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 1 reprend les différents métabolites correspondant aux principaux OPs parents (Fréry et al., 2012 ; EXPOPESTEN 2018).

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

PESTICIDES PARENTS	METABOLITES					
	DMTP	DMDTP	DEP	DETP	DEDTP	TCPY
<i>Insecticides organophosphorés</i>						
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	
<i>Insecticides pyréthriinoïdes</i>	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					

## 2.6 Les métabolites de pesticides pyréthriinoïdes (spécifiques et non spécifiques)

Les pesticides pyréthriinoïdes 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 contre 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) reflète une exposition récente. Le tableau 1 reprend des pyréthrinoïdes parents correspondant aux différents métabolites (Fréry et al., 2012 ; EXPOPESTEN 2018).

## 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'encre de papiers autocopiants, comme additifs de colles, de cires, d'encre, 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 gras 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. STATISTIQUES DESCRIPTIVES ET VALEURS DE RÉFÉRENCE**

Les valeurs de référence 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 (jointes en annexe 1). 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. La pertinence d'établir des valeurs de référence pour des sous-groupes a été évaluée au moyen d'un test de Mann-Whitney (si 2 catégories) ou Kruskal Wallis (si plus de 2 catégories) entre les catégories reprises dans le tableau 2. La différence a été jugée significative pour  $p < 0.05$ .

**Tableau 2 : Covariables utilisées dans les tests statistiques pour chaque marqueur**

	Pesticides OC & PCBs	Hg	Bisphénols	Métab. HAPs	Glyphosate & métab.	Métab. OP	Métab. pyréthrinoides
<b>Groupes d'âge (catégorie)</b>	X	X	X	X	X	X	X
Adolescent							
Adulte							
Sang de cordon (pour les marqueurs sériques uniquement)							
<b>Genre (Q1)</b>	X	X	X	X	X	X	X
Femme							
Homme							
<b>Statut tabagique (Q26)</b>				X			
Non-fumeur (#1, 2 et 4)							
Fumeur (#3)							
<b>Amalgames (Q60)</b>		X					
Sans amalgame (#0, 2 et 3)							
Avec amalgames (#1)							
<b>Consommation de poisson fruits de mer</b>		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)							
<b>Consommation d'aliments Bio (Q103)</b>					X	X	X
non (#0)							
oui parfois (#1)							
oui le plus souvent (#2)							

### 3.1. 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, P10, P25, P50, P75, P90, P95 et son intervalle de confiance à 95%, et la valeur de référence (RV<sub>95</sub>) ont été déterminés et sont présentés dans le tableau 3 pour l'ensemble de la population et pour les différents sous-groupes lorsque c'était pertinent. La p-value 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 créatinine) sont présentés à l'annexe 2.

**Tableau 3 : Statistiques descriptives pour les biomarqueurs urinaires (en µg/l)**

	N TOT	LOQ µg/l	N>LOQ %	N<LOQ %	Moyenne géométrique (µg/l)			P5 µg/l	P10 µg/l	P25 µg/l	P50 µg/l	P75 µg/l	P90 µg/l	P95 µg/l	P95		RV <sub>95</sub> µg/l
					Moyenne	CI 95% inf.	CI 95% sup.								CI 95% inf.	CI 95% sup.	
<b>Hg</b>																	
Tous	543	0.25	11.4	88.6	<0.25	-	-	<0.25	<0.25	<0.25	<0.25	<0.25	0.28	0.46	0.38	0.58	0.45
<b>Groupes d'âge</b>																	
Adolescents (p=0.03358)	282	0.25	8.9	91.1	<0.25	-	-	<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	-	-	<0.25	<0.25	<0.25	<0.25	<0.25	0.36	0.53	0.43	0.78	0.52
<b>Amalgames</b>																	
Sans amalgame (p=0.02683)	351	0.25	8.3	91.7	<0.25	-	-	<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	-	-	<0.25	<0.25	<0.25	<0.25	<0.25	0.58	0.81	0.58	1.33	
<i>* différences fréquences habituelles de consommation de poisson (en général): p=0.06943</i>																	
<i>* différences fréquences habituelles de consommation de poisson de mer: p=0.05934</i>																	
<b>BISPHENOLS</b>																	
<b>BPP</b>																	
Tous	543	0.09	0.7	99.3													
<b>BPF</b>																	
Tous	543	0.07	40.0	60.0	0.08	0.07	0.09	<0.07	<0.07	<0.07	<0.07	0.16	0.44	0.85	0.63	1.16	0.84
<i>* différences ado&gt;adultes: p=0.05194</i>																	
<b>BPA</b>																	
Tous*	543	0.29	68.1	31.9	0.53	0.48	0.58	<0.29	<0.29	<0.29	0.51	1.12	2.42	3.76	3.02	4.74	3.70
<i>* différences ado&gt;adultes: p=0.07309</i>																	
<b>Genre</b>																	
Femmes (p=0.0007784)	293	0.29	63.1	36.9	0.46	0.40	0.52	<0.29	<0.29	<0.29	0.45	0.93	2.04	3.31	2.54	4.99	3.30
Hommes	250	0.29	74.0	26.0	0.63	0.55	0.72	<0.29	<0.29	<0.29	0.62	1.26	2.64	3.88	3.36	6.09	3.80
<b>BPS</b>																	
Tous	543	0.09	52.7	47.3	0.16	0.14	0.18	<0.09	<0.09	<0.09	0.12	0.46	1.16	2.24	1.72	2.99	2.20
<b>Groupes d'âge</b>																	
Adolescents (p=0.002966)	282	0.09	59.2	40.8	0.19	0.16	0.23	<0.09	<0.09	<0.09	0.17	0.55	1.30	2.66	1.84	3.77	2.60
Adultes	261	0.09	45.6	54.4	0.14	0.12	0.16	<0.09	<0.09	<0.09	0.05	0.39	1.05	1.89	1.33	2.53	1.80
<b>BPZ</b>																	
Tous	543	0.06	7.2	92.8	<0.06	-	-	<0.06	<0.06	<0.06	<0.06	<0.06	<0.06	0.08	<0.06	0.14	-
<b>Groupes d'âge</b>																	
Adolescents (p=0.002246)	282	0.06	9.6	90.4	<0.06	-	-	<0.06	<0.06	<0.06	<0.06	<0.06	<0.06	0.11	0.08	0.45	0.10
Adultes	261	0.06	4.6	95.4	<0.06	-	-	<0.06	<0.06	<0.06	<0.06	<0.06	<0.06	<0.06	<0.06	0.09	-
<b>HYDROCARBURES AROMATIQUES POLYCYCLIQUES (HAPs)</b>																	
<b>1-naphtol</b>																	
Tous*	543	0.40	56.7	43.3	0.58	0.52	0.65	<0.40	<0.40	<0.40	0.48	0.99	2.92	8.73	5.78	14.61	8.70
<i>* différences ado&gt;adultes: p=0.06346</i>																	
<b>Genre</b>																	
Femmes (p=0.003018)	293	0.40	49.1	50.9	0.51	0.44	0.60	<0.40	<0.40	<0.40	<0.40	0.89	2.04	5.94	3.13	14.89	5.90
Hommes	250	0.40	65.6	34.4	0.68	0.58	0.79	<0.40	<0.40	<0.40	0.61	1.10	4.42	11.59	7.89	18.93	11.0
<b>Statut tabagique</b>																	
Non-fumeurs (p<0.0001)	499	0.40	53.7	46.3	0.48	0.43	0.53	<0.40	<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	5.91	3.97	8.81	0.25	1.58	3.21	8.54	14.99	22.20	24.89	21.77	59.14	
<b>2-naphtol</b>																	
Tous	543	0.40	96.5	3.5	4.15	3.72	4.62	0.52	0.84	1.68	4.28	10.83	21.29	31.42	27.47	40.62	31.0

Tableau 3 suite

	N TOT	LOQ	N>LOQ	N<LOQ	Moyenne géométrique (µg/l)			P5	P10	P25	P50	P75	P90	P95	P95		RV <sub>95</sub>
		µg/l	%	%	Moyenne	CI 95% inf.	CI 95% sup.	µg/l	CI 95% inf.	CI 95% sup.	µg/l						
<b>Genre</b>																	
Femmes (p= 0.003372)	293	0.40	95.9	4.1	3.75	3.24	4.35	0.49	0.77	1.47	3.77	9.42	19.33	31.24	24.84	42.57	31.0
Hommes	250	0.40	100.0	0.0	4.66	3.99	5.44	0.54	0.88	1.97	5.10	12.32	23.65	31.77	26.39	41.55	31.0
<b>Groupes d'âge</b>																	
Adolescents (p=0.0009482)	282	0.40	97.9	2.1	4.96	4.31	5.70	0.69	1.17	2.11	5.37	12.34	21.30	33.69	25.42	42.57	33.0
Adultes	261	0.40	95.0	5.0	3.42	2.91	4.02	0.42	0.64	1.34	3.13	9.00	21.16	31.09	26.21	41.64	31.0
<b>Statut tabagique</b>																	
Non-fumeurs (p<0.0001)	499	0.40	96.4	3.6	3.79	3.39	4.24	0.49	0.79	1.57	3.70	9.15	19.88	28.42	25.18	39.48	28.0
Fumeurs	43	0.40	100.0	0.0	11.65	8.99	15.10	2.66	3.89	6.61	13.68	19.66	32.68	39.44	31.67	48.39	
<b>2-hydroxyfluorène</b>																	
Tous	543	0.10	14.2	85.8	<0.10	-	-	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.20	1.25	0.64	1.68	1.20
<b>Genre</b>																	
Femmes (p= 0.008208)	293	0.10	10.6	89.4	<0.10	-	-	<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	-	-	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.37	1.36	0.90	2.14	1.30
<b>Groupes d'âge</b>																	
Adolescents (p=0.01216)	282	0.10	11.0	89.0	<0.10	-	-	<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	-	-	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.74	2.02	1.35	2.94	2.01
<b>Statut tabagique</b>																	
Non-fumeurs (p<0.0001)	499	0.10	9.2	90.8	<0.10	-	-	<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	0.60	0.37	0.99	<0.10	<0.10	<0.10	1.27	2.08	3.35	3.61	2.94	4.90	
<b>3-hydroxyfluorène</b>																	
Tous	543	0.10	14.0	86.0	<0.10	-	-	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.19	0.75	0.44	1.16	0.75
<b>Groupes d'âge</b>																	
Adolescents (p=0.02633)	282	0.10	11.3	88.7	<0.10	-	-	<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	-	-	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.52	1.27	0.89	2.04	1.20
<b>Statut tabagique</b>																	
Non-fumeurs (p<0.0001)	499	0.10	8.2	91.8	<0.10	-	-	<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	0.53	0.35	0.79	<0.10	<0.10	0.29	0.78	1.30	2.39	2.64	2.23	3.85	
<b>9-hydroxyfluorène</b>																	
Tous	543	0.10	49.2	50.8	0.14	0.13	0.16	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.37	0.86	1.43	1.14	1.73	1.40
<b>1-hydroxyphénanthrène</b>																	
Tous*	543	0.10	57.8	42.2	0.13	0.12	0.14	<0.10	<0.10	<0.10	0.13	0.27	0.48	0.62	0.57	0.79	0.62
<i>* différences femmes&lt;hommes: p=0.09843</i>																	
<b>Statut tabagique</b>																	
Non-fumeurs (p=0.03474)	499	0.10	56.7	43.3	0.13	0.12	0.14	<0.10	<0.10	<0.10	0.13	0.25	0.47	0.60	0.53	0.77	0.60
Fumeurs	43	0.10	72.1	27.9	0.19	0.14	0.25	<0.10	<0.10	<0.10	0.22	0.41	0.54	0.72	0.52	0.97	
<b>2-hydroxyphénanthrène</b>																	
Tous	543	0.10	20.6	79.4	<0.10	-	-	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.17	0.24	0.22	0.33	0.24
<b>Genre</b>																	
Femmes (p= 0.008512)	293	0.10	16.4	83.6	<0.10	-	-	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.14	0.23	0.17	0.37	0.22
Hommes	250	0.10	25.6	74.4	<0.10	-	-	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.10	0.20	0.25	0.22	0.37	0.25
<b>Groupes d'âge</b>																	
Adolescents (p<0.0001)	282	0.10	14.2	85.8	<0.10	-	-	<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	-	-	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.11	0.20	0.26	0.23	0.38	0.26

Tableau 3 suite

	N TOT	LOQ	N>LOQ	N<LOQ	Moyenne géométrique (µg/l)			P5	P10	P25	P50	P75	P90	P95	P95		RV <sub>95</sub>
					µg/l	%	%								Moyenne	CI 95% inf.	
<b>Statut tabagique</b>																	
Non-fumeurs (p<0.0001)	499	0.10	18.4	81.6	<0.10	-	-	<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	<0.10	0.12	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.19	0.29	0.38	0.26	0.59	
<b>3-hydroxyphénanthrène</b>																	
Tous*	543	0.10	42.2	57.8	0.10	<0.10	0.10	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.18	0.35	0.55	0.44	0.67	0.55
<i>* différences ado&lt;adultes: p=0.07269</i>																	
<b>Genre</b>																	
Femmes (p=0.006645)	293	0.10	38.2	61.8	<0.10	-	-	<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	0.11	0.10	0.12	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.22	0.42	0.59	0.47	0.72	0.58
<b>Statut tabagique</b>																	
Non-fumeurs (p<0.0001)	499	0.10	39.1	60.9	<0.10	-	-	<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	0.24	0.18	0.33	<0.10	<0.10	0.14	0.25	0.56	0.84	1.01	0.78	1.96	
<b>4-hydroxyphénanthrène</b>																	
Tous*	543	0.10	16.8	83.2	<0.10	-	-	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	<0.10	0.16	0.26	0.22	0.37	0.26
<i>* différences ado&gt;adultes: p=0.0818</i>																	
<b>1-hydroxypyrene</b>																	
Tous*	543	0.15	17.7	82.3	<0.15	-	-	<0.15	<0.15	<0.15	<0.15	<0.15	0.21	0.33	0.27	0.40	0.32
<i>* différences femmes&lt;hommes: p=0.06196</i>																	
<i>* différences ado&lt;adultes: p=0.07169</i>																	
<b>Statut tabagique</b>																	
Non-fumeurs (p<0.0001)	499	0.15	14.0	86.0	<0.15	-	-	<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	0.18	<0.15	0.23	<0.15	<0.15	<0.15	0.19	0.33	0.56	0.67	0.54	0.72	
<b>GLYPHOSATE ET MÉTABOLITE</b>																	
<b>Glyphosate</b>																	
Tous	543	0.08	22.7	77.3	<0.08	-	-	<0.08	<0.08	<0.08	<0.08	<0.08	0.12	0.23	0.19	0.31	0.23
<b>Genre</b>																	
Femmes (p<0.0001)	293	0.08	15.7	84.3	<0.08	-	-	<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	-	-	<0.08	<0.08	<0.08	<0.08	0.09	0.19	0.26	0.22	0.42	0.25
<b>Groupes d'âge</b>																	
Adolescents (p=0.01526)	282	0.08	27.3	72.7	<0.08	-	-	<0.08	<0.08	<0.08	<0.08	0.08	0.13	0.23	0.19	0.31	0.23
Adultes	261	0.08	17.6	82.4	<0.08	-	-	<0.08	<0.08	<0.08	<0.08	<0.08	0.12	0.23	0.14	0.36	0.23
<b>Acide aminométhylphosphonique (AMPA)</b>																	
Tous	543	0.15	11.2	88.8	<0.15	-	-	<0.15	<0.15	<0.15	<0.15	<0.15	0.15	0.22	0.18	0.26	0.22
<b>PESTICIDES ORGANOPHOSPHORES</b>																	
<b>Diéthylphosphate (DEP)</b>																	
Tous	541	0.50	79.5	20.5	1.54	1.39	1.71	<0.50	<0.50	0.66	1.69	3.70	7.23	10.88	9.05	14.33	10.8
<b>Groupes d'âge</b>																	
Adolescents (p<0.0001)	281	0.50	90.0	10.0	2.14	1.87	2.45	<0.50	0.53	0.99	2.16	4.43	8.97	13.43	10.88	24.74	13.0
Adultes	260	0.50	68.1	31.9	1.08	0.93	1.25	<0.50	<0.50	<0.50	1.20	2.69	5.12	7.13	6.38	12.91	7.10
<b>Diéthylthiophosphate (DETP)</b>																	
Tous	541	0.50	18.9	81.1	<0.50	-	-	<0.50	<0.50	<0.50	<0.50	<0.50	0.82	1.42	1.07	2.35	1.40
<b>Diéthylthiophosphate (DEDTP)</b>																	
Tous	541	0.50	0.2	99.8													
<b>Diméthylthiophosphate (DMTP)</b>																	
Tous	541	0.50	72.6	27.4	1.12	1.02	1.24	<0.50	<0.50	<0.50	1.18	2.71	4.75	7.53	6.27	9.44	7.50

Tableau 3 suite

	N TOT	LOQ µg/l	N>LOQ %	N<LOQ %	Moyenne géométrique (µg/l)			P5 µg/l	P10 µg/l	P25 µg/l	P50 µg/l	P75 µg/l	P90 µg/l	P95 µg/l	P95		RV <sub>95</sub> µg/l
					Moyenne	CI 95% inf.	CI 95% sup.								CI 95% inf.	CI 95% sup.	
<b>Groupes d'âge</b>																	
Adolescents (p<0.0001)	281	0.50	81.5	18.5	1.44	1.27	1.64	<0.50	<0.50	0.70	1.56	3.20	5.05	8.46	6.38	11.56	8.40
Adultes	260	0.50	63.1	36.9	0.86	0.75	0.99	<0.50	<0.50	<0.50	0.82	1.97	4.33	6.68	5.33	10.82	6.60
<b>Diméthylthiophosphate (DMDTP)</b>																	
Tous	541	0.50	8.9	91.1	<0.50	-	-	<0.50	<0.50	<0.50	<0.50	<0.50	<0.50	0.81	0.56	1.00	0.81
<b>Groupes d'âge</b>																	
Adolescents (p=0.007336)	281	0.50	9.3	90.7	<0.50	-	-	<0.50	<0.50	<0.50	<0.50	<0.50	<0.50	0.99	0.80	1.10	0.99
Adultes	260	0.50	8.5	91.5	<0.50	-	-	<0.50	<0.50	<0.50	<0.50	<0.50	<0.50	0.57	0.52	1.00	0.56
<b>Trichloropyridinol (TCPY)</b>																	
Tous	542	0.08	93.5	6.5	0.45	0.41	0.49	<0.08	0.12	0.25	0.51	0.88	1.42	1.90	1.69	2.39	1.90
<b>Genre</b>																	
Femmes (p<0.0001)	292	0.08	92.1	7.9	0.37	0.33	0.42	<0.08	0.10	0.20	0.42	0.79	1.22	1.44	1.31	2.17	1.40
Hommes	250	0.08	95.2	4.8	0.55	0.49	0.62	0.09	0.15	0.34	0.60	1.03	1.66	2.27	1.90	2.99	2.20
<b>Groupes d'âge</b>																	
Adolescents (p=0.00853)	281	0.08	94.7	5.3	0.50	0.45	0.56	<0.08	0.16	0.31	0.56	0.92	1.44	1.94	1.60	2.56	1.90
Adultes	261	0.08	92.3	7.7	0.39	0.34	0.45	<0.08	0.09	0.20	0.44	0.86	1.39	1.88	1.63	2.78	1.80
<b>PESTICIDES PYRETHRINOIDES</b>																	
<b>c-DCCA</b>																	
Tous*	542	0.20	38.0	62.0	<0.20	-	-	<0.20	<0.20	<0.20	<0.20	0.34	0.68	1.02	0.85	1.34	1.02
<i>* différences femmes/hommes: p=0.09501</i>																	
<b>Groupes d'âge</b>																	
Adolescents (p=0.01553)	281	0.20	42.3	57.7	0.20	<0.20	0.23	<0.20	<0.20	<0.20	<0.20	0.38	0.73	1.08	0.90	1.73	1.08
Adultes	261	0.20	33.3	66.7	<0.20	-	-	<0.20	<0.20	<0.20	<0.20	0.29	0.55	0.86	0.66	1.37	0.86
<b>t-DCCA</b>																	
Tous	542	0.15	72.3	27.7	0.35	0.32	0.39	<0.15	<0.15	<0.15	0.35	0.84	1.75	2.72	2.18	3.33	2.70
<b>Genre</b>																	
Femmes (p=0.0005742)	292	0.15	67.5	32.5	0.30	0.26	0.35	<0.15	<0.15	<0.15	0.27	0.75	1.39	2.51	1.68	3.48	2.50
Hommes	250	0.15	78.0	22.0	0.42	0.36	0.48	<0.15	<0.15	0.17	0.44	1.01	2.01	2.74	2.27	3.53	2.70
<b>Groupes d'âge</b>																	
Adolescents (p<0.0001)	281	0.15	77.2	22.8	0.43	0.37	0.50	<0.15	<0.15	0.17	0.43	1.03	2.01	2.82	2.37	3.74	2.80
Adultes	261	0.15	67.0	33.0	0.28	0.24	0.32	<0.15	<0.15	<0.15	0.26	0.70	1.28	2.14	1.40	3.29	2.10
<b>DBCA</b>																	
Tous	542	0.30	39.3	60.7	<0.30	-	-	<0.30	<0.30	<0.30	<0.30	0.48	1.01	1.64	1.31	2.02	1.60
<b>Genre</b>																	
Femmes (p=0.0001667)	292	0.30	32.2	67.8	<0.30	-	-	<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	0.32	<0.30	0.36	<0.30	<0.30	<0.30	<0.30	0.59	1.21	1.84	1.52	2.66	1.80
<b>Groupes d'âge</b>																	
Adolescents (p<0.0001)	281	0.30	48.0	52.0	0.33	0.30	0.37	<0.30	<0.30	<0.30	<0.30	0.64	1.31	2.02	1.74	3.39	2.02
Adultes	261	0.30	29.9	70.1	<0.30	-	-	<0.30	<0.30	<0.30	<0.30	0.36	0.62	0.93	0.68	1.47	0.93
<b>3-PBA</b>																	
Tous	542	0.09	93.4	6.6	0.49	0.44	0.54	<0.09	0.11	0.24	0.54	1.01	1.91	2.86	2.37	3.47	2.80
<b>Genre</b>																	
Femmes (p=0.0003451)	292	0.09	91.8	8.2	0.42	0.37	0.49	<0.09	0.10	0.19	0.41	0.88	1.66	2.65	2.05	4.22	2.60
Hommes	250	0.09	95.2	4.8	0.57	0.50	0.65	0.09	0.13	0.30	0.64	1.19	1.96	2.95	2.25	3.59	2.90

**Tableau 3 suite et fin**

	N TOT	LOQ	N>LOQ	N<LOQ	Moyenne géométrique (µg/l)			P5	P10	P25	P50	P75	P90	P95	P95		RV <sub>95</sub>
		µg/l	%	%	Moyenne	CI 95% inf.	CI 95% sup.	µg/l	µg/l	µg/l	µg/l	µg/l	µg/l	µg/l	CI 95% inf.	CI 95% sup.	µg/l
<b>Groupes d'âge</b>																	
Adolescents (p<0.0001)	281	0.09	97.5	2.5	0.65	0.57	0.74	0.10	0.15	0.34	0.70	1.20	2.14	3.22	2.56	4.22	3.20
Adultes	261	0.09	88.9	11.1	0.36	0.31	0.41	<0.09	<0.09	0.17	0.37	0.83	1.37	2.19	1.56	3.95	2.10
<b>4-F-3-PBA</b>																	
Tous	542	0.11	2.4	97.6													

La différence entre les catégories est significative pour p<0.05

\* La p-value est indiquée lorsque "limite" significative (p<0.1)

### 3.1.1. 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).

### 3.1.2. 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 ( $p=0.0007784$ ).

### 3.1.3. Les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAPs)

---

Les métabolites du naphthalène 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-hydroxypyrene :  $p=0.06196$ ). 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-hydroxypyrene :  $p=0.07169$ , 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.

#### 3.1.4. 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).

#### 3.1.5. 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  $\mu\text{g/l}$ , 1.18 $\mu\text{g/l}$  et 0.51  $\mu\text{g/l}$  pour le DEP, DMTP et TCPY). Le diéthylthiophosphate (DETTP) n'a été détecté que dans un seul échantillon d'urine, tandis que le diéthylphosphate (DEP) et le diméthylthiophosphate (DMTP) 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 DMTP ; et  $p=0.00853$  pour le TCPY), et chez les hommes par rapport aux femmes pour le TCPY uniquement ( $p<0.0001$ ).

#### 3.1.6. Les métabolites de pesticides pyréthriinoïdes (spécifiques et non spécifiques)

---

Les concentrations urinaires des métabolites de pesticides pyréthriinoïdes ont été mesurées dans l'ordre décroissant suivant : 3-PBA (fréquence de détection : 93% ; moyenne géométrique : 0.49  $\mu\text{g/l}$ ) > t-DCCA (fréquence de détection : 72% ; moyenne géométrique : 0.35  $\mu\text{g/l}$ ) > DBCA (fréquence de détection : 39% ; moyenne géométrique : 0.28  $\mu\text{g/l}$ ) > c-DCCA (fréquence de détection : 28% ; moyenne géométrique :  $<0.20$   $\mu\text{g/l}$ ). 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 ( $p=0.01553$ ).

### 3.2. Biomarqueurs sanguins

#### 3.2.1. 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  $\mu\text{g/l}$ . 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  $\mu\text{g/l}$ ) est très largement supérieure à la LOQ de l'HCB (LOQ : 0.08  $\mu\text{g/l}$ ). 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 %	Moyenne géométrique ng/g lip (µg/l)			P5 ng/g lip (µg/l)	P10 ng/g lip (µg/l)	P25 ng/g lip (µg/l)	P50 ng/g lip (µg/l)	P75 ng/g lip (µg/l)	P90 ng/g lip (µg/l)	P95 ng/g lip (µg/l)	P95 ng/g lip (µg/l)		RV <sub>95</sub> ng/g lip (µg/l)	
					Moyenne	CI 95% inf.	CI 95% sup.								CI 95% inf.	CI 95% sup.		
<b>PCBs</b>																		
<b>PCB-118</b>																		
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														
<b>PCB-138</b>																		
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														
<b>Groupes d'âge</b>																		
Adolescents (p<0.0001)	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)	<LOQ (<0.15)	30.99 (0.16)	<LOQ (<0.15)	35.70 (0.2)	-	
<b>PCB-153</b>																		
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)	<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														
<b>Groupes d'âge</b>																		
Adolescents (p<0.0001)	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)	<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)	<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	
<b>PCB-180</b>																		
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)	<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														
<b>Groupes d'âge</b>																		
Adolescents (p<0.0001)	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)	<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)	<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 %	Moyenne géométrique ng/g lip (µg/l)			P5 ng/g lip (µg/g)	P10 ng/g lip (µg/g)	P25 ng/g lip (µg/g)	P50 ng/g lip (µg/g)	P75 ng/g lip (µg/g)	P90 ng/g lip (µg/g)	P95 ng/g lip (µg/g)	P95 ng/g lip (µg/g)		RV <sub>95</sub> ng/g lip (µg/l)	
					Moyenne	CI 95% inf.	CI 95% sup.								CI 95% inf.	CI 95% sup.		
<b>PESTICIDES ORGANOCHLORÉS</b>																		
<b>Hexachlorobenzène (HCB)</b>																		
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)	<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														
<b>Groupes d'âge</b>																		
Adolescents (p<0.0001)	276	0.08	13.0	87.0	<LOQ (<0.08)	-	-	<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)	21	
Adultes	260	0.08	26.2	73.8	<LOQ (<0.08)	-	-	<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)	22	
<b>Genre</b>																		
Femmes (p= 0.00933)	288	0.08	14.9	85.1	<LOQ (<0.08)	-	-	<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)	<LOQ (<0.08)	20.91 (0.11)	23.81 (0.12)	22.35 (0.11)	25.66 (0.14)	23	
<b>Béta-hexachlorohexane (b-HCH)</b>																		
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														
<b>4,4'-DDE (métabolite du 4,4'-DDT)</b>																		
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)	<LOQ (<0.40)	84.98 (0.45)	61.36 (<0.40)	118.38 (0.61)	84	
Sang de cordon (nouveau-nés)	284	0.40	1.1	98.9														

#### 4. COMPARAISON AVEC D'AUTRES ÉTUDES NATIONALES ET INTERNATIONALES

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.

##### 4.1. Biomarqueurs urinaires

##### 4.1.1. Le mercure

**Tableau 5** : Concentrations en mercure urinaire mesurées dans différentes études

<b>Hg</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			µg/l	µg/l	µg/l	
<b>HBM-WAL</b>						
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	
<b>Wallonie (Liège), Pirard et al., 2018</b>						
Adultes (>18 ans)	252	2015	0.81	0.81	4.99	
<b>Belgique, Hoet et al., 2013</b>						
Adultes (>18 ans)	1001	2010-2011		0.382		
<b>Allemagne (GerES), Schulz et al., 2009 et 2011</b>						
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		
<b>Italie, Apostoli et al., 2002</b>						
Tous	383	1999		0.8 µg/g cr	3.7 µg/g cr	
<b>USA (NHANES), CDC 2009</b>						
Tous	3080	2015-2016	-	<0.13	1.18	
Adolescents (12-19 ans)	402	2015-2016	-	<0.13	0.61	
Adultes (>20 ans)	1802	2015-2016	-	0.14	1.22	

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.

#### 4.1.2. 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

<b>BPF</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			µg/l	µg/l	µg/l	
<b>HBM-WAL</b>						
Tous	543	2019-2020	0.08	<0.07	0.85	0.84
<b>USA (NHANES), CDC 2009</b>						
Tous	2686	2013-2014	0.53	0.40	9.80	
<b>France, ESTEBAN, Santé publique France 2019</b>						
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

<b>BPA</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			µg/l	µg/l	µg/l	
<b>HBM-WAL</b>						
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
<b>Belgique (Flandre), Geens et al., 2014</b>						
Adolescents (14-15 ans)	210	2007-2012	2.22	2.21		
<b>Belgique (Liège), Pirard et al., 2012</b>						
Tous	131	2011	2.55	2.46		
Femmes	66	2011	2.40	2.35		
Hommes	65	2011	2.70	2.66		
<b>Belgique (Democophes), Koppen et al., 2019</b>						
Femmes (27-45 ans)	129	2011-2012	2.60			
<b>France, ESTEBAN, Santé publique France 2019</b>						
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	
<b>France; Rancière et al., 2019</b>						
Hommes	584	1996-1998		1.75	10.2	
<b>France; Elfe, Dereumeaux et al., 2016</b>						
Femmes (enceintes)	1764	2011	0.69	0.750	5.28	
<b>Allemagne, Moos et al., 2014</b>						
Adultes (18-64 ans)	157	2007-2009		2.20	6.50	
<b>Allemagne, Koch et al., 2012</b>						
Tous	180	2007-2009	1.37		6.34	
<b>Allemagne, GerES, Becker et al., 2009</b>						
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	
<b>USA (NHANES), CDC 2009</b>						
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	
<b>Canada, CHMS cycle 5</b>						
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

<b>BPS</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			µg/l	µg/l	µg/l	
<b>HBM-WAL</b>						
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
<b>France, ESTEBAN, Santé publique France 2019</b>						
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	
<b>France; Rancière et al., 2019</b>						
Hommes	584	1996-1998		<0.3	0.90	
<b>USA (NHANES), CDC 2009</b>						
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 inférieures à celles mesurées en France ou aux Etats-Unis entre 2013 et 2016, mais peu d'études confirment cette observation.

### 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.

#### 4.1.3. Les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAPs)

##### Les 1- et 2-naphtols

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

<b>1-naphtol</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			µg/l	µg/l	µg/l	
<b>HBM-WAL</b>						
Tous	543	2019-2020	0.58	0.48	8.73	8.70
Femmes	293	2019-2020	0.51	<0.40	5.94	5.90
Hommes	250	2019-2020	0.68	0.61	11.59	11.0
Non-fumeurs	499	2019-2020	0.48	0.45	2.52	2.50
Fumeurs	43	2019-2020	5.91	8.54	24.89	24.0
<b>Italie, Raponi et al., 2017</b>						
Tous	200	?		0.33		
Fumeurs	39	?		3.41		
Non fumeurs	97	?		0.25		
<b>UK, Bevan et al., 2013</b>						
Tous (>18 ans)	298	2005				15.6
<b>Allemagne (GerES), Murawski et al., 2020</b>						
Enfants et adolescents (3-17 ans)	516	2015-2017	0.79	0.74	7.14	
<b>Allemagne (GerES), Wilhelm et al., 2008</b>						
Femmes non fumeurs (25-51 ans)	67	?		3.60	29.9	
Femmes fumeurs (26-44 ans)	35	?		13.0	32.9	
<b>USA (NHANES), CDC 2009</b>						
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	
<b>Canada, CHMS cycle 4</b>						
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**

<b>2-naphtol</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			µg/l	µg/l	µg/l	
<b>HBM-WAL</b>						
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	
<b>Italie, Raponi et al., 2017</b>						
Tous	200	<2016		2.24		
Fumeurs	39	<2016		7.02		
Non fumeurs	97	<2016		1.64		
<b>UK, Bevan et al., 2013</b>						
Tous (>18 ans)	298	2005				11.7
<b>UK, Aquilina et al., 2010</b>						
Tous	86	?	2.92			
Non-exposés au tabac	55	?	3.13			
Exposés passivement au tabac	37	?	2.64			
<b>Allemagne (GerES), Murawski et al., 2020</b>						
Enfants et adolescents (3-17 ans)	516	2015-2017	4.23	4.08	23.7	
<b>Allemagne (GerES), Wilhelm et al., 2008</b>						
Femmes non fumeurs (25-51 ans)	67	?		2.10	16.9	
Femmes fumeurs (26-44 ans)	35	?		17.0	52.0	
<b>USA (NHANES), CDC 2009</b>						
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	
<b>Canada, CHMS cycle 4</b>						
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

<b>9-hydroxyfluorène</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			µg/l	µg/l	µg/l	
<b>HBM-WAL</b>						
Tous	543	2019-2020	0.14	<0.1	1.43	1.40
<b>USA (NHANES), CDC 2009</b>						
Tous	2491	2011-2012	0.25	0.24	1.55	
<b>Canada, CHMS cycle 4</b>						
Tous (3-79 ans)	2501	2014-2015	0.15	0.14	0.72	
<b>2-hydroxyfluorène</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			µg/l	µg/l	µg/l	
<b>HBM-WAL</b>						
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	
<b>UK, Aquilina et al., 2010</b>						
Tous	86	?	0.28			
Non-exposés au tabac	55	?	0.30			
Exposés passivement au tabac	37	?	0.25			
<b>Allemagne (GerES), Murawski et al., 2020</b>						
Enfants et adolescents (3-17 ans)	516	2015-2017	0.39	0.45	1.27	
<b>USA (NHANES), CDC 2009</b>						
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	
<b>Canada, CHMS cycle 4</b>						
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

<b>3-hydroxyfluorène</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			µg/l	µg/l	µg/l	
<b>HBM-WAL</b>						
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	
<b>UK, Aquilina et al., 2010</b>						
Tous	38	?	0.180			
Non-exposés au tabac	24	?	0.160			
Exposés passivement au tabac	14	?	0.210			
<b>USA (NHANES), CDC 2009</b>						
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	
<b>Canada, CHMS cycle 4</b>						
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 urinaires en 1-, 2-, 3- et 4-hydroxyphénanthrène mesurées dans différentes études

<b>1-hydroxyphénanthrène</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			µg/l	µg/l	µg/l	
<b>HBM-WAL</b>						
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	
<b>UK, Aquilina et al., 2010</b>						
Tous	85	?	0.220			
Non-exposés au tabac	54	?	0.220			
Exposés passivement au tabac	37	?	0.220			
<b>Allemagne (GerES), Murawski et al., 2020</b>						
Enfants et adolescents (3-17 ans)	516	2015-2017	0.139	0.140	0.560	
<b>USA (NHANES), CDC 2009</b>						
Tous	2650	2013-2014	0.09	0.09	0.43	
<b>Canada, CHMS cycle 4</b>						
Tous (3-79 ans)	2506	2014-2015	0.160	0.150	0.700	
<b>2-hydroxyphénanthrène</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			µg/l	µg/l	µg/l	
<b>HBM-WAL</b>						
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	
<b>UK, Aquilina et al., 2010</b>						
Tous	85	?	0.140			
Non-exposés au tabac	54	?	0.140			
Exposés passivement au tabac	37	?	0.140			
<b>Allemagne (GerES), Murawski et al., 2020</b>						
Enfants et adolescents (3-17 ans)	516	2015-2017	0.085	0.080	0.330	
<b>USA (NHANES), CDC 2009</b>						
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	
<b>Canada, CHMS cycle 4</b>						
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	

Tableau 11 suite

<b>3-hydroxyphénanthrène</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			µg/l	µg/l	µg/l	
<b>HBM-WAL</b>						
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	
<b>UK, Aquilina et al., 2010 (3 &amp; 4-hydroxyphénanthrène)</b>						
Tous	85	?	0.220			
Non-exposés au tabac	54	?	0.220			
Exposés passivement au tabac	37	?	0.210			
<b>Allemagne (GerES), Murawski et al., 2020</b>						
Enfants et adolescents (3-17 ans)	516	2015-2017	0.131	0.130	0.410	
<b>USA (NHANES), CDC 2009</b>						
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	
<b>Canada, CHMS cycle 4</b>						
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	
<b>4-hydroxyphénanthrène</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			µg/l	µg/l	µg/l	
<b>HBM-WAL</b>						
Tous	543	0.10	<0.10	<0.10	0.263	0.26
<b>UK, Aquilina et al., 2010 (3 &amp; 4-hydroxyphénanthrène)</b>						
Tous	85	?	0.220			
<b>Allemagne (GerES), Murawski et al., 2020</b>						
Enfants et adolescents (3-17 ans)	516	2015-2017	0.045	0.040	0.270	
<b>USA (NHANES), CDC 2009</b>						
Tous	2487	2011-2012	0.02	0.02	0.10	
<b>Canada, CHMS cycle 4</b>						
Tous (3-79 ans)	2504	2014-2015	0.023	0.023	0.120	
<b>Somme des hydroxyphénanthrènes</b>						
<b>Espagne (BIOAMBIENT.ES) Bartolome et al., 2014</b>						
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-hydroxypyrene

Il existe beaucoup de données sur les concentrations urinaires du métabolite principal du pyrene 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-hydroxypyrene mesurées dans différentes études

<b>1-hydroxypyrene</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			µg/l	µg/l	µg/l	
<b>HBM-WAL</b>						
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	
<b>Belgique (Flandre), Schoeters et al., 2012</b>						
Adolescents (14-15 ans)	202	2007-2011	0.137			
Adultes (20-40 ans)	191	2007-2011	0.101			
<b>Belgique (Flandre), Schoeters et al., 2017</b>						
Adolescents (14-15 ans)	200	2013	0.122			
<b>Belgique (Flandre), Dhooge et al., 2010</b>						
Femmes (50-65 ans)	808	2001-2006	0.147 µg/g cr			
Hommes (50-65 ans)	775	2001-2006	0.135 µg/g cr			
<b>France, Lafontaine et al., 2006</b>						
Non-fumeurs	27	?			P90:	0.19 µg/g cr
Fumeurs	27	?			P90:	1.02 µg/g cr
<b>Italie, Raponi et al., 2017</b>						
Tous	200	?		0.061		
Fumeurs	39	?		0.122		
Non fumeurs	97	?		0.055		
<b>UK, Aquilina et al., 2010</b>						
Tous	85	?	0.140			
Non-exposés au tabac	54	?	0.140			
Exposés passivement au tabac	37	?	0.130			
<b>Allemagne (GerES), Murawski et al., 2020</b>						
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 (adolescents)	496	2015-2017	0.079	0.100	0.320	
Fumeurs (adolescents)	19	2015-2017	0.192	0.180	0.570	
<b>Allemagne (GerES), Wilhelm et al., 2008</b>						
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	
<b>Espagne (BIOAMBIENT.ES) Bartolome et al., 2014</b>						
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	
<b>USA (NHANES), CDC 2009</b>						
Tous	2650	2013-2014	0.13	0.12	0.65	
<b>Canada, CHMS cycle 4</b>						
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'hydroxypyrrène, 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-hydroxypyrrène 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.

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

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

<b>Glyphosate</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			µg/l	µg/l	µg/l	
<b>HBM-WAL</b>						
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	0.23
Adultes	261	2019-2020	<0.08	<0.08	0.230	0.23
<b>Portugal, Nova et al., 2020</b>						
Tous (>20 ans)	46	2018 (juillet)	0.070		0.320	
Tous (>20 ans)	33	2018 (octobre)	0.060		0.250	
<b>Allemagne, Conrad et al., 2017</b>						
Tous	40	2015		<0.1	0.450	
Femmes	20	2015		<0.1	0.370	
Hommes	20	2015		<0.1	0.450	
<b>Allemagne, Connolly et al., 2020</b>						
Tous (23-61 ans)	41	2016-2017		0.090		
<b>Slovénie, Stanjko et al., 2020</b>						
Adolescents (12-15 ans)	97	2018	<0.1	<0.1	0.190	
<b>USA, Fagan et al., 2020</b>						
Tous, alimentation conventionnelle	16	2017		0.510		
Tous, alimentation bio	16	2017		0.120		

**Tableau 13 suite**

<b>Acide aminométhylphosphonique (AMPA)</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			µg/l	µg/l	µg/l	
<b>HBM-WAL</b>						
Tous	543	2019-2020	<0.15	<0.15	0.220	0.22
<b>Portugal, Nova et al., 2020</b>						
Tous (>20 ans)	46	2018 (juillet)	0.090		0.280	
Tous (>20 ans)	33	2018 (octobre)	0.100		0.150	
<b>Allemagne, Conrad et al., 2017</b>						
Tous	40	2015		<0.1	0.380	
Femmes	20	2015		<0.1	0.380	
Hommes	20	2015		<0.1	0.380	
<b>Allemagne, Connolly et al., 2020</b>						
Tous (23-61 ans)	41	2016-2017		0.200		
<b>Slovénie, Stanjko et al., 2020</b>						
Adolescents (12-15 ans)	97	2018	<0.1	<0.1	0.330	
<b>USA, Fagan et al., 2020</b>						
Tous, alimentation conventionnelle	16	2017		0.430		
Tous, alimentation bio	16	2017		0.120		

**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. Lors d'études 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 réglementations 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.

**4.1.5. 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 diéthylthiophosphates (DEP, DETP, DEDTP)

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

<b>Diéthylphosphate (DEP)</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			µg/l	µg/l	µg/l	
<b>HBM-WAL</b>						
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
<b>Belgique (Flandre), Schoeters et al., 2012</b>						
Adolescents (14-15 ans)	192	2007-2011	2.50			
Adultes (20-40 ans)	190	2007-2011	2.40			
<b>Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020</b>						
Enfants (9-12 ans)	240	2016		1.80	29.97	
<b>France (ENNS), Frery et al., 2012</b>						
tous (18-74 ans)	392	2006-2007	3.94	3.82	22.44	
<b>France; Elfe, Dereumeaux et al., 2016</b>						
Femmes (enceintes)	1036	2011		<0.6	<0.6	
<b>Espagne (INMA), Llop et al., 2017</b>						
Femmes (enceintes)	855	2003-2006	1.73			
<b>Espagne, Melgarejo 2015</b>						
Hommes (25-38 ans)	119	2012-2013		3.00	15.60	
<b>Allemagne, Heudorf et al., 2006</b>						
Tous (adultes et enfants)	1149	1998		2.60	15.80	16
Enfants (2-17 ans) (GerES)	363	2001-2002		3.80	20.00	
<b>Italie, Aprea et al., 1996</b>						
Adultes	124	<1996	4.22 µg/g cr	4.33 µg/g cr		
<b>USA (NHANES), CDC 2009</b>						
Tous	2591	2007-2008	-	<0.37	15.30	
Adolescents (12-19 ans)	391	2007-2008	-	<0.37	23.30	
Adultes (>20 ans)	1178	2007-2008	-	<0.37	14.00	
<b>Canada, CHMS cycle 5</b>						
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

<b>Diéthylthiophosphate (DETP)</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			µg/l	µg/l	µg/l	
<b>HBM-WAL</b>						
Tous	541	2019-2020	<0.5	<0.5	1.42	1.40
<b>Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020</b>						
Enfants (9-12 ans)	216	2016		<0.5	3.50	
<b>France (NNS), Frery et al., 2012</b>						
tous (18-74 ans)	392	2006-2007	1.07	1.04	8.18	
<b>France; Elfe, Dereumeaux et al., 2016</b>						
Femmes (enceintes)	1036	2011		<0.6	<0.6	
<b>Espagne (INMA), Llop et al., 2017</b>						
Femmes (enceintes)	855	2003-2006	0.22			
<b>Espagne, Melgarejo 2015</b>						
Hommes (25-38 ans)	119	2012-2013		0.80	12.1	
<b>Allemagne, Heudorf et al., 2006</b>						
Tous (adultes et enfants)	1149	1998		<1	7.10	
Enfants (2-17 ans) (GerES)	363	2001-2002		<1	11.0	
<b>Italie, Aprea et al., 1996</b>						
Adultes	124	<1996	3.85 µg/g cr	4.14 µg/g cr		
<b>USA (NHANES), CDC 2009</b>						
Tous	2590	2007-2008	-	<0.56	4.35	
<b>Canada, CHMS cycle 5</b>						
Tous (3-79 ans)	2610	2016-2017	0.370	0.320	4.40	
<b>Diéthylidithiophosphate (DEDTP)</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			µg/l	µg/l	µg/l	
<b>HBM-WAL</b>						
Tous	541	2019-2020	<0.5	<0.5	<0.5	
<b>Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020</b>						
Enfants (9-12 ans)	240	2016		<0.5	0.590	
<b>France (NNS), Frery et al., 2012</b>						
tous (18-74 ans)	392	2006-2007	0.020	0.013	0.358	
<b>France; Elfe, Dereumeaux et al., 2016</b>						
Femmes (enceintes)	1036	2011		<0.02	<0.02	
<b>Espagne, Melgarejo 2015</b>						
Hommes (25-38 ans)	119	2012-2013		0.070	0.070	
<b>Allemagne, Heudorf et al., 2006</b>						
Tous (adultes et enfants)	1149	1998		<1	<1	
Enfants (2-17 ans) (GerES)	363	2001-2002		<1	<1	
<b>Italie, Aprea et al., 1996</b>						
Adultes	124	<1996	2.55 µg/g cr	2.25 µg/g cr		
<b>USA (NHANES), CDC 2009</b>						
Tous	2585	2007-2008	-	<0.39	<0.39	
<b>Canada, CHMS cycle 5</b>						
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 diméthylidithiophosphates (DMTP, DMDTP)

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

<b>Diméthylthiophosphate (DMTP)</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			µg/l	µg/l	µg/l	
<b>HBM-WAL</b>						
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
<b>Belgique (Flandre), Schoeters et al., 2012</b>						
Adolescents (14-15 ans)	203	2007-2011	5.80			
Adultes (20-40 ans)	181	2007-2011	5.00			
<b>Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020</b>						
Enfants (9-12 ans)	216	2016		1.01	13.7	
<b>France (NNS), Frey</b>						
tous (18-74 ans)	392	2006-2007	6.65	6.16	63.0	
<b>France; Elfe, Dereumeaux et al., 2016</b>						
Femmes (enceintes)	1036	2011		<0.6	2.53	
<b>Espagne (INMA), Llop et al., 2017</b>						
Femmes (enceintes)	855	2003-2006	2.39			
<b>Espagne, Melgarejo 2015</b>						
Hommes (25-38 ans)	119	2012-2013		1.40	18.9	
<b>Allemagne, Heudorf et al., 2006</b>						
Tous (adultes et enfants)	1149	1998		15.2	161.8	160
Enfants (2-17 ans) (GerES)	363	2001-2002		8.40	124.0	
<b>Italie, Aprea et al., 1996</b>						
Adultes	124	<1996	10.04 µg/g cr	10.22 µg/g cr		
<b>USA (NHANES), CDC 2009</b>						
Tous	2591	2007-2008	2.28	2.10	36.8	
Adolescents (12-19 ans)	391	2007-2008	2.10	1.82	31.5	
Adultes (>20 ans)	1179	2007-2008	2.03	1.90	30.6	
<b>Canada, CHMS cycle 5</b>						
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

<b>Diméthylthiophosphate (DMDTP)</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			µg/l	µg/l	µg/l	
<b>HBM-WAL</b>						
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
<b>Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020</b>						
Enfants (9-12 ans)	216	2016		<0.5	1.31	
<b>France (NNS), Frery</b>						
tous (18-74 ans)	392	2006-2007	0.760	0.640	6.94	
<b>France; Elfe, Dereumeaux et al., 2016</b>						
Femmes (enceintes)	1036	2011		<0.4	4.16	
<b>Espagne (INMA), Llop et al., 2017</b>						
Femmes (enceintes)	855	2003-2006	0.07			
<b>Espagne, Melgarejo 2015</b>						
Hommes (25-38 ans)	119	2012-2013		0.070	0.300	
<b>Allemagne, Heudorf et al., 2006</b>						
Tous (adultes et enfants)	1149	1998		<1	11.9	
Enfants (2-17 ans) (GerES)	363	2001-2002		<1	10.8	
<b>Italie, Aprea et al., 1996</b>						
Adultes	124	<1996	3.33 µg/g cr	3.87 µg/g cr		
<b>USA (NHANES), CDC 2009</b>						
Tous	2571	2007-2008	-	<0.51	5.60	
Adolescents (12-19 ans)	384	2007-2008	-	<0.51	2.45	
Adultes (>20 ans)	1172	2007-2008	-	<0.51	4.27	
<b>Canada, CHMS cycle 5</b>						
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 chlopyrifos.

**Tableau 16:** Concentrations urinaires en TCPY mesurées dans différentes études

<b>Trichloropyridinol (TCPY)</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			µg/l	µg/l	µg/l	
<b>HBM-WAL</b>						
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
<b>Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020</b>						
Enfants (9-12 ans)	229	2016		3.87	12.1	
<b>Espagne (INMA), Llop et al., 2017</b>						
Femmes (enceintes)	855	2003-2006	0.49			
<b>Espagne, Gari et al., 2018</b>						
Adultes	125	?	3.70	3.20		
<b>USA (NHANES), CDC 2009</b>						
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	
<b>Canada, CHMS cycle 4</b>						
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 mesurées dans l'urine des enfants recrutés en 2016 (projet EXPOPESTEN). Cette diminution importante est probablement le résultat de la décision européenne de ne pas renouveler l'autorisation du chlorpyrifos et du chlorpyrifos-méthyl 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.

#### 4.1.6. 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 c-DCCA, t-DCCA, 4F-3-PBA, DBCA, et 3-PBA mesurées dans différentes études

<b>c-DCCA</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			µg/l	µg/l	µg/l	
<b>HBM-WAL</b>						
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
<b>Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020</b>						
Enfants (9-12 ans)	206	2016		<0.5	2.01	
<b>France (NNS), Frery et al., 2012</b>						
tous (18-74 ans)	396	2006-2007	0.170	0.130	1.42	
<b>France, ELFE, Dereumeaux et al., 2018</b>						
Femmes (enceintes)	1056	2011	0.220	0.200	1.05	
<b>Allemagne, Heudorf et al., 2006</b>						
Tous (adultes et enfants)	1177	1998		<0.20	0.510	
Enfants (2-17 ans) (GerES)	396	2001-2002		0.110	0.740	
<b>Allemagne, Egerer et al., 2004</b>						
Adultes	211	2003-2004		<0.03	0.160	1.00
<b>Canada, CHMS cycle 5</b>						
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	-	
<b>t-DCCA</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			µg/l	µg/l	µg/l	
<b>HBM-WAL</b>						
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
<b>Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020</b>						
Enfants (9-12 ans)	220	2016		0.66	4.29	
<b>France (NNS), Frery et al., 2012</b>						
tous (18-74 ans)	396	2006-2007	0.39	0.31	3.85	
<b>France, ELFE, Dereumeaux et al., 2018</b>						
Femmes (enceintes)	1077	2011	0.38	0.34	2.62	
<b>Allemagne, Heudorf et al., 2006</b>						
Tous (adultes et enfants)	1177	1998		0.24	1.43	2.00
Enfants (2-17 ans) (GerES)	396	2001-2002		0.19	1.73	
<b>Allemagne, Egerer et al., 2004</b>						
Adultes	211	2003-2004		<0.03	0.37	
<b>USA (NHANES), CDC 2009</b>						
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	
<b>Canada, CHMS cycle 5</b>						
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	-	

Tableau 17 suite

<b>4F-3-PBA</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			µg/l	µg/l	µg/l	
<b>HBM-WAL</b>						
Tous	542	2019-2020		<0.11	<0.11	
<b>Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020</b>						
Enfants (9-12 ans)	229	2016		<0.11	<0.11	
<b>France (NNS), Frery et al., 2012</b>						
tous (18-74 ans)	396	2006-2007	<0.1	<0.1	0.820	
<b>France, ELFE, Dereumeaux et al., 2018</b>						
Femmes (enceintes)	1059	2011	<0.015	<0.015	0.020	
<b>Espagne, Gari et al., 2018</b>						
Adultes	125	?	0.088	0.076		
<b>Allemagne, Heudorf et al., 2006</b>						
Tous (adultes et enfants)	1177	1998		<0.2	0.27	
Enfants (2-17 ans) (GerES)	396	2001-2002		<0.1	<0.1	
<b>USA (NHANES), CDC 2009</b>						
Tous	2747	2009-2010	-	<0.1	<0.1	
<b>Canada, CHMS cycle 5</b>						
Tous (3-79 ans)	2649	2016-2017	-	<0.08	0.08	
<b>DBCA</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			µg/l	µg/l	µg/l	
<b>HBM-WAL</b>						
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
<b>France (NNS), Frery et al., 2012</b>						
tous (18-74 ans)	396	2006-2007	0.370	0.360	2.33	
<b>France, ELFE, Dereumeaux et al., 2018</b>						
Femmes (enceintes)	1077	2011	0.330	0.330	1.49	
<b>Allemagne, Heudorf et al., 2006</b>						
Tous (adultes et enfants)	1177	1998		<0.1	0.300	
Enfants (2-17 ans) (GerES)	396	2001-2002		<0.1	0.520	
<b>Allemagne, Egerer et al., 2004</b>						
Adultes	211	2003-2004		<0.02	0.140	
<b>USA (NHANES), CDC 2009</b>						
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	
<b>Canada, CHMS cycle 5</b>						
Tous (3-79 ans)	2633	2016-2017	0.019	0.019	0.180	
Femmes	1328	2016-2017	0.020	0.019	0.170	
Hommes	1305	2016-2018	0.019	0.018	0.200	
Adolescents (12-19 ans)	521	2016-2017	0.026	0.024	0.180	
Adultes (20-39 ans)	363	2016-2017	0.019	0.019	0.150	

Tableau 17 suite

<b>3-PBA</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			µg/l	µg/l	µg/l	
<b>HBM-WAL</b>						
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
<b>Belgique (Wallonie), Pirard et al., 2020</b>						
Enfants (9-12 ans)	229	2016		0.98	5.33	
<b>France (NNS), Frery et al., 2012</b>						
tous (18-74 ans)	396	2006-2007	0.74	0.65	4.36	
<b>France, ELFE, Dereumeaux et al., 2018</b>						
Femmes (enceintes)	1077	2011	0.36	0.36	1.89	
<b>Espagne, Gari et al., 2018</b>						
Adultes	125	?	2.50	1.50		
<b>Allemagne, Heudorf et al., 2006</b>						
Adultes	211	2003-2004	0.040	0.51		2
Enfants (2-17 ans) (GerES)	396	2001-2002		0.29	2.35	
<b>USA (NHANES), CDC 2009</b>						
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	
<b>Canada, CHMS cycle 5</b>						
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).

## 4.2. Biomarqueurs sanguins

### 4.2.1. 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 réglementation) 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)

<b>PCB-138</b>						
	N TOT	Années	MG ng/g lip (µg/l)	P50 ng/g lip (µg/l)	P95 ng/g lip (µg/l)	RV <sub>95</sub> ng/g lip (µg/l)
<b>HBM-WAL</b>						
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)	
<b>Belgique (Liège), Pirard et al., 2018</b>						
Adultes (>18 ans)	251	2015		<LOQ (<0.15)		
<b>Suède, Bjeremo et al., 2013</b>						
Adultes (>18 ans)	267	2010-2011	26.2			
<b>Danemark, Bjerregaard-Olesen et al., 2017</b>						
Femmes enceintes	197	2011 et 2013		11 et 8		
<b>USA (NHANES), CDC 2009</b>						
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

<b>PCB-153</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			ng/g lip (µg/l)	ng/g lip (µg/l)	ng/g lip (µg/l)	ng/g lip (µg/l)
<b>HBM-WAL</b>						
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
<b>Belgique (Liège), Pirard et al., 2018</b>						
Adultes (>18 ans)	251	2015		53.78 (0.36)		
<b>Suède, Bjeremo et al., 2013</b>						
Adultes (>18 ans)	267	2010-2011	63.8			
<b>Danemark, Bjerregaard-Olesen et al., 2017</b>						
Femmes enceintes	197	2011 et 2013		22.3 et 18		
<b>USA (NHANES), CDC 2009</b>						
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			
<b>PCB-180</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			ng/g lip (µg/l)	ng/g lip (µg/l)	ng/g lip (µg/l)	ng/g lip (µg/l)
<b>HBM-WAL</b>						
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
<b>Belgique (Liège), Pirard et al., 2018</b>						
Adultes (>18 ans)	251	2015		41.07 (0.28)		
<b>Suède, Bjeremo et al., 2013</b>						
Adultes (>18 ans)	267	2010-2011	49.8			
<b>Danemark, Bjerregaard-Olesen et al., 2017</b>						
Femmes enceintes	197	2011 et 2013		13.9 et 12		
<b>USA (NHANES), CDC 2009</b>						
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**

<b>Somme PCBs</b>						
<b>HBM-WAL</b>						
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)	
<b>Belgique (Flandre), Schoeters et al., 2012</b>						
Nouveaux-nés	205	2008-2009	59 (0.12)			
Adolescents (14-15 ans)	205	2008-2009	50 (0.22)			
<b>Belgique (Flandre), FLESH IV</b>						
Adolescents (14-15 ans)	428	2017-2018	(0.094)			
<b>Espagne (BIOAMBIANT.ES), Huetos et al., 2014</b>						
Adultes (>18 ans)	1880	2009-2010	135.4		482.2	
<b>Suède, Bjeremo et al., 2013</b>						
Adultes (>18 ans)	267	2010-2011	139.8			

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

<b>Hexachlorobenzène</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			ng/g lip (µg/l)	ng/g lip (µg/l)	ng/g lip (µg/l)	ng/g lip (µg/l)
<b>HBM-WAL</b>						
Tous (12-19 ans et 20-39 ans)	536	2019-2020	<LOQ (<0.08)	<LOQ (<0.08)	22.14 (0.11)	
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)	
<b>Belgique (Liège), Pirard et al., 2018</b>						
Adultes (>18 ans)	251	2015		<LOQ (<0.08)		
<b>Belgique (Flandre), Schoeters et al., 2012</b>						
Nouveaux-nés	205	2008-2009	9.30			
Adolescents (14-15 ans)	205	2008-2009	8.33 (0.04)			
<b>Belgique (Flandre), FLESH IV</b>						
Adolescents (14-15 ans)	428	2017-2018		7.50	14.10	
<b>Suède, Bjeremo et al., 2013</b>						
Adultes (>18 ans)	267	2010-2011	10.7			
<b>Danemark, Bjerregaard-Olesen et al., 2017</b>						
Femmes enceintes	197	2011 et 2013		11.8 et 10.0		
<b>USA (NHANES), CDC 2009</b>						
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

<b>4,4'-DDE</b>						
	N TOT	Années	MG	P50	P95	RV <sub>95</sub>
			ng/g lip (µg/l)	ng/g lip (µg/l)	ng/g lip (µg/l)	ng/g lip (µg/l)
<b>HBM-WAL</b>						
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)	
<b>Belgique (Liège), Pirard et al., 2018</b>						
Adultes (>18 ans)	251	2015		<LOQ (<0.40)		
<b>Belgique (Flandre), Schoeters et al., 2012</b>						
Nouveaux-nés	205	2008-2009	70 (0.31)			
Adolescents (14-15 ans)	205	2008-2009	78 (0.16)			
<b>Belgique (Flandre), FLESH IV</b>						
Adolescents (14-15 ans)	428	2017-2018		42.70	208.90	
<b>Suède, Bjeremo et al., 2013</b>						
Adultes (>18 ans)	267	2010-2011	61.4			
<b>Danemark, Bjerregaard-Olesen et al., 2017</b>						
Femmes enceintes	197	2011 et 2013		41.1 et 35.0		
<b>USA (NHANES), CDC 2009</b>						
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.

## 5. CONCLUSIONS

Ce rapport présente les données de référence obtenues lors du premier programme de Biomonitoring Humain Wallon réalisé en 2019-2020 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 2 tranches d'âge: les adolescents (12-19 ans) et les jeunes adultes (20-39 ans). 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.

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 glyphosate 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-méthyl en Europe fin 2019.

Sur les 14 pesticides organochlorés initialement dosés, seul l'hexachlorobenzène, le 4,4'-DDE, et le bêta-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.

## RÉFÉRENCES

---

- Agency for Toxic Substances and Disease Registry (ATSDR), 1999. Toxicological profile for mercury. Available online: <https://www.atsdr.cdc.gov/toxprofiles/tp46.pdf>
- 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](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., Jacob III, 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>
- Barregaard, L. Biological monitoring of exposure to mercury vapor. *Scand. J. Work Environ. Health* 1993, 19, 45-49.
- 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.; 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>.
- 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>
- 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., Rüter, 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 of Hygiene 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., Gorla, 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
- Egerer, E., Roßbach, B., Muttray, A., Schneider, M., Letzel, S. Biomonitoring of pyrethroid metabolites in environmental medicine. *Umweltmed. Forsch. Prax.* 2004, 9, p. 235
- 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>.
- 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 Belleaux, B., Van Larebeke, N., Den Hond, H. Determinants of bisphenol A and phthalate metabolites in urine of Flemish adolescents. *Environ. Res.* 2014, 134, 110-117.

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., Fauroid, 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>

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

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>.

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.

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>

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 men from 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>.

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., 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>.

Rancièrè 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.; Pigni, 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>.

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>

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>

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., 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>

Stajanko, 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.

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.

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](http://www.euro.who.int/_data/assets/pdf_file/0009/78660/e78963.pdf).

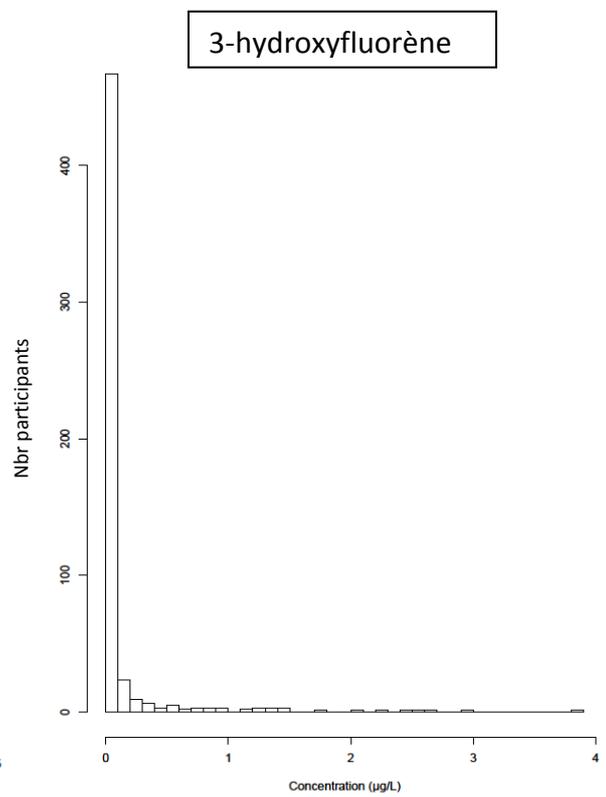
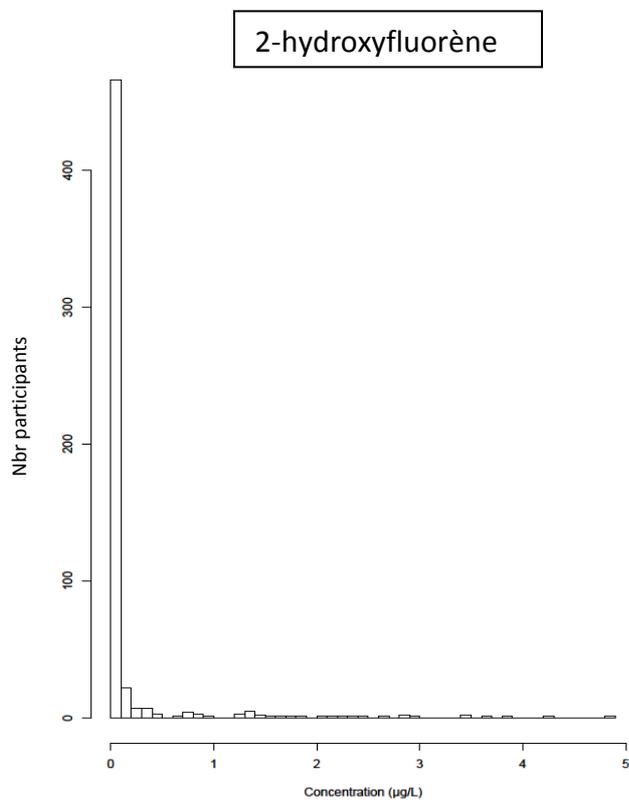
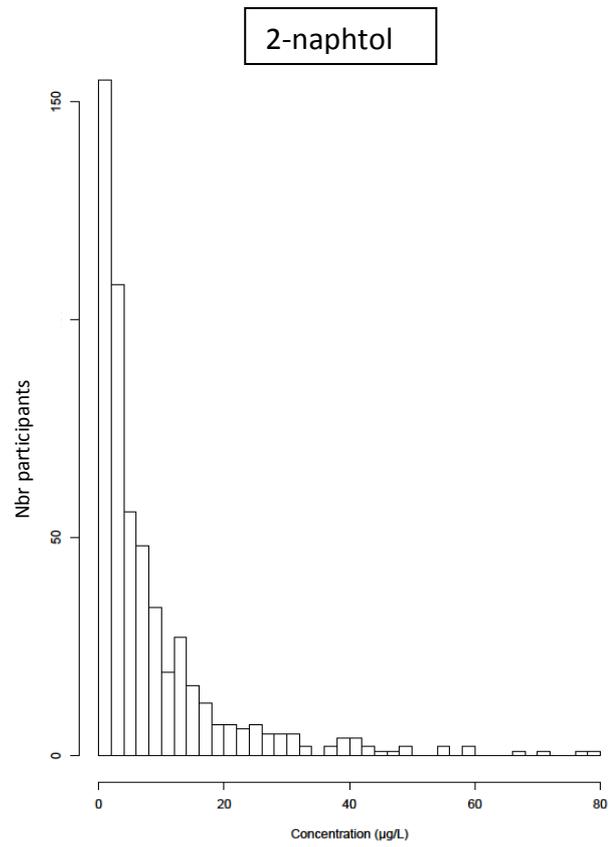
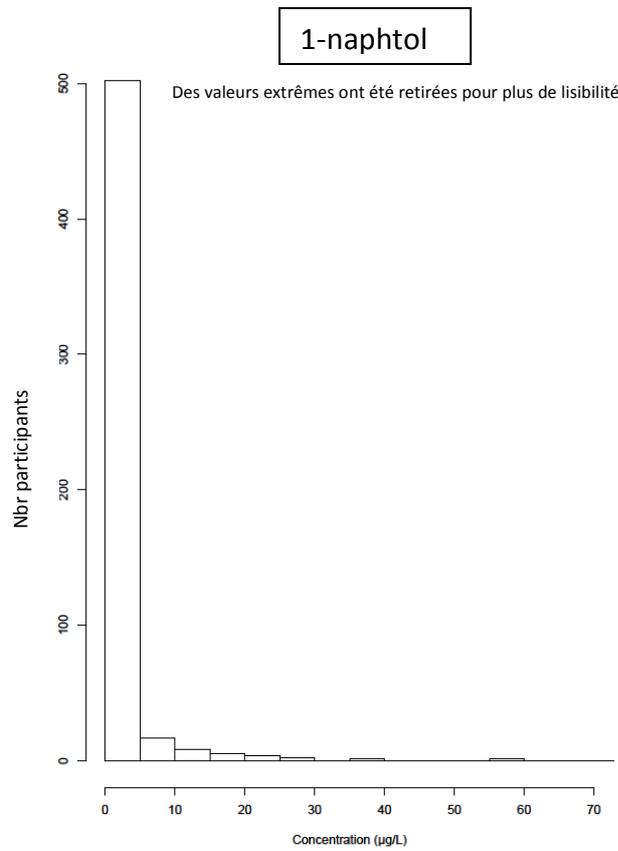
Wilhelm, M.; Hardt, J.; Schulz, C.; Angerer, J. New Reference Value and the Background Exposure for the PAH Metabolites 1-Hydroxypyrene and 1- and 2-Naphthol in Urine of the General Population in Germany: Basis for Validation of Human Biomonitoring Data in Environmental Medicine. *International Journal of Hygiene and Environmental Health* 2008, 211 (3), 447–453. <https://doi.org/10.1016/j.ijheh.2007.09.002>.

## **ANNEXES**

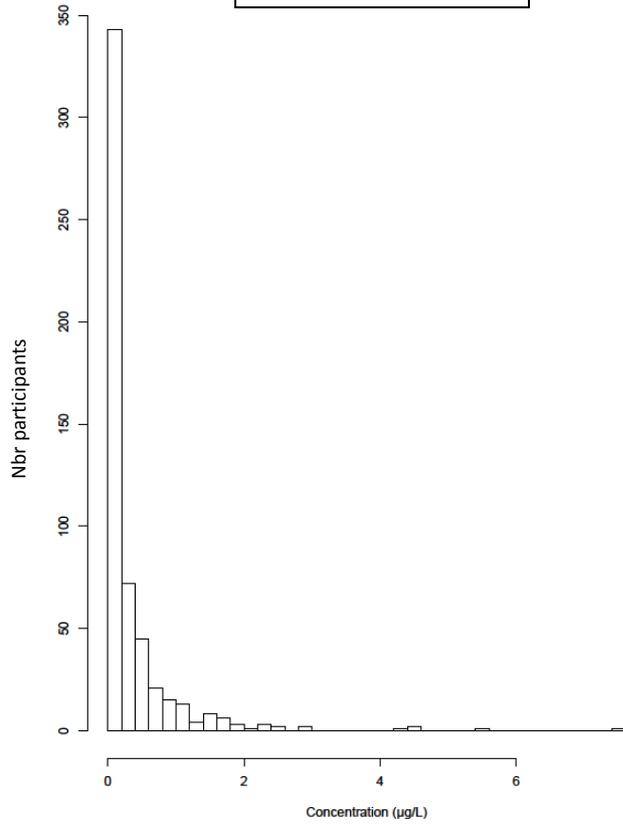
ANNEXE 1 - Histogrammes des distributions de valeurs dans la population étudiée pour chacun des biomarqueurs étudiés.

ANNEXE 2 - Statistiques descriptives pour les biomarqueurs urinaires ajustés par rapport à la créatinine (en  $\mu\text{g/g}$  créatinine)

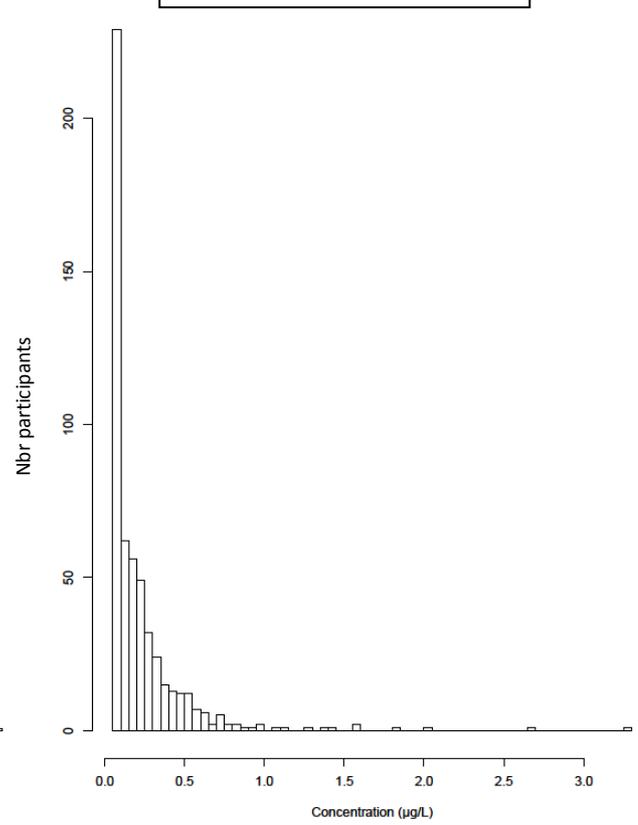
**Annexe 1 : Histogrammes des distributions de valeurs mesurées dans la population étudiée**



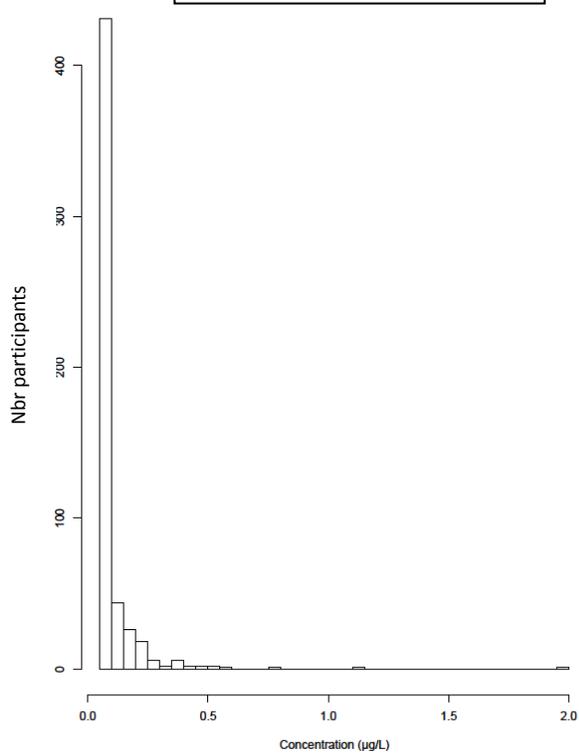
9-hydroxyfluorène



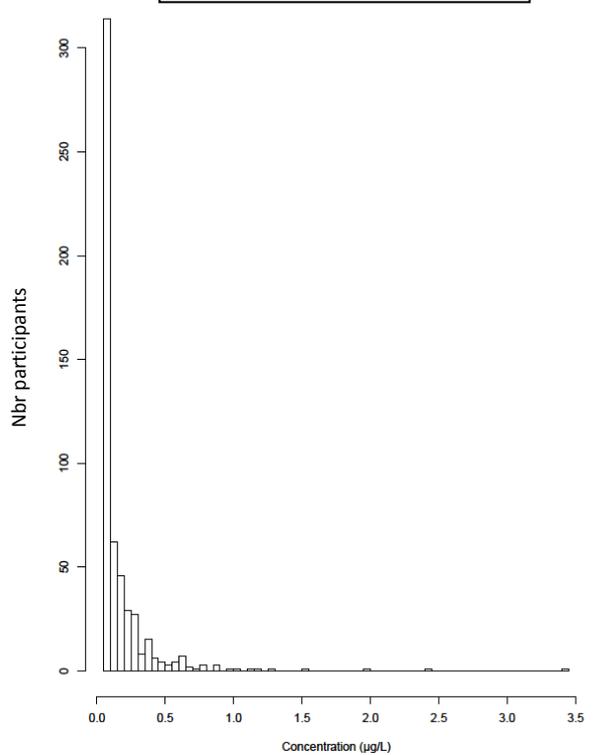
1-hydroxyphénanthrène



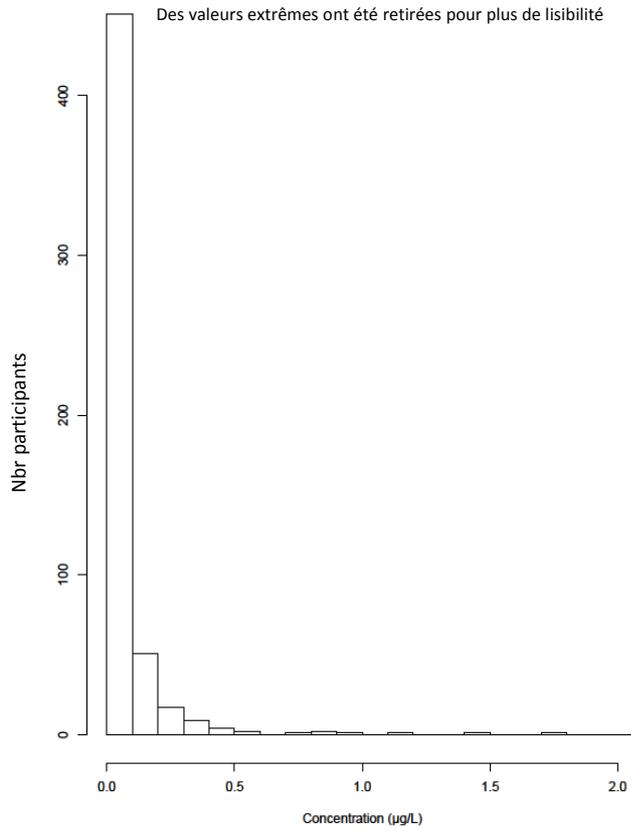
2-hydroxyphénanthrène



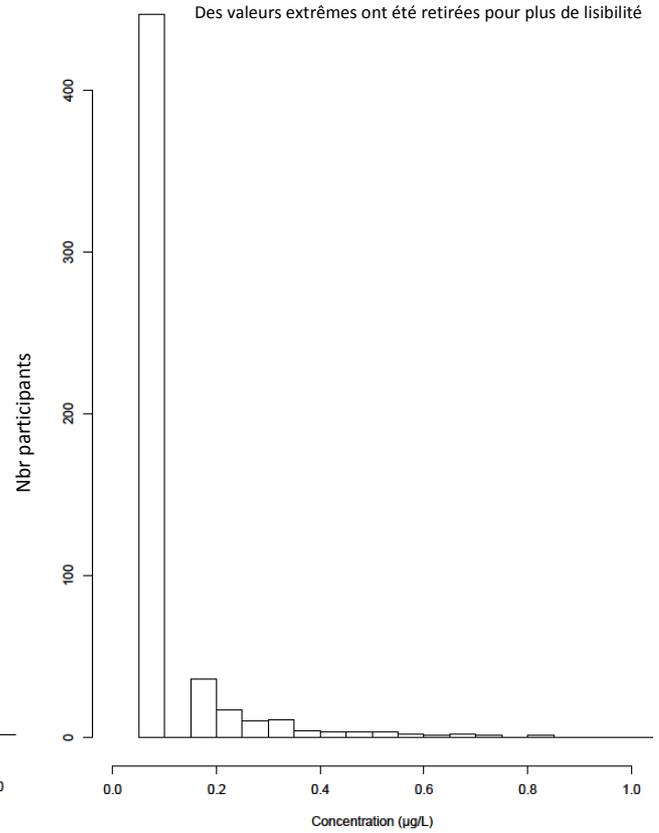
3-hydroxyphénanthrène



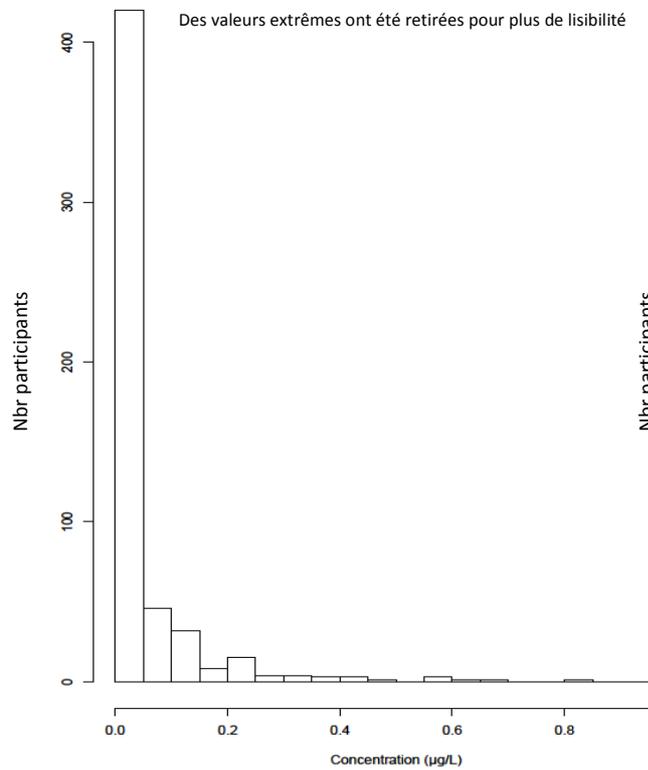
4-hydroxyphénanthrène



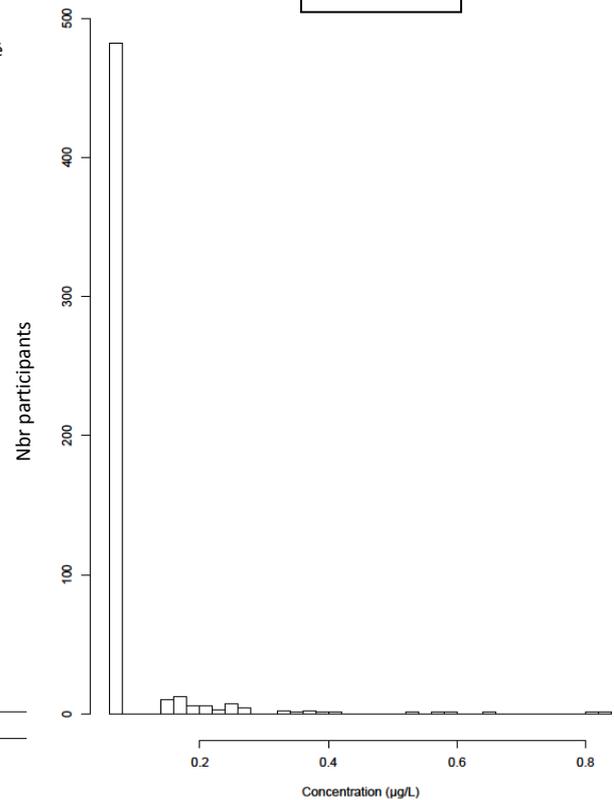
1-hydroxypyrrène



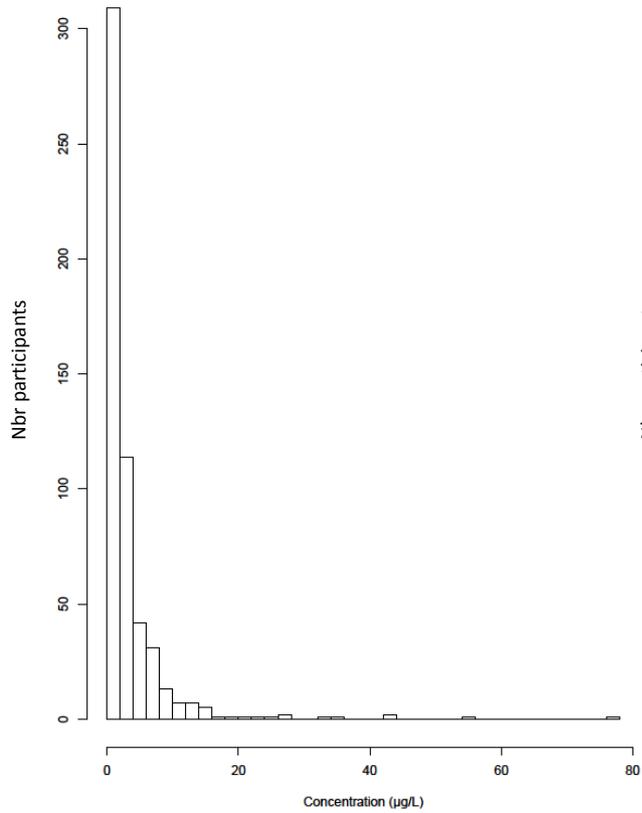
Glyphosate



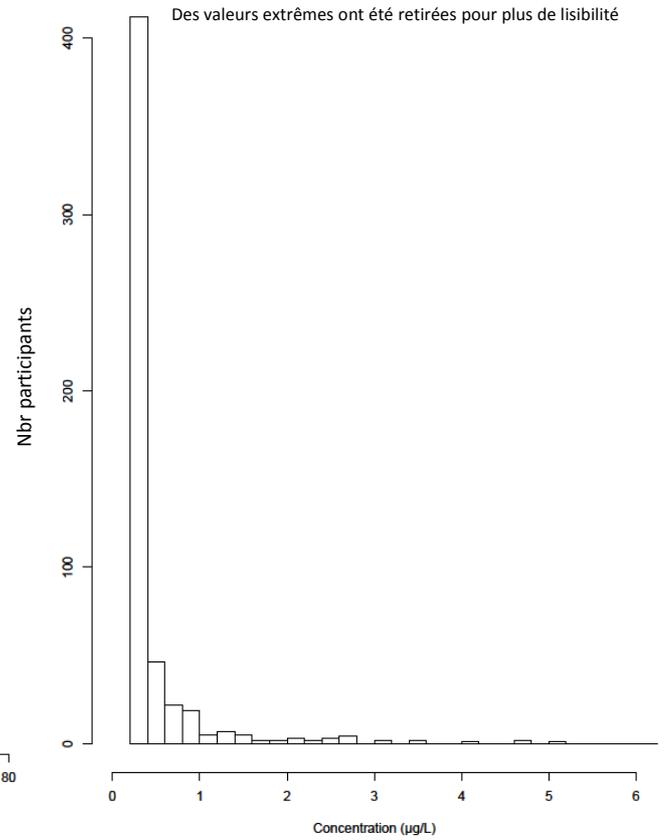
AMPA



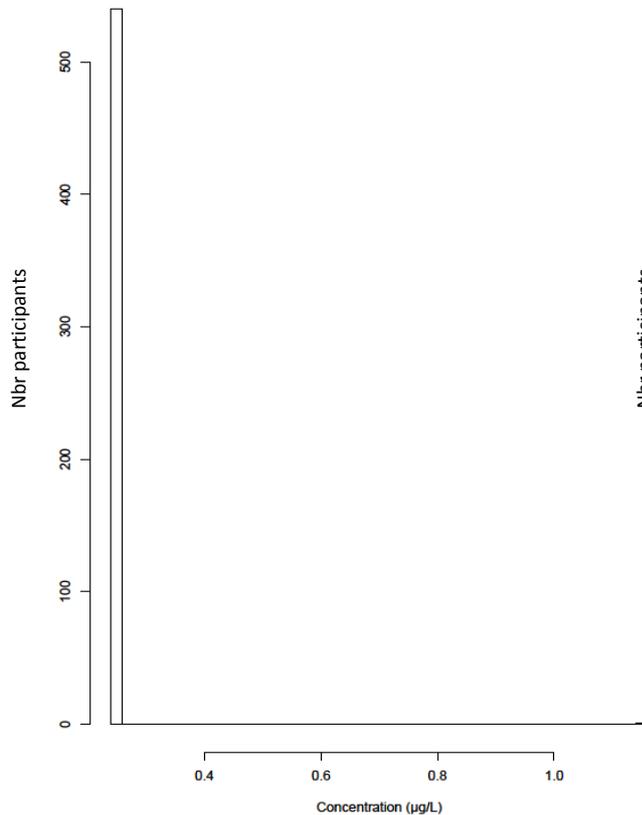
DEP



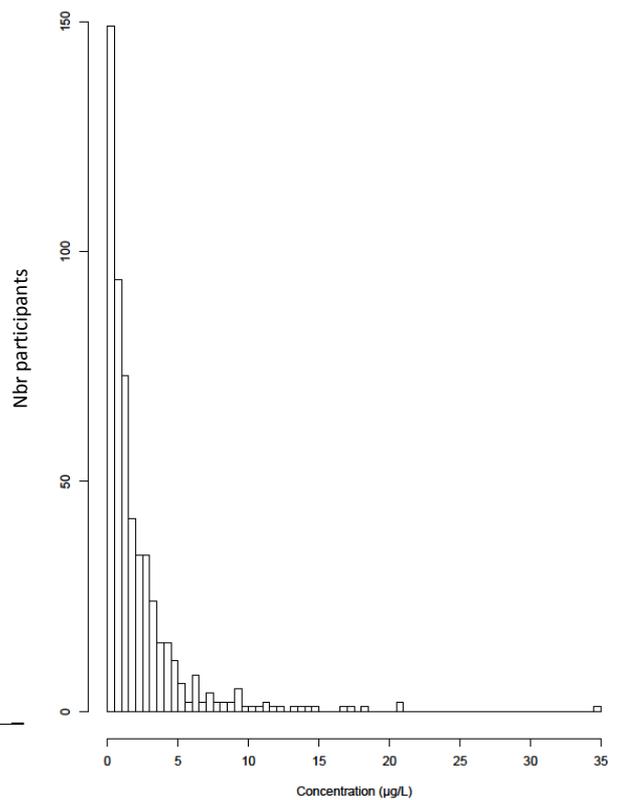
DETP



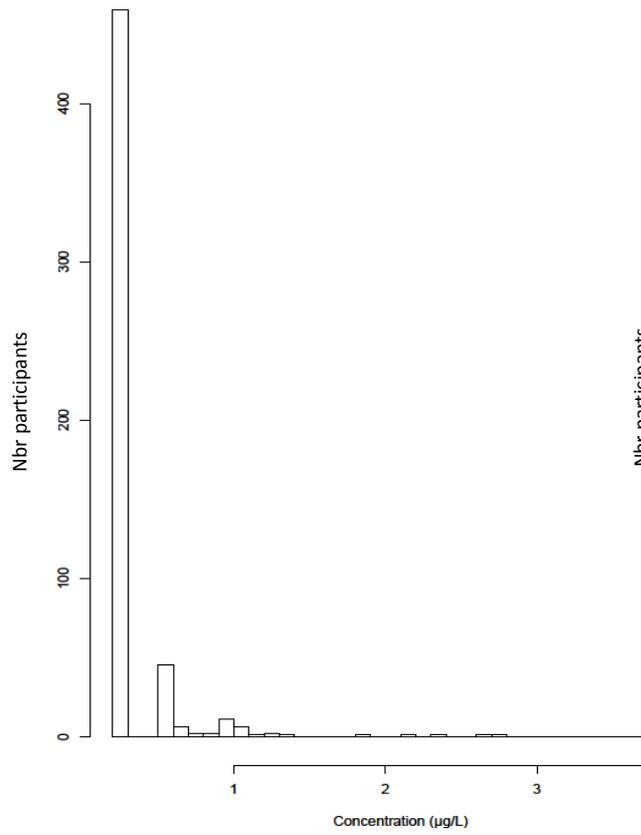
DEDTP



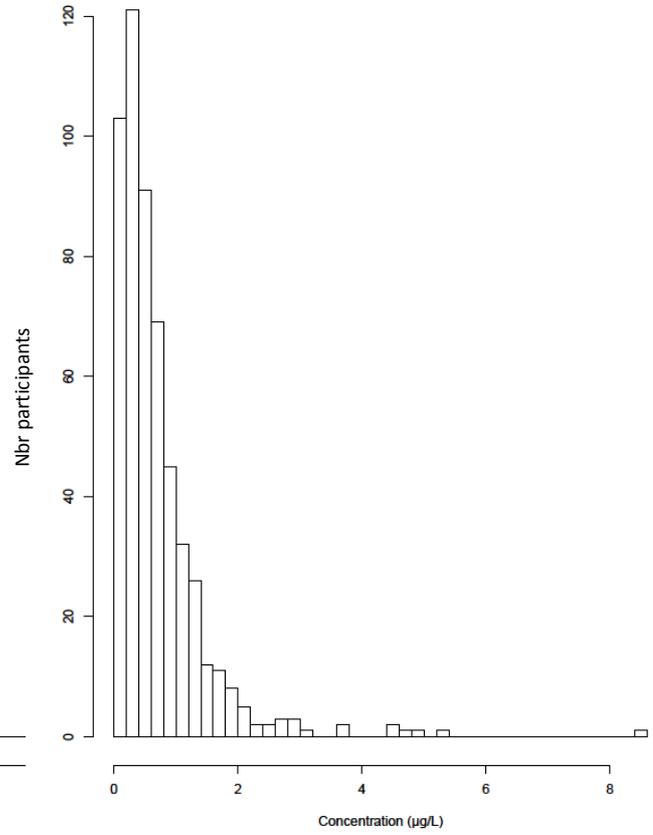
DMTP



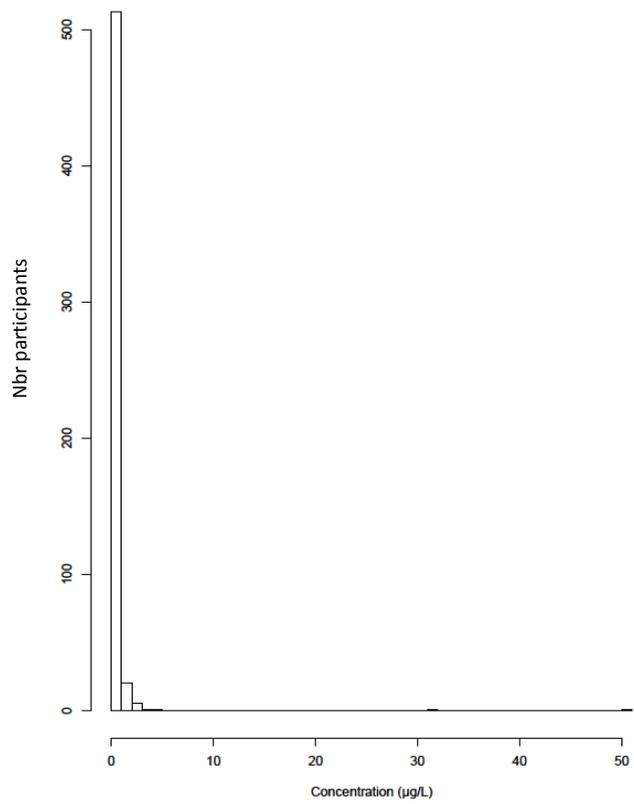
DMDTP



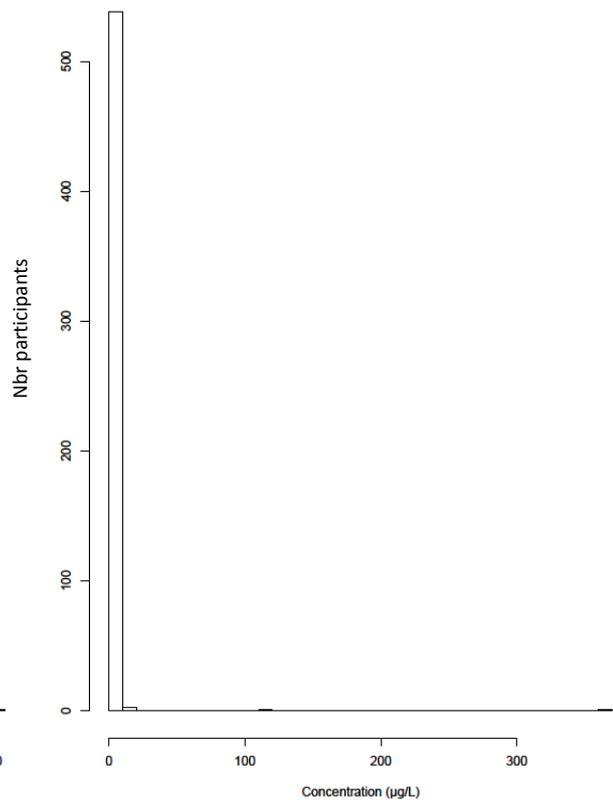
TCPY



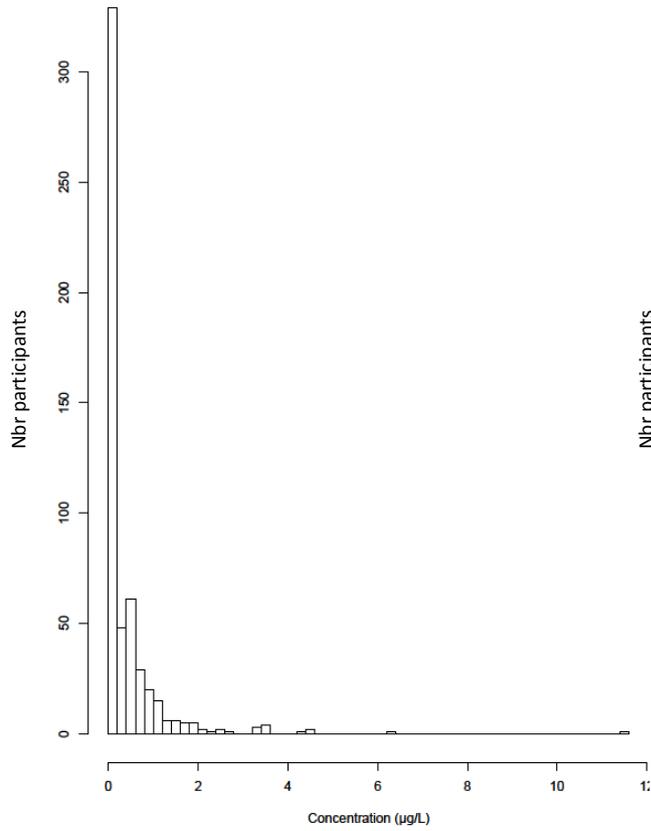
c-DCCA



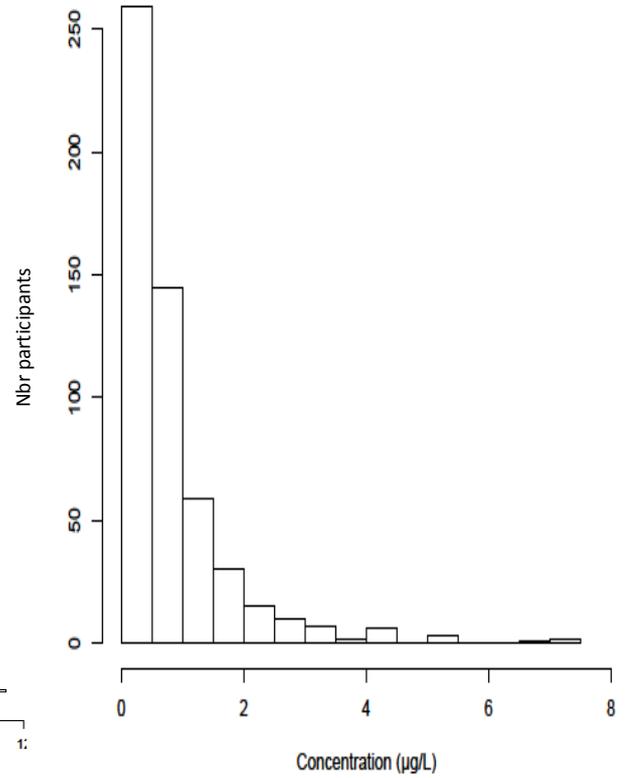
t-DCCA



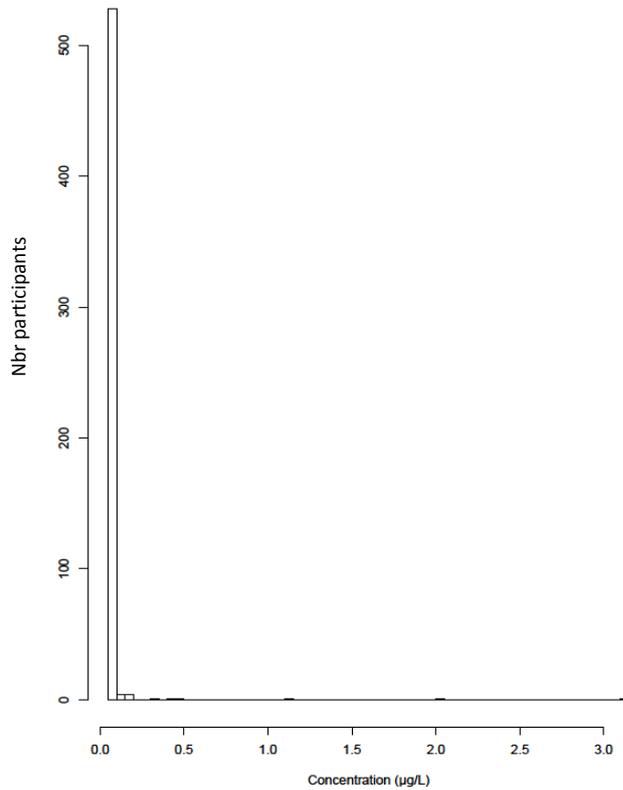
DBCA



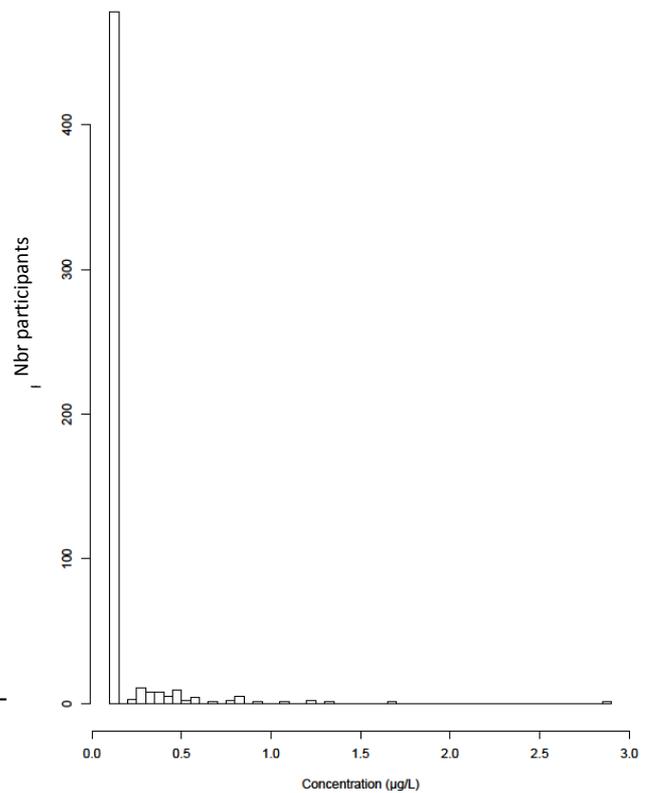
3-PBA



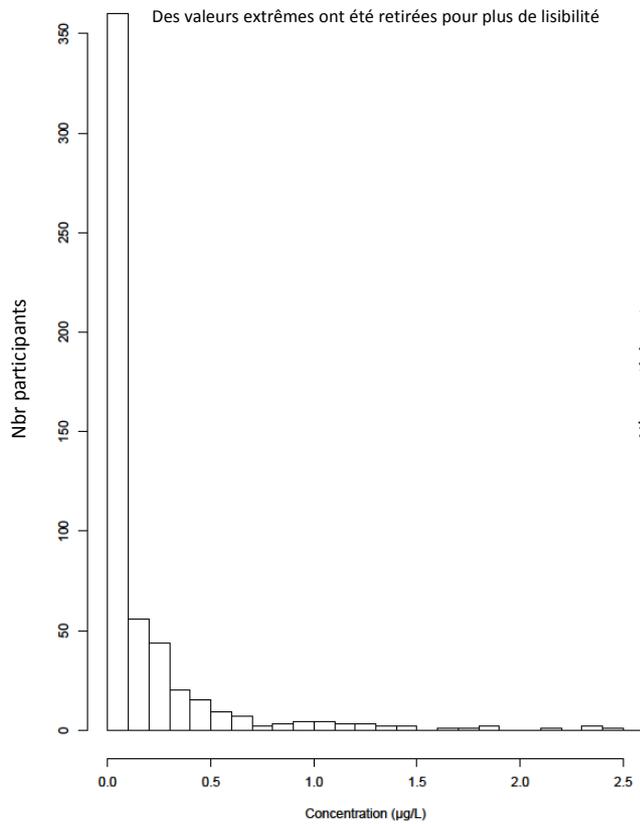
4-F-3-PBA



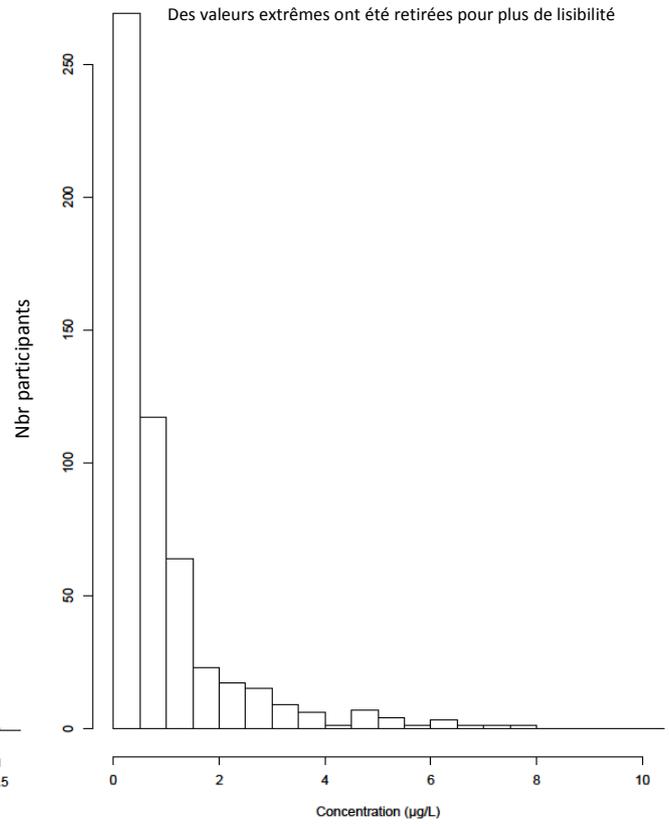
Hg



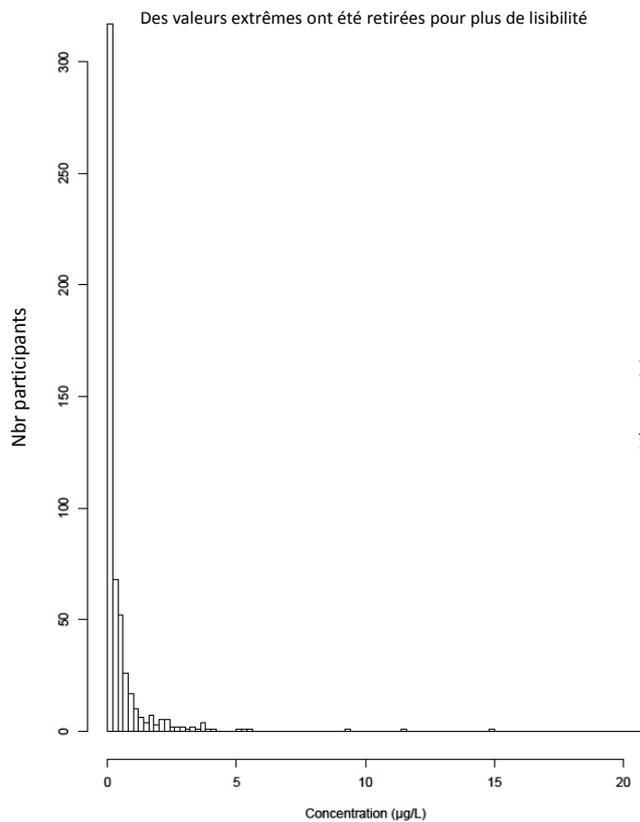
**BPF**



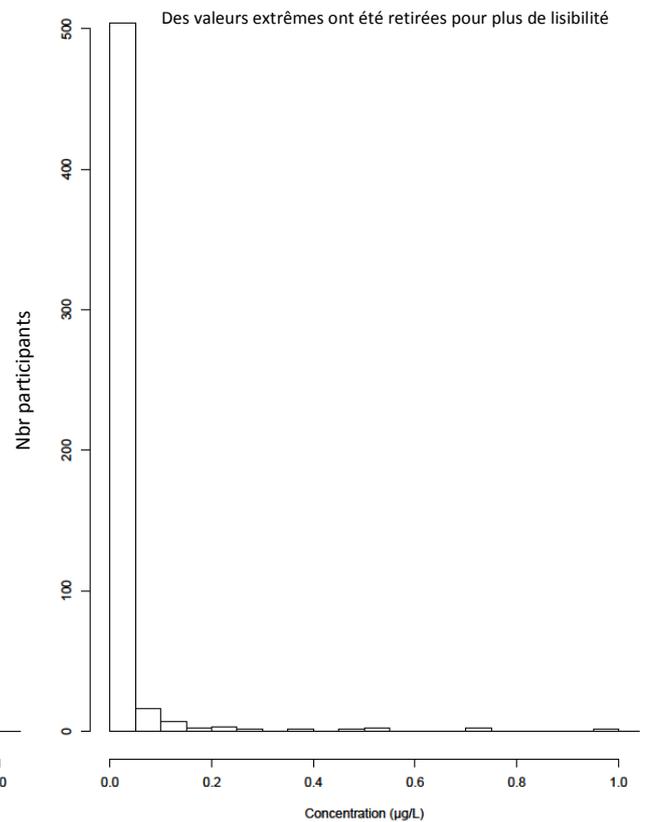
**BPA**



**BPS**



**BPZ**



**Annexe 2 : Statistiques descriptives pour les biomarqueurs urinaires ajustés par rapport à la créatinine (en µg/g créatinine)\***

	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	CI 95% inf.	CI 95% sup.						
<b>Hg</b>																
Tous	537	0.25	11.4	88.6	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.42	0.60	0.57	0.78
<b>Groupes d'âge</b>																
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
<b>Amalgames</b>																
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
<b>BISPHENOLS</b>																
<b>BPP</b>																
Tous	537	0.09	0.7	99.3												
<b>BPF</b>																
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
<b>BPA</b>																
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
<b>Genre</b>																
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
<b>BPS</b>																
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
<b>Groupes d'âge</b>																
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
<b>BPZ</b>																
Tous	537	0.06	7.2	92.8	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.16	<LOQ	0.24
<b>Groupes d'âge</b>																
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
<b>HYDROCARBURES AROMATIQUES POLYCYCLIQUES (HAPs)</b>																
<b>1-naphtol</b>																
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
<b>Genre</b>																
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
<b>Statut tabagique</b>																
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
<b>2-naphtol</b>																
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
<b>Genre</b>																
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

## Annexe 2 : 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.
<b>Groupes d'âge</b>																
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
<b>Statut tabagique</b>																
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
<b>2-hydroxyfluorène</b>																
Tous	537	0.10	14.2	85.8	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.26	1.07	0.73	2.14
<b>Genre</b>																
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
<b>Groupes d'âge</b>																
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
<b>Statut tabagique</b>																
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
<b>3-hydroxyfluorène</b>																
Tous	537	0.10	14.0	86.0	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.26	0.60	0.46	1.32
<b>Groupes d'âge</b>																
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
<b>Statut tabagique</b>																
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
<b>9-hydroxyfluorène</b>																
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
<b>1-hydroxyphénanthrène</b>																
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
<b>Statut tabagique</b>																
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
<b>2-hydroxyphénanthrène</b>																
Tous	537	0.10	20.6	79.4	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.19	0.28	0.25	0.38
<b>Genre</b>																
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
<b>Groupes d'âge</b>																
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
<b>Statut tabagique</b>																
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 2 : Suite

	N TOT	LOQ	N>LOQ	N<LOQ	Moyenne géométrique (µg/g creat)			P5	P10	P25	P50	P75	P90	P95	P95 µg/g creat		
					Moyenne	CI 95% inf.	CI 95% sup.								CI 95% inf.	CI 95% sup.	
		µg/l	%	%				µg/g creat	µg/g creat	µg/g creat							
<b>3-hydroxyphénanthrène</b>																	
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	
<b>Genre</b>																	
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	
<b>Statut tabagique</b>																	
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	
<b>4-hydroxyphénanthrène</b>																	
Tous	537	0.10	16.8	83.2	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.21	0.30	0.28	0.43	
<b>1-hydroxypyrene</b>																	
Tous	537	0.15	17.7	82.3	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.26	0.36	0.35	0.52	
<b>Statut tabagique</b>																	
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	
<b>GLYPHOSATE ET MÉTABOLITE</b>																	
<b>Glyphosate</b>																	
Tous	537	0.08	22.7	77.3	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.15	0.22	0.20	0.29	
<b>Genre</b>																	
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	
<b>Groupes d'âge</b>																	
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	
<b>Acide aminométhylphosphonique (AMPA)</b>																	
Tous	537	0.15	11.2	88.8	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.23	0.30	0.29	0.44	
<b>PESTICIDES ORGANOPHOSPHORES</b>																	
<b>Diéthylphosphate (DEP)</b>																	
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	
<b>Groupes d'âge</b>																	
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	
<b>Diéthylthiophosphate (DETP)</b>																	
Tous	535	0.50	18.9	81.1	<0.50	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	1.00	1.68	1.50	3.32	
<b>Diéthylidithiophosphate (DEDTP)</b>																	
Tous	535	0.50	0.2	99.8													
<b>Diméthylthiophosphate (DMTP)</b>																	
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	
<b>Groupes d'âge</b>																	
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 2 : Suite

	N TOT	LOQ µg/l	N>LOQ %	N<LOQ %	Moyenne géométrique (µg/g creat)			P5 µg/g creat	P10 µg/g creat	P25 µg/g creat	P50 µg/g creat	P75 µg/g creat	P90 µg/g creat	P95 µg/g creat	P95 µg/g creat	
					Moyenne	CI 95% inf.	CI 95% sup.								CI 95% inf.	CI 95% sup.
<b>Diméthylthiophosphate (DMDTP)</b>																
Tous	535	0.50	8.9	91.1	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	1.21	1.19	1.79
<b>Groupes d'âge</b>																
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
<b>Trichloropyridinol (TCPY)</b>																
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
<b>Genre</b>																
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
<b>Groupes d'âge</b>																
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
<b>PESTICIDES PYRETHRINOIDES</b>																
<b>c-DCCA</b>																
Tous	542	0.20	38.0	62.0	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.33	0.60	0.77	0.75	1.25
<b>Groupes d'âge</b>																
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
<b>t-DCCA</b>																
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
<b>Genre</b>																
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
<b>Groupes d'âge</b>																
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
<b>DBCA</b>																
Tous	542	0.30	39.3	60.7	<LOQ	-	-	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.47	0.77	1.23	1.09	1.96
<b>Genre</b>																
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
<b>Groupes d'âge</b>																
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
<b>3-PBA</b>																
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
<b>Genre</b>																
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
<b>Groupes d'âge</b>																
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
<b>4-F-3-PBA</b>																
Tous	542	0.11	2.4	97.6												

\*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