



EXPOSITION INDIVIDUELLE AU BENZENE : PREMIERS RESULTATS DE L'ETUDE " SENTINELLES DE L'AIR " EN REGION NORD-PAS DE CALAIS

INTRODUCTION

L'étude " Sentinelles de l'air " vise à mieux connaître l'exposition individuelle des citoyens aux polluants atmosphériques. Cette étude multicentrique a été menée par trois Comités Régionaux de l'APPA, dans quatre agglomérations françaises (Dunkerque, Grenoble, Lille et Marseille), comme décrit dans le précédent numéro d'Air Pur (DECHENAUX et coll., 2003). Dans la Région Nord-Pas de Calais, soixante volontaires, vivant dans les Communautés Urbaines de Lille et de Dunkerque ont été équipés durant 48 heures de dispositifs portables permettant de mesurer leur exposition individuelle aux oxydes d'azote, aux BTEX et au monoxyde de carbone. Cette expérience a été menée deux fois pour chaque volontaire : la première durant la période printemps-été 2001, et la seconde au cours de l'hiver 2001-2002. En parallèle à ces mesures d'exposition personnelle, les mêmes mesures étaient effectuées à l'intérieur du logement du volontaire, afin d'évaluer la part de la pollution extérieure des locaux dans l'exposition individuelle globale. Les caractéristiques de l'échantillon des " Sentinelles " du Nord-Pas de Calais, ainsi que les résultats de ces deux campagnes de mesure en ce qui concerne les oxydes d'azote et le monoxyde de carbone ont été exposés dans *Air Pur* n° 64 (SCHADKOWSKI, 2003). Le présent article présente les mesures de benzène réalisées au cours de ces deux campagnes de mesures.

I - RAPPELS CONCERNANT L'ETUDE " SENTINELLES DE L'AIR " EN REGION NORD-PAS DE CALAIS

Nous débuterons cet article par quelques rappels concernant la méthodologie générale de l'étude " Sentinelles de l'air ", le matériel utilisé pour la mesure des BTEX ainsi que les caractéristiques de l'échantillon des volontaires.

1. Méthodologie générale de l'étude " Sentinelles de l'air "

Les polluants étudiés dans les quatre agglomérations dans le cadre de l'étude multicentrique sont les oxydes d'azote (NO et NO₂) et les BTEX (benzène, toluène, éthylbenzène et xylènes). A ces polluants, le Comité Nord-Pas de Calais de l'APPA a ajouté, pour les 60 volontaires de la Région, la mesure de l'exposition individuelle et de la concentration à l'intérieur du logement de monoxyde de carbone (CO).

Pour chacun de ces polluants, deux mesures sont effectuées en parallèle :

- exposition individuelle (le volontaire emporte ses capteurs dans tous ses déplacements)
- intérieur habitat (les mêmes capteurs sont placés dans la pièce principale du logement du volontaire)

Outre ces mesures, deux questionnaires sont remplis par le volontaire :

- un questionnaire " cadre de vie ", caractérise l'environnement personnel du volontaire (type de logement, de chauffage, présence d'un garage, ...)
- un bilan " espace-temps-activités " caractérise la mobilité du volontaire et les milieux traversés durant le port des appareils (par pas de temps de 15 minutes)

L'exploitation de ces questionnaires se fait de manière confidentielle, conformément à la loi Informatique et Liberté (déclaration de l'étude à la CNIL, Commission Nationale Informatique et Liberté).

A l'étude de l'exposition individuelle s'ajoute une investigation sur l'exposition des végétaux grâce à l'étude des lichens, décrite dans Air Pur n° 64 par D. CUNY et coll. (2003).

2. La mesure du benzène

Les BTEX sont mesurés à l'aide d'un capteur passif : le tube RADIELLO (figure 1). Ce dernier est constitué d'un corps diffusif en polyéthylène de 5 cm de longueur à travers lequel les polluants diffusent jusqu'à une cartouche d'adsorbant sur laquelle ils sont piégés. Ce corps diffusif est vissé sur un support de fixation. Après exposition, la cartouche est envoyée pour analyse en laboratoire (Fondazione Salvatore Maugeri, Italie).

3. L'échantillon des volontaires

Le " recrutement " des volontaires s'est fait sur la base de volontariat, parmi la population générale des Communautés Urbaines de Lille et de Dunkerque (recherche de volontaires par le biais d'une campagne d'affichage chez les médecins généralistes, dans les Mairies, ...).

Les critères d'inclusion pour la participation à l'étude étaient les suivants :

- adulte
- non fumeur
- pas ou peu soumis au tabagisme passif
- pas d'exposition professionnelle aux polluants mesurés
- pas de projet immédiat de déménagement

La localisation géographique du domicile des volontaires est indiquée par les figures 2 et 3.



Figure 1 : tube Radiello

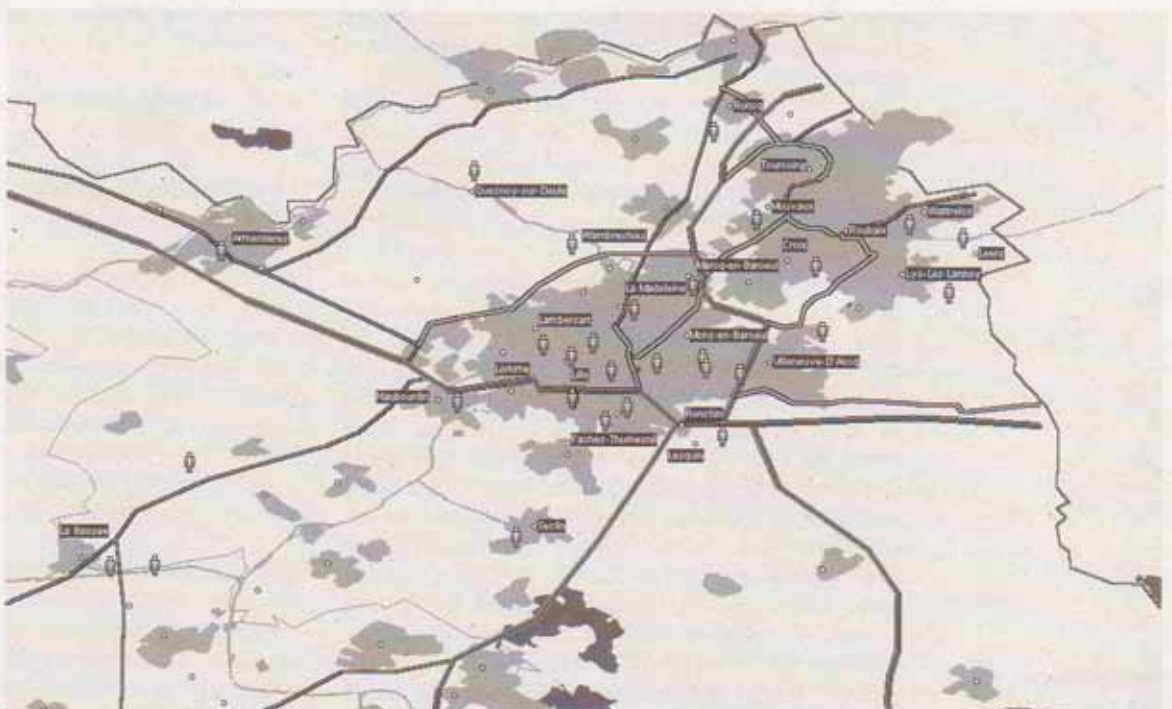


Figure 2 : Répartition des domiciles des Sentinelles dans LMCU (Lille Métropole Communauté Urbaine)

mération lilloise (réseau AREMA LM), le réseau OPAL'AIR (couvrant la zone de Dunkerque Grand Littoral) ne disposant pas d'analyseur BTEX au cours des campagnes de mesures " Sentinelles ". Les tubes ont été exposés durant 48 heures, sous leur boîte de protection, à proximité de la canne de prélèvement de la station du réseau.

Lors de la campagne printemps-été, la comparaison a été effectuée avec un analyseur appartenant à l'École des Mines de Douai, et implanté à la station Lakanal (station urbaine de fond). Durant la campagne " hiver ", les tubes ont été placés au niveau de la station Liberté (station de proximité). Les mesures des tubes ont été corrigées en fonction de la température moyenne durant la période d'exposition, fournie également par l'AREMA LM.

L'accord obtenu pour le benzène entre ces deux séries de mesures (tubes passifs et analyseur fixe) est relativement satisfaisant.

2. Bilan des mesures de BTEX

Les mesures de BTEX pour les deux campagnes sont présentées dans les tableaux suivants.

Exposition individuelle en $\mu\text{g}/\text{m}^3$	Lille		Dunkerque		Nord-Pas de Calais	
	été (n=30)	hiver (n=30)	été (n=29)*	hiver (n=30)	été (n=59)*	hiver (n=60)
benzène						
moyenne (écart-type)	4,3 (2,7)	4,5 (3,3)	5,3 (8,7)	3,3 (3,1)	4,8 (6,4)	3,9 (3,2)
médiane	3,7	3,3	2,8	2,1	3,3	2,8
minimum/maximum	0,9/13,1	0,9/13,5	0,3/36,4	0,4/13,1	0,3/36,4	0,4/13,5
toluène						
moyenne (écart-type)	29,8 (14,5)	63,3 (172,6)	47,2 (63,6)	33,3 (28,1)	38,3 (46,2)	48,3 (123,6)
médiane	29,3	25,6	25,1	25,5	28,9	25,6
minimum/maximum	9,0/84,5	7,4/970,8	7,3/277,8	4,8/148,8	7,3/277,8	4,8/970,8
ethylbenzène						
moyenne (écart-type)	8,5 (20,0)	3,8 (3,2)	5,9 (8,2)	3,7 (3,6)	7,2 (15,3)	3,8 (3,4)
médiane	4,0	2,9	3,1	2,7	3,6	2,7
minimum/maximum	0,7/112,8	0,5/13,6	0,5/33,4	0,1/17,4	0,5/112,8	0,1/17,4
xylènes totaux						
moyenne (écart-type)	34,3 (87,2)	13,7 (11,6)	21,5 (31,9)	15,8 (15,3)	27,9 (65,4)	14,8 (13,5)
médiane	14,3	9,6	10,4	11,6	12,0	10,0
minimum/maximum	3,3/485,6	1,8/48,0	0,0/129,4	0,3/74,6	0,0/485,6	0,3/74,7

* un volontaire a perdu son tube radiello

Tableau 1 : Mesures d'exposition individuelle aux BTEX

Mesure intérieure en $\mu\text{g}/\text{m}^3$	Lille		Dunkerque		Nord-Pas de Calais	
	été (n=30)	hiver (n=30)	été (n=30)	hiver (n=60)	été (n=60)	hiver (n=60)
benzène						
moyenne (écart-type)	3,6 (2,1)	4,0 (3,4)	6,1 (11,4)	3,8 (6,8)	4,8 (8,2)	3,9 (5,3)
médiane	2,8	3,0	1,6	1,5	2,7	2,6
minimum/maximum	0,8/9,3	0,6/16,7	0,1/42,8	0,1/37,1	0,1/42,8	0,1/37,1
toluène						
moyenne (écart-type)	29,8 (15,9)	28,3 (22,3)	48,8 (74,9)	37,5 (41,8)	39,3 (54,5)	32,9 (33,5)
médiane	26,3	21,0	25,4	24,4	26,3	23,0
minimum/maximum	10,6/70,0	3,5/78,4	5,0/304,3	3,2/212,2	5,1/304,3	3,2/212,2
ethylbenzène						
moyenne (écart-type)	7,4 (16,7)	2,8 (2,5)	7,3 (11,4)	3,9 (4,6)	7,3 (14,2)	3,3 (3,7)
médiane	3,4	2,2	3,4	2,7	3,4	2,2
minimum/maximum	1,2/95,0	0,3/11,3	0,4/46,1	0,1/19,4	0,4/95,0	0,1/19,4
xylènes totaux						
moyenne (écart-type)	28,4 (71,3)	10,2 (11,2)	27,5 (43,6)	15,9 (19,3)	27,9 (58,6)	13,0 (15,9)
médiane	11,9	6,3	13,1	9,3	11,9	6,9
minimum/maximum	4,9/402,4	0,6/50,2	1,4/167,6	0,3/81,8	1,4/402,4	0,3/81,8

Tableau 2 : Mesures intérieures de BTEX

3. Analyse descriptive des mesures de benzène

3.1. Comparaison des mesures aux valeurs de référence

Nos mesures de benzène peuvent être comparées à une valeur limite ($5 \mu\text{g}/\text{m}^3$) et un objectif de qualité ($2 \mu\text{g}/\text{m}^3$) annuels, tout en gardant en mémoire que les mesures des Sentinelles correspondent à des temps d'exposition de 48 heures.

Concentration de benzène :	Campagne printemps-été		Campagne hiver	
	Exposition individuelle	Mesure intérieure	Exposition individuelle	Mesure intérieure
Supérieure à $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$	11	13	16	13
Supérieure à $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$	43	34	37	35
Nombre total de mesures	59	60	60	60

Tableau 3 : Nombre de mesures de benzène supérieures aux valeurs de référence

Les mesures intérieures peuvent également être comparées à celles obtenues dans le cadre de la campagne pilote de l'Observatoire de la Qualité de l'Air Intérieur (OQAI, 2002). Sur les 63 logements dans lesquels des mesures de COV ont été effectuées, 10 % présentaient des taux de benzène supérieurs à $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$, tandis que des concentrations supérieures à $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ étaient constatées dans 1 logement sur 2 (OQAI, 2002). Nous avons effectué le même calcul pour les 60 logements des Sentinelles, pour les deux campagnes, et également comparé les mesures d'exposition individuelle aux concentrations de référence de 2 et $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (tableau suivant).

Nous rappelons au lecteur que dans le cas de l'OQAI, les COV étaient mesurés dans la cuisine et la chambre, alors que dans le cas des Sentinelles, le tube radiello était placé dans la pièce principale du domicile (séjour).

	OQAI, 2002	Sentinelles de l'air Nord-Pas de Calais	
		campagne été	campagne hiver
Nombre de logements	63	60	60
[Benzène] > $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$	10 %	22 %	22 %
[Benzène] > $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$	50 %	57 %	58 %

Tableau 4 : Pourcentages de mesures intérieures supérieures aux valeurs de référence
Comparaison avec la campagne pilote de l'OQAI

3.2. Valeurs " extrêmes "

On appelle valeurs " extrêmes " les valeurs qui s'éloignent considérablement des autres, sur le plan statistique. Dans notre cas, il s'agit de concentrations sensiblement plus élevées que la moyenne de l'ensemble de l'échantillon.

Lors de la campagne printemps-été, trois volontaires de la CUD (52, 53 et 74) ont présenté des concentrations de benzène assez élevées, en exposition individuelle comme en intérieur du domicile, de l'ordre de $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Pour deux d'entre eux (52 et 53, résidant dans le même logement), les concentrations de toluène étaient également élevées, nous conduisant à réitérer les mesures intérieures, pour une deuxième période de 48 heures. Les résultats de ces mesures montrent des valeurs plus raisonnables mais élevées ($13,7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ dans la salle de séjour et $14,4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ à l'étage).

Il a été impossible de déterminer avec précision la source de ces teneurs élevées de benzène. En effet, si la recherche de sources de combustion renseigne assez vite sur l'origine des expositions élevées aux oxydes d'azote et surtout au monoxyde de carbone, la grande diversité des sources potentielles de COV rend cet exercice beaucoup plus délicat. Dans le cas de ces deux Sentinelles, plusieurs hypothèses ont été envisagées :

- les concentrations extérieures des différents polluants (NOx, CO) durant la première période d'exposition étaient assez élevées (rappelons que les BTEX ne sont pas mesurés par le réseau OPAL'AIR) ; ces concentrations extérieures (moyenne sur 48 heures de $54 \mu\text{g}/\text{m}^3$ pour le NO₂, contre $27 \mu\text{g}/\text{m}^3$ en moyenne pour l'ensemble des Sentinelles de Dunkerque) pourraient en outre expliquer en partie les taux élevés d'oxydes d'azote également relevés chez ces volontaires.

- un garage ouvre directement sur le domicile, et l'on sait par d'autres études que ce facteur peut être déterminant pour les concentrations de benzène à l'intérieur du logement.
- le trafic automobile à proximité du logement est souvent dense, notamment en raison de la proximité d'une école (nombreuses voitures fonctionnant au ralenti, stationnant en double file, ...etc), et les fenêtres sont très fréquemment ouvertes (information non disponible par le budget-espace-temps, mais communiquée a posteriori par la Sentinelle).
- l'utilisation de produits ménagers ou de désodorisants d'intérieur pourrait également être en cause.

Lors de la campagne " hiver ", c'est la Sentinelle 66 qui a présenté des mesures intérieures de benzène nettement plus élevées que les autres. Cette Sentinelle ayant effectué des travaux dans son logement au cours de la période d'exposition, il est possible que ces teneurs importantes y soient imputables. Une autre explication possible réside dans le chauffage au bois.

Sentinelle	Campagne printemps-été		Campagne hiver	
	[benzène]personnelle	[benzène]intérieure	[benzène]personnelle	[benzène]intérieure
52	36,4	42,8	11,9	8,7
53	31,2	40,8	6,9	10,2
74	19,7	33,1	6,2	7,0
66	1,7	1,2	13,1	37,1

Tableau 5 : Concentration de benzène (en $\mu\text{g}/\text{m}^3$) pour les Sentinelles du Nord-Pas de Calais présentant des mesures " extrêmes " durant l'une des campagnes

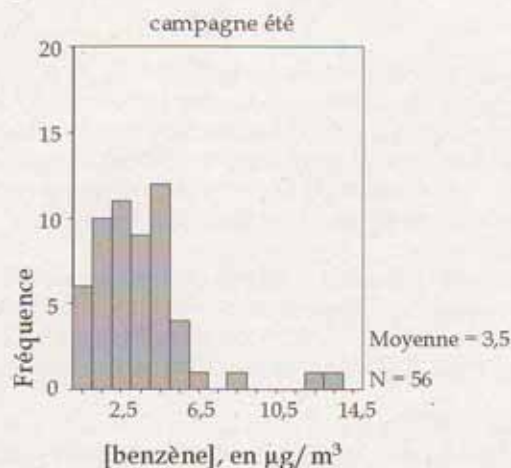
Concentration, en $\mu\text{g}/\text{m}^3$	été		hiver	
	Toutes*	Sans 52, 53 et 74	Toutes	Sans 66
Sentinelles :				
Exposition individuelle benzène				
Moyenne	4,8	3,5	3,9	3,8
écart-type	6,4	2,5	3,2	3,0
médiane	3,3	3,1	2,8	2,8
maximum	36,4	13,1	13,5	13,5
Mesure intérieure benzène				
Moyenne	4,8	3,1	3,9	3,3
écart-type	8,2	2,3	5,3	3,1
médiane	2,7	2,4	2,6	2,6
maximum	42,81	9,4	37,1	16,6

* rappel : un volontaire n'a pas pu être équipé durant la campagne printemps-été

Tableau 6 : Mesures d'exposition individuelle et mesures intérieures de benzène, avec et sans les Sentinelles présentant des mesures " extrêmes "

Les distributions des concentrations¹ sans tenir compte de ces Sentinelles sont présentées ci-dessous.

Exposition individuelle, sans 52, 53 et 74



Mesures intérieures sans 52, 53 et 74

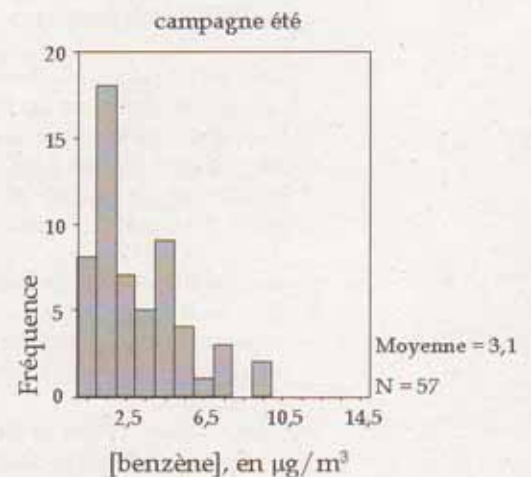


Figure 4 : Distribution des mesures de benzène en fonction de la concentration, sans les Sentinelles 52, 53 et 74, pour la campagne " été "

¹ On indique la " fréquence ", soit le nombre de mesures comprises dans chaque intervalle de concentrations (ex. de 0 à 5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)

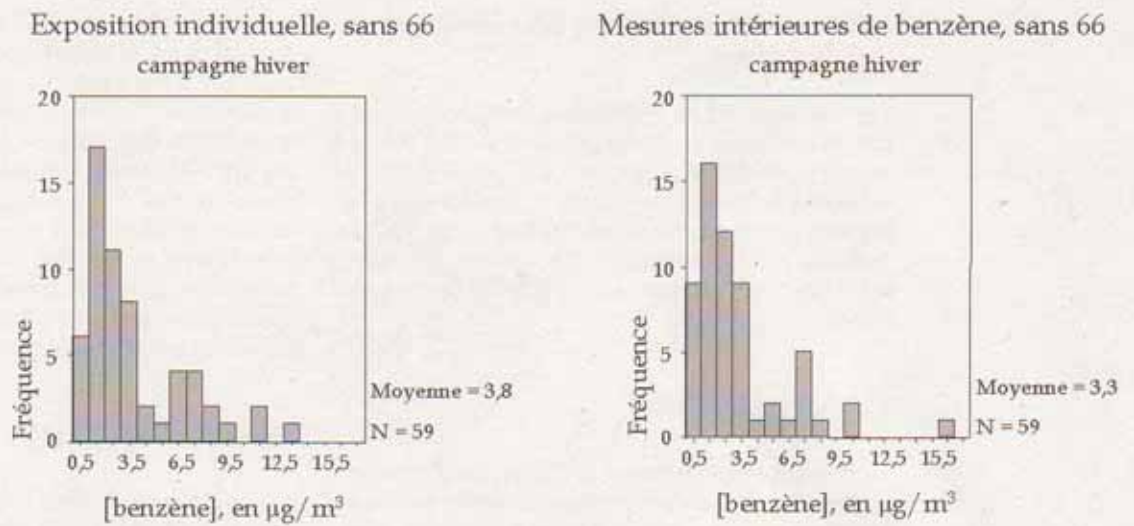


Figure 5 : Distribution des mesures de benzène en fonction de la concentration, sans la Sentinelle 66, pour la campagne " hiver "

3.4. Comparaison entre exposition individuelle et mesure intérieure

Les tests statistiques effectués montrent que les mesures d'exposition individuelle sont supérieures aux concentrations intérieures logement (différence à peine significative pour l'été, plus marquée pour l'hiver).

Par ailleurs, les mesures d'exposition individuelle sont nettement corrélées avec les mesures intérieures logement, que l'on tienne compte ou pas des valeurs extrêmes. Pour illustrer graphiquement cette corrélation, on représente les mesures d'exposition individuelle en fonction des mesures intérieures, sans les Sentinelles présentant les mesures extrêmes, pour les deux campagnes (figure 6).

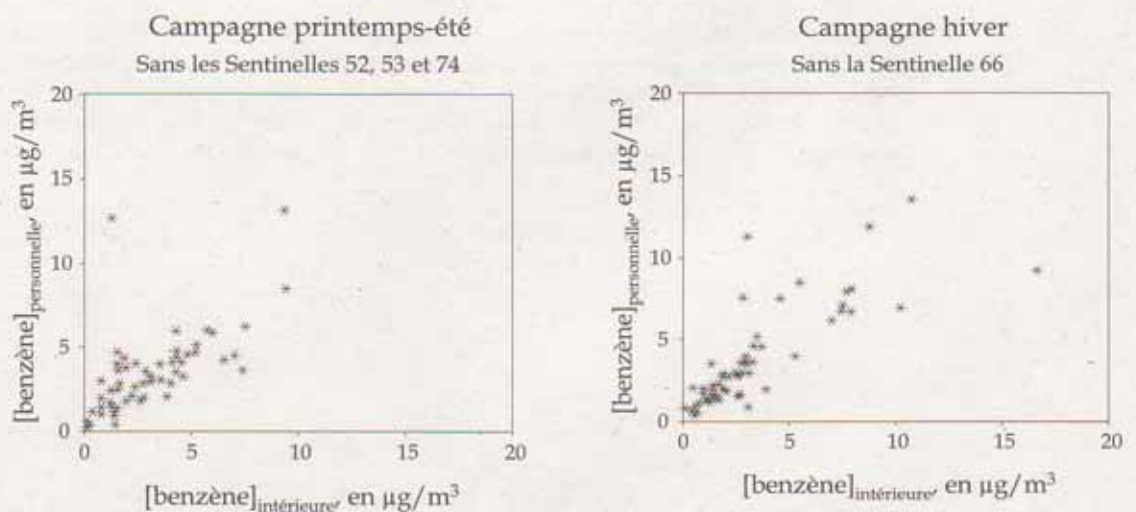


Figure 6 : Représentation de l'exposition individuelle en fonction des concentrations intérieures, pour le benzène

3.5. Comparaison aux mesures extérieures issues des AASQA

Pour effectuer la comparaison entre exposition individuelle et mesures extérieures, les concentrations de benzène extérieures ont été calculées en moyennant les concentrations horaires issues des analyseurs automatiques des AASQA sur la période d'exposition des Sentinelles. Dans le cas des mesures d'oxydes d'azote, une corrélation avait été montrée entre les mesures d'exposition individuelle et les mesures extérieures issues des réseaux de surveillance de la qualité de l'air (SCHADKOWSKI, 2003).

Dans le cas des BTEX cependant, le nombre d'analyseurs fixes disponibles pour effectuer cette comparaison était très restreint. En effet, comme indiqué plus haut, le réseau OPAL'AIR ne disposait d'aucun analyseur à l'époque des campagnes de mesures " Sentinelles ". L'AREMA LM était dotée à cette période de deux analyseurs, mais seul celui de la station Liberté était en fonctionnement durant les périodes visées. Cette station étant située en proximité automobile, les concentrations extérieures mesurées ne peuvent en aucun cas être représentatives de l'ensemble de l'agglomération. C'est donc sans surprise qu'on ne relève aucune corrélation entre les expositions individuelles au benzène des volontaires et ces mesures extérieures.

3.6. Comparaison entre les deux campagnes de mesures

Les tests statistiques effectués montrent qu'il n'y a pas de différences significatives entre les teneurs de benzène relevées durant la campagne " été " et celles de la campagne " hiver ", que ce soit pour les mesures d'exposition individuelles ou pour les concentrations intérieures. Par ailleurs, les mesures " été " et " hiver " ne sont que faiblement corrélées.

CONCLUSION

Le présent rapport dresse un bilan des deux campagnes de mesures d'exposition individuelle au benzène menées auprès des 60 Sentinelles sélectionnées dans les agglomérations de Lille et de Dunkerque, dans le cadre de l'étude " Sentinelles de l'air ".

La médiane des expositions individuelles au benzène est de $3,3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ l'été et de $2,8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ l'hiver. En ce qui concerne les mesures effectuées à l'intérieur des logements, la médiane est de $2,7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ l'été et de $2,6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ l'hiver.

Pour certains volontaires, des mesures significativement plus élevées que les autres ont été relevées. Contrairement aux cas des oxydes d'azote ou du monoxyde de carbone, où l'origine des concentrations élevées est relativement aisée à déterminer (sources de combustion comme les cuisinières ou chauffage), il est beaucoup plus difficile de connaître avec précision la source de ces fortes concentrations en benzène. Les sources potentielles sont en effet plus diversifiées, et de nombreuses incertitudes subsistent.

Les mesures d'exposition individuelle de benzène sont nettement corrélées avec les mesures de ce polluant dans l'habitat, et leur sont par ailleurs supérieures. Contrairement au cas des oxydes d'azote, on ne dispose pas de suffisamment de mesures des AASQA pour établir une quelconque comparaison avec les mesures extérieures (une seule station opérationnelle au niveau de l'agglomération lilloise, et aucune pour l'agglomération dunkerquoise, durant la période d'étude). Les mesures de benzène ne sont par ailleurs que faiblement corrélées entre les campagnes " été " et " hiver ".

BIBLIOGRAPHIE

CUNY D., DAVRANCHE L., VAN HALUWYN C., DOSSIN M., SILVIE JP, PAILLEUX N., VANDAMME L., CAOUS AS. (2003), Apports de la cartographie des impacts de la pollution atmosphérique sur l'environnement à l'aide des lichens épiphytes dans le cadre de l'étude " Sentinelles de l'air ", *Air Pur* n° 64, pp. 31-37

DECHENAUX J., DERBEZ M., GRIMALDI F., MALRIEU V., MULLS E., ROUSSEL I., SCHADKOWSKI C. (2003), Présentation de l'étude " Sentinelles de l'air ", *Air Pur* n° 64, pp. 5-13

OQAI (Observatoire de la Qualité de l'Air Intérieur, 2002), Rapport exécutif de la phase préparatoire aux premiers résultats de l'étude pilote, mars 2002

SCHADKOWSKI C. (2003), Exposition individuelle aux oxydes d'azote et au monoxyde de carbone : premiers résultats de l'étude " Sentinelles de l'air " en Région Nord-Pas de Calais, *Air Pur* n° 64, pp. 14-29

REMERCIEMENTS

Ce travail a bénéficié du soutien de la Région Nord-Pas de Calais et de la délégation régionale de l'ADEME, du PRASE (Programme Régional d'Action Santé Environnement), de la DIREN, de la Communauté Urbaine de Dunkerque et du FNADT (Fond National d'Aide au Développement des Territoires).

Nous remercions vivement l'ensemble des volontaires ayant contribué à cette étude.