

# Consommation TOXIQUE



Les substances dangereuses  
dans les poussières du logement :  
des indicateurs de l'exposition  
chimique dans l'environnement  
domestique

**GREENPEACE**®

**Authors:** David Santillo, Iryna Labunska, Maureen Fairley & Paul Johnston

Greenpeace Research Laboratories Technical Note 02/2003 (GRL-TN-02-2003)

Greenpeace Research Laboratories, Department of Biological Sciences, University of Exeter, Exeter EX4 4PS, UK

**Lay-out :** French actress Marion Cotillard hoovering her own flat as a participation in the Greenpeace Housedusts sampling programme.





# Table des matières

<u>RÉSUMÉ</u> .....	7
<u>INTRODUCTION - LES SUBSTANCES CHIMIQUES EN EUROPE</u> .....	11
<i>Les substances chimiques dans notre domicile</i> .....	13
<i>Les poussières domestiques en tant qu'indicateurs chimiques de la contamination du foyer</i> .....	14
<i>Substances recherchées dans cette étude</i> .....	17
<u>MÉTHODES DE PRÉLÈVEMENT ET D'ANALYSE DES ÉCHANTILLONS</u> .....	21
<i>Prélèvement des échantillons</i> .....	21
<i>Préparation des échantillons</i> .....	21
<i>Allemagne</i> .....	21
<i>Espagne</i> .....	22
<i>Italie</i> .....	23
<i>France</i> .....	23
<i>Slovaquie</i> .....	24
<u>ANALYSES DES ÉCHANTILLONS</u> .....	25
<i>Composés d'alkylphénols et esters de phthalates (LGC)</i> .....	25
<i>Autres contaminants organiques (LGC)</i> .....	25
<i>Retardateurs de flammes bromés et paraffines chlorées à chaîne courte (RIVO)</i> .....	25
<i>Composés organoétains (GALAB)</i> .....	26
<u>RÉSULTATS ET COMMENTAIRES</u> .....	27
<i>Composés cibles</i> .....	27
<i>Esters de phthalates</i> .....	27
<i>Alkylphénols</i> .....	29
<i>Composés organoétains</i> .....	29
<i>Retardateurs de flamme bromés</i> .....	30
<i>Décabromodiphényl éther (BDE-209)</i> .....	30
<i>Autres diphényl éthers bromés</i> .....	31
<i>Hexabromocyclododécane (HBCD)</i> .....	31
<i>Tetrabromobisphénol-A</i> .....	32
<i>Paraffines chlorées à chaîne courte (SCCP)</i> .....	32
<i>Autres composés organiques (composés non ciblés)</i> .....	32
<u>CONCLUSIONS</u> .....	39
<u>RÉFÉRENCES</u> .....	41
<u>ANNEXE 1 :RÉSULTATS DÉTAILLÉS POUR LES COMPOSÉS CIBLES ET LES AUTRES COMPOSÉS DANS LES ÉCHANTILLONS INDIVIDUELS ET COMPOSITES</u> .....	43
<u>ANNEXE 2 : USAGES, DISTRIBUTION, DANGERS ET PROFILS RÉGLEMENTAIRES DES CINQ GROUPES CLÉS DE CONTAMINANTS CHIMIQUES ÉTUDIÉS</u> .....	61
<u>ANNEXE 3 : DESCRIPTION DES MÉTHODES D'ANALYSE EMPLOYÉE</u> .....	81



## Résumé

Bien que la présence répandue de substances chimiques dangereuses dans l'environnement soit de mieux en mieux documentée, peu de gens sont conscients que ces mêmes substances sont utilisées comme additifs dans les biens de consommation que nous achetons et utilisons tous les jours. Qu'ils soient incorporés dans les tapis, les rideaux, les jouets, les téléviseurs, les ordinateurs, les imprimantes, les cosmétiques ou les parfums, les additifs chimiques vivent dans l'ombre de notre modernité. Ils figurent rarement sur l'étiquette et demeurent invisibles mais ils sont presque toujours là.

Bien sûr, il y a généralement une raison qui justifie leur présence : rendre les plastiques souples ou les empêcher de se dissocier ; protéger du feu ; tuer les acariens ou la moisissure. Le problème est qu'en conséquences de leur usage dans les biens de consommation, nous sommes constamment exposés aux substances chimiques et aux dangers qu'elles présentent. Elles peuvent s'échapper des produits au cours de leur utilisation normale ou par usure du temps, et contaminer l'environnement intérieur de nos logements.

Il est surprenant que l'étendue de cette contamination domestique et sa signification en termes d'exposition n'aient pratiquement jamais été étudiées. Les rares études conduites ont montré des signes flagrants de la contamination de notre environnement domestique par une variété de substances synthétiques. Certains polluants provenaient de manière prédominante de sources extérieures, par exemple le plomb émis par le trafic automobile. D'autres provenaient de l'usage délibéré de produits chimiques dans le logement (par exemple, d'insecticides). Cependant, la grande majorité avait pour origine leur utilisation dans les biens de consommation courants de l'habitat. Cela comprenait des substances dangereuses telles que :

- Des alkylphénols, perturbateurs hormonaux, utilisés dans les cosmétiques et autres produits de soin corporel,

- des esters de phtalates, toxiques à la reproduction, utilisés principalement pour assouplir le PVC (vinyle),
- des composés organoétains, immunotoxiques, utilisés pour stabiliser le PVC ou tuer les acariens,
- des composés bromés, qui imitent les hormones thyroïdiennes, utilisées comme retardateurs de flamme dans les mobiliers et les produits électroniques,
- des paraffines chlorées, aux propriétés cancérigènes, utilisées dans les plastiques, les peintures et les caoutchoucs.

Dans une étude publiée par Greenpeace en mai 2003, des échantillons de poussières domestiques prélevés dans un total de 100 foyers de dix régions britanniques ont été analysés pour la recherche des substances chimiques dangereuses énumérées ci-dessus (Santillo et al., 2003). Cette recherche a confirmé la présence très fréquente d'esters de phtalates, de retardateurs de flammes bromés et de composés organoétains dans les poussières domestiques, le phtalate DEHP (diéthylhexyl phtalate) et les retardateurs de flammes BDE-209 (décabromodiphényl éther) et HBCD (hexabromocyclododécane) étant particulièrement abondants. Du nonylphénol et des paraffines chlorées à chaînes courtes (SCCP) ont également été trouvés fréquemment, ainsi qu'une grande diversité d'autres substances chimiques produites par les activités humaines, dont des pesticides et des solvants.

La présente étude a été menée dans le but d'étendre le champ de notre première recherche de façon à englober un nombre plus important d'échantillons provenant d'un plus grand nombre de pays européens, à savoir l'Allemagne, l'Espagne, la France, l'Italie et la Slovaquie. Un total de 58 échantillons ont été prélevés en France, dans cinq grandes villes, et 22 en Espagne, dans quatre régions différentes. Cinq échantillons ont été prélevés dans plusieurs villes allemandes, ainsi qu'à Rome en Italie. Huit échantillons ont été prélevés en Slovaquie, dans deux régions différentes.

Dans les grandes lignes, on a trouvé dans ces échantillons répartis sur l'Europe des concentrations plutôt supérieures d'esters de phtalates et de paraffines chlorées à chaîne courte, des concentrations à peu près identiques d'organoétains, et des concentrations plutôt inférieures d'alkylphénols et de retardateurs de flammes bromés par rapport aux échantillons britanniques de l'étude précédente.

Tous les échantillons analysés contenaient des phtalates, des retardateurs de flammes bromés, des composés organoétains et des paraffines chlorées à chaîne courte (SCCP). Contrairement aux échantillons britanniques, assez peu d'échantillons contenaient des traces détectables de nonylphénol. En moyenne, chaque gramme de poussière contenait environ 1 mg (c'est-à-dire une partie pour mille) du total des cinq groupes de substances chimiques dangereuses que l'on cherchait spécifiquement à mesurer, bien que les amplitudes des concentrations de chaque substance chimque contribuant à cette moyenne aient été, comme on pouvait s'y attendre, assez larges.

Les esters de phtalates, en particulier le DEHP toxique à la reproduction, représentaient la plus grande partie des concentrations de contaminants dans les échantillons. Du DEHP a été trouvé dans des concentrations allant de 14,9 à 3 289 ppm (soit 3,3 mg/g, ou parties pour mille, pour cette dernière valeur). La plus forte concentration de phtalates de l'ensemble, qui était de 7 237 ppm (7,2 mg/g), a été relevée dans un échantillon individuel venant de France, avec des quantités à peu près égales de DEHP et de BBP (butylbenzyl phtalate).

Comme pour les échantillons britanniques, les retardateurs de flammes bromés les plus abondants relevés dans les échantillons espagnols, français, allemands et italiens étaient le decabromodiphenyl ether (BDE-209, 92-3 400 ppb) et l'hexabromocyclododécane (HBCD, 77-1 600 ppb). Tous deux sont connus comme étant couramment utilisés en Europe comme additifs retardateurs de flammes utilisés dans les plastiques, textiles et autres applications. Cependant, les concentrations absolues de ces deux substances chimiques étaient généralement inférieures à la fourchette des concentrations

relevées dans les échantillons britanniques (respectivement 3 800-19 900 ppb et 940-6 900 ppb). Ces chiffres confirment leur présence à des concentrations inférieures dans les échantillons non-britanniques, fait déjà suggéré dans notre étude précédente.

Au contraire, les concentrations de paraffines chlorées à chaîne courte (SCCP) dans les échantillons allemands, français, espagnols et italiens étaient notablement plus élevées que celles précédemment relevées dans les échantillons britanniques (17-95 ppm pour les premiers, <0,12-13 ppm pour les britanniques). Ces fortes concentrations de SCCP étaient inattendues, mais permettent de montrer l'ampleur des rejets actuels de ces substances chimiques dangereuses à partir de matériaux couramment présents dans l'environnement domestique. On pourrait émettre l'hypothèse que les concentrations élevées de SCCP dans les échantillons d'Europe continentale et du Royaume-Uni, combinées à des concentrations relativement inférieures de retardateurs de flammes bromés, reflètent des différences historiques, peut-être même encore actuelles, dans les produits chimiques retardateurs de flammes utilisés dans différentes parties d'Europe. Une autre explication de ces différences pourrait être des divergences dans les préférences en matière de mobilier et/ou de décoration intérieure entre pays, par exemple des différences dans la fréquence des pièces ayant des revêtements de sol en PVC (vinyle) ou des tapis.

Malgré l'ampleur du programme de prélèvements de cette étude et de la précédente, le nombre d'échantillons composites soumis à des analyses pour rechercher des retardateurs de flammes bromés et des SCCP était nécessairement limité (10 échantillons pour le Royaume-Uni et 14 pour l'Europe continentale). De toute évidence, des prélèvements et des analyses supplémentaires seront nécessaires pour confirmer ces différences et commencer à décrire leurs causes sous-jacentes. Néanmoins, ces données permettent de soulever des questions intéressantes en ce qui concerne la distribution des substances chimiques dangereuses dans l'environnement domestique en Europe.

De même que ces données illustrent la nature envahissante des substances dangereuses, elles



indiquent également que l'exposition aux poussières dans l'habitat est potentiellement une voie significative d'exposition humaine à ces substances chimiques. Ce phénomène est particulièrement préoccupant en regard de l'exposition infantile, d'autres études ayant montré que les enfants présentent l'exposition la plus importante aux contaminants des poussières par inhalation, ingestion et contact direct avec la peau. Bien sûr, nous ne pouvons jamais être certains qu'une telle exposition conduise à des effets nocifs pour la santé mais étant donné les dangers associés aux substances en question, il n'y a pas de place pour la complaisance. A ce jour, le problème de l'exposition chimique domestique n'a été que pauvrement documenté et improprement évalué.

Il est vital que les produits de consommation soient sûrs d'utilisation, ce qui doit également impliquer qu'ils soient vierges de substances dangereuses. Les exigences de prévention des incendies, auxquelles répond l'usage courant de dangereux retardateurs de flamme bromés ou chlorés, peuvent déjà être remplies par l'utilisation d'alternatives moins dangereuses, y compris par l'utilisation de matériaux ou de conception différents qui rendent les produits intrinsèquement moins inflammables. De plus, plusieurs des dangers chimiques domestiques identifiés dans cette étude pourraient être significativement réduits par l'usage

d'alternatives moins dangereuses et plus soutenables que les plastiques PVC, sources de phthalates, d'organoétains et d'autres additifs dangereux. De telles alternatives sont déjà disponibles pour tous les produits PVC domestiques

Il existe aujourd'hui une opportunité pour tous les gouvernements européens, de prendre des mesures décisives et efficaces pour régler le problème des utilisations de substances chimiques et de l'exposition qui en découle, domestique ou pas. En reconnaissance de la portée du problème, de l'absence de connaissances sur les impacts de la chimie synthétique sur la santé humaine et des progrès infimes accomplis à ce jour pour développer des mesures de protection, la Commission européenne vient d'élaborer une nouvelle réglementation pour contrôler les substances dangereuses. L'objectif de ces nouvelles lois est de fournir un niveau élevé de protection de l'environnement et de la santé humaine. Si tel est le but, alors il est vital que ces lois encadrent et, surtout, évitent l'usage de substances dangereuses dans les biens de consommation par leur substitution avec des alternatives moins dangereuses. C'est l'unique solution pour assurer la sécurité chimique dans l'environnement domestique.



## Introduction - Les substances chimiques en Europe

*« Les substances chimiques de synthèse sont largement répandues dans l'air, les sols, les sédiments aquatiques et la biote de l'environnement européen suite à la commercialisation d'environ 100 000 substances chimiques dans l'UE, à leur utilisation, à leur élimination et à leur dégradation. Il y a un manque sérieux de contrôle et d'information sur ces substances chimiques (...) l'exposition répandue à de faibles doses de substances chimiques peut causer des dommages sanitaires, éventuellement irréversibles, en particulier à des groupes sensibles comme les enfants et les femmes enceintes (...) »*

*Agence européenne de l'environnement (1998)*

La réglementation actuelle sur la production et l'utilisation des substances chimiques est faible, lourde et inefficace. L'UE a officiellement reconnu comme problématique cette situation : nous ne disposons que de très peu de données sur la plupart des 100 000 ou plus substances chimiques utilisées couramment par l'industrie, et d'encore moins d'information sur les impacts qu'elles peuvent générer sur l'environnement et la santé humaine.

La Commission européenne a donc été conduite à proposer une nouvelle législation qui offre une protection renforcée à la santé humaine et à l'environnement. Dans son Livre Blanc "Stratégie pour une future politique chimique" la Commission affirme :

*"L'absence de connaissances sur les impacts de nombreuses substances chimiques sur la santé humaine et sur l'environnement est un sujet de préoccupation (...) il est compréhensible que le public s'inquiète quand il entend parler de l'exposition de leurs enfants à certains phthalates provenant des jouets et des concentrations croissantes de retardateur de flammes au pentabromo diphényl éther dans le lait maternel (...) les mesures législatives mettent trop longtemps à porter leurs fruits.*

*Ces exemples mettent en évidence les faiblesses de la politique chimique actuelle de l'UE (...) il y a un manque général de connaissance sur les propriétés et les utilisations des substances existantes. Le (...) processus est lent et consommateur de ressources, et il ne permet pas au système de fonctionner (...) efficacement. L'information sur les utilisations de substances est difficile à obtenir et les informations sur les expositions (...) sont généralement peu nombreuses. La décision d'effectuer des analyses supplémentaires des substances ne peut être prise que par le biais d'une longue procédure passant par des comités et elles ne peuvent être demandées à l'industrie qu'après que les autorités ont prouvé qu'une substance est susceptible de présenter des risques graves. Sans résultats d'analyse il est toutefois quasi impossible d'apporter une telle preuve. Une évaluation définitive des risques n'a par conséquent été effectuée en intégralité que pour un petit nombre de substances. »*

*Livre blanc de la Commission européenne : Stratégie pour une future politique chimique, 27 février 2001*

Il ne fait donc aucun doute qu'une refonte complète de la politique chimique de l'UE et une nouvelle législation primaire régissant la fabrication, la commercialisation et l'utilisation de toutes les substances chimiques intentionnellement produites dans l'Union européenne sont nécessaires.

Après des mois de rédaction détaillée et de consultations, la Commission européenne est aujourd'hui sur le point d'adopter une nouvelle législation réglementant l'usage des substances chimiques au sein de l'Europe. Le nouveau système, baptisé REACH (**en**Registration, **E**valuation, **A**utorisation des substances **CH**imiques), vise avant tout à rassembler les informations vitales sur les usages et les dangers d'un vaste éventail de substances commercialisées en Europe, substances qui ont été, dans de nombreux cas, utilisées pendant des décades sans connaissance approfondie, en

particulier de leurs propriétés de base telles que la toxicité et la persistance dans l'environnement. De plus, pour les substances jugées très préoccupantes sur la base de leur dangerosité (telles que les substances cancérigènes, ou les substances persistantes et bioaccumulables ou encore les perturbateurs endocriniens), REACH introduit la nécessité d'obtenir une autorisation positive si on souhaite poursuivre leur usage. Il est envisagé qu'une autorisation ne soit accordée que si les usages s'avèrent essentiels et que l'on ne dispose pas d'alternatives plus sûres, ou si les risques peuvent être "contrôlés de manière adéquate". Pour les substances cancérigènes, toxiques à la reproduction, persistantes et bioaccumulables ou capables de perturbation endocrinienne, il est difficile de voir comment la poursuite d'un usage pourrait être autorisé sous ce concept de "contrôle adéquat" des risques. En particulier, si les usages en question provoquent, par exemple, une vaste contamination de l'environnement intérieur et, par conséquent, la possibilité d'une exposition chimique directe et permanente au domicile.

Il y a lieu d'espérer que la nouvelle réglementation de l'UE va créer un processus européen et, en définitive, mondial visant à mettre un terme à la situation insoutenable actuelle en matière d'utilisation et d'exposition chimiques. Jusqu'à présent, des mesures ont été prises pour contrôler certaines substances chimiques dont le danger est reconnu depuis longtemps (amiante, PCB, DDT) mais seulement après des années d'utilisation répandue. Pour beaucoup d'entre elles, les concentrations dans l'environnement sont aujourd'hui en diminution, mais seulement après que des dommages graves et irréversibles ont été causés. Comme l'a noté l'Agence européenne de l'environnement, nous avons trop souvent « tiré tardivement les leçons malgré des avertissements précoces ». Mais nous avons également vu une partie de ces vieilles substances problématiques être remplacée par une nouvelle génération de substances synthétiques persistantes qui aujourd'hui, comme on pouvait le prévoir, s'accumulent également dans l'environnement, dans notre alimentation, et même dans nos organismes. Qui plus est, cela se produit de façon insidieuse car ces substances entrent subrepticement dans nos foyers sous la forme

d'additifs chimiques invisibles, sans étiquette, présents dans les produits de consommation de tous les jours. Il semble que nous n'arrivions même pas à tirer les leçons tardivement.

En mai 2003, Greenpeace a publié sa première étude de la contamination chimique des poussières domestiques, sur la base de 100 échantillons prélevés dans 10 régions différentes de Grande-Bretagne afin de confirmer la présence répandue d'une large gamme de substances dangereuses (Santillo et al.2003). Dans cette seconde étude, nous avons exploré plus avant à quelle étendue de contamination de notre environnement domestique nous conduit notre dépendance inconsciente à une gamme de substances chimiques dangereuses présents dans les produits ménagers et autres biens de consommations ; cette fois, l'étude s'appuie sur des échantillons de poussières prélevés dans des foyers de 5 pays européens. D'un point de vue scientifique, ce rapport devrait aider à jeter la lumière sur une voie d'exposition à long-terme aux toxines chimiques – et tous les substances étudiées sont intentionnellement produites pour usage dans les biens de consommation. L'autre objectif de ce rapport est de démontrer à nos hommes politiques nationaux qu'ils doivent également reconnaître ce problème et s'engager à défendre et à mettre en œuvre une législation communautaire solide et efficace.

Pendant trop longtemps les citoyens européens se sont retrouvés face à ce qui ressemblait parfois à une marée incessante de faits alarmants relatifs à leur exposition quotidienne à des substances chimiques toxiques. Trop longtemps, ils se sont sentis incapables de retenir cet assaut chimique contre eux mêmes et leurs enfants. La nouvelle législation européenne (REACH) constitue une occasion sans précédent de changer cela. Voici une lueur d'espoir pour le citoyen ordinaire : l'espoir d'un environnement libéré de tout contaminant chimique de synthèse. L'Europe peut montrer la voie vers cet objectif et, ce faisant, revitaliser son industrie chimique, garantissant un avenir sain dans lequel on fabrique des produits plus écologiques.

Greenpeace n'est pas opposée à la fabrication et à l'utilisation de substances chimiques synthétiques, mais nous insistons sur le fait

qu'il n'est pas acceptable qu'un enfant puisse être déjà contaminé par des polluants industriels à sa naissance. Autrement dit, nous prétendons que l'industrie chimique et les utilisateurs en aval de ses produits n'ont pas le droit d'exposer contre son gré l'ensemble de la population à des substances chimiques industrielles, dont un grand nombre possèdent des caractéristiques inconnues. C'est pourtant précisément ce qu'ils font aujourd'hui. Les gouvernements nationaux et européen ont le devoir de protéger leurs citoyens contre ces expositions. C'est pourtant précisément ce qu'aujourd'hui ils ne font pas.

Par la publication de ce rapport, Greenpeace a deux objectifs. Tout d'abord faire en sorte qu'il n'y ait plus aucun doute sur la gravité et l'omniprésence de la contamination de notre environnement, y compris de nos logements. Ensuite faire en sorte que les citoyens sachent que leurs représentants élus ont, en ce moment même, la possibilité de changer cette situation.

Greenpeace attend de ces élus qu'ils saisissent cette opportunité. Nous pensons que le public a les mêmes attentes.

### ***Les substances chimiques dans notre domicile***

De nombreux produits de consommation que nous utilisons ou avec lesquels nous sommes en contact, à la maison, au bureau, à l'école, à la crèche, etc... contiennent des additifs chimiques. Ces additifs confèrent des propriétés particulières aux produits que nous achetons : tapis, rideaux, cosmétiques, téléviseurs ou jouets. Par exemple, certains additifs donnent aux plastiques leur caractère flexible, d'autres ignifugent les textiles, empêchent le développement des moisissures, s'attaquent aux acariens ou servent d'agent odorant. Bien entendu, nous ne voyons pas ces substances chimiques. La plupart du temps, nous ne suspectons même pas leur présence.

En fait, nous sommes généralement inconscients des conséquences chimiques de la production, de l'usage et de l'élimination des produits dont nous nous entourons. A notre décharge, les informations sur le contenu chimique des produits sont rarement fournies. Et puis, tant que ces produits ont une fonction

utile, à quoi bon s'embarrasser de toutes ces informations ?

Le problème est que de nombreuses substances incorporées dans une large gamme de biens de consommation sont intrinsèquement dangereuses, c'est-à-dire toxiques pour les mammifères et l'ensemble de la faune, et dénuées de mécanismes naturels de dégradation. De plus, elles ne demeurent pas confinées dans les plastiques, les textiles ou autres matériaux dans lesquels on les a incorporées et peuvent s'en échapper au cours de leur usage normal et quotidien. Ainsi, tout en rendant les services justifiant leur présence, de nombreux additifs nous exposent également à une menace chimique, invisible, mais significative.

Par exemple, les esters de phtalates (phtalates) massivement utilisés comme assouplissants des revêtements de sol en PVC flexible (vynile), des jouets et de bien d'autres produits sont connus pour leur toxicité pour le développement de l'appareil reproductif des mammifères. Les alkylphénols, d'usage rapporté dans certains shampoings et autres "produits de soin corporel", et une gamme de substances bromées utilisées comme retardateurs de flamme, peuvent interférer avec les systèmes hormonaux vitaux à la croissance et au développement. Les composés organiques du métal étain (organoétains), utilisés comme fongicides ou comme stabilisateurs des produits en PVC rigide ou souple, sont néfastes pour le système immunitaire des mammifères, y compris des hommes.

Sans que nous en ayons conscience, nous sommes quotidiennement exposés à ces dangers chimiques, à travers l'utilisation des biens de consommation, par le contact avec les poussières où peuvent s'accumuler ces substances et même, dans une certaine mesure, à travers l'air que nous respirons dans l'environnement domestique.

En plus d'être intrinsèquement toxiques, des additifs chimiques d'usage massif comme les organoétains, les retardateurs de flamme bromés ou les paraffines chlorées sont aussi extrêmement persistants, c'est-à-dire qu'une fois libérés dans l'environnement domestique ou extérieur, ils ne se dégradent pas en d'autres molécules inoffensives. Au contraire,

ils peuvent alors se disperser encore plus largement dans l'environnement, transportés par les cours d'eau ou les courants aériens. De plus, du fait même de leur structure chimique, certains possèdent une forte affinité pour les tissus gras et peuvent en conséquence s'accumuler au cours du temps dans le corps des animaux et contaminer la chaîne alimentaire.

Les substances chimiques présentant une telle combinaison de propriétés sont couramment dénommées Polluants Organiques Persistants, ou POP. La nature et l'étendue des menaces posées par les POP, à l'échelle mondiale, sont de plus en plus reconnues et des efforts ont été effectués pour parvenir à les contrôler. Pour l'heure, toutefois, seule une poignée de substances font l'objet d'une telle régulation. Plusieurs autres substances avec des propriétés similaires aux POP demeurent largement produites et utilisées, en Europe et dans le monde.

Ainsi, pendant toutes ces années où nous avons, en tant que consommateurs, fait reposer inconsciemment notre confort sur l'usage d'additifs chimiques dangereux, ces substances se sont massivement transformées en contaminants de l'environnement. La libération de substances chimiques peut intervenir à n'importe quelle étape du cycle de vie d'un produit, au cours de sa fabrication, pendant son utilisation ou lorsqu'il devient un déchet. Certains des additifs chimiques les plus communément employés sont aujourd'hui détectables dans les zones les plus reculées de la planète, en arctique et dans les fonds océaniques. Avec pour seconde conséquence de nous exposer à ces substances au travers de notre alimentation.

Nous portons tous les stigmates de notre société chimique dans notre corps, sous la forme de résidus de substances toxiques et persistantes contaminant notre sang ou nos tissus gras. Si, pour les substances les plus bioaccumulables, l'alimentation constitue la voie majoritaire d'exposition, pour d'autres, le simple usage des biens de consommation ou la respiration d'air contaminé ou de poussières pourraient conduire à une exposition d'égale importance voire encore plus significative. Toutefois, il demeure un tel déficit d'informations sur la présence et les quantités

d'additifs chimiques dans les produits ménagers et autres biens de consommation.

Cette étude est une tentative de description en détails de l'environnement chimique du foyer, au travers de la collecte et de l'analyse de poussières domestiques, dans lesquels les substances les plus préoccupantes sont susceptibles de s'accumuler. Ceci ne constitue de toute évidence qu'une partie seulement du tableau, et ne permettra pas d'évaluer quelle part de la contamination chimique de notre corps provient de l'exposition domestique. Néanmoins, cette étude devrait aider à améliorer notre degré de connaissance et de compréhension de l'environnement chimique dans lequel nous vivons.

Comme indiqué ci-dessus, cette étude représente la seconde phase du travail de Greenpeace sur la contamination chimique des poussières domestiques, poursuivant l'étude publiée en mai 2003 (Santillo *et al.* 2003) qui se focalisait surtout sur les foyers britanniques. La présente étude étend cette recherche à un plus grand nombre de pays d'Europe, dont la France, l'Espagne, l'Allemagne, l'Italie et la Slovaquie. Un de ses principaux objectifs est de déterminer si le schéma et l'échelle de la contamination rapportées pour les foyers britanniques sont représentatifs des poussières des foyers européens en général, ou si des différences consistantes et significatives peuvent être observées. Par ailleurs, nous espérons que les résultats de ces investigations, combinés avec les précédents, contribueront à améliorer la compréhension scientifique des distributions et expositions chimiques de l'environnement domestique.

### ***Les poussières domestiques en tant qu'indicateurs chimiques de la contamination du foyer***

Les poussières domestiques ne sont pas de simples substances chimiques ou particules physiques, mais une mixture hautement hétérogène de particules organiques et inorganiques et de substances chimiques. Leur composition précise dans un logement particulier, ou même dans chaque pièce, dépendra d'un grand nombre de facteurs dont l'emplacement et le type de construction du logement, la fonction de la pièce, le type de

matériaux de décoration et d'ammeublement, les systèmes de chauffage et de ventilation, la qualité et la fréquence du ménage, voire même l'époque de l'année (Edwards *et al.* 1998, Butte and Heinzow 2002).

Les dangers sanitaires des poussières engendrés uniquement par leur nature physique, en particulier par la présence de très fines particules, ont été reconnus et bien documentés depuis de nombreuses années. L'importance du rôle des poussières comme "puits" et réservoirs des substances chimiques du foyer, et, par conséquent, comme sources potentielles d'exposition chimique, a été, elle, très peu étudiée.

Nous pouvons être exposés aux poussières, et aux substances chimiques qu'elles contiennent potentiellement, au travers d'une combinaison d'inhalation, d'ingestion (aliments contaminés, mastication de jouets ou d'autres supports et même d'absorption directe par la peau (Lewis *et al.* 1994). Les poussières, à l'intérieur comme à l'extérieur du foyer, peuvent constituer une source particulièrement importante d'exposition chimique pour les enfants (Butte and Heinzow 2002). Par exemple, en terme d'exposition en milieu extérieur, Yin *et al.* (2000) souligne la contribution substantielle de l'exposition estivale au plomb issu des poussières urbaines contaminées. Dans l'environnement intérieur également, l'exposition aux poussières est de plus en plus prise en compte dans les études sur l'exposition chimique des enfants (Wilson *et al.* 2001).

D'importance équivalente à l'exposition directe, la remise en suspension de poussières contaminées dans l'atmosphère peut contribuer à la distribution étendue dans l'environnement de substances chimiques liées aux poussières. L'élimination régulière des poussières domestiques collectées dans l'aspirateur familial constitue sans aucun doute une source potentielle de contamination plus envahissante ; de la même façon, le cheminement des poussières d'extérieur (en particulier celles des routes) vers les égoûts et les réseaux d'orage peut provoquer des apports secondaires substantiels de substances chimiques dans les rivières (Irvine and Loganathan 1998).

Jusqu'alors, la caractérisation chimique des poussières, et l'évaluation de leur importance comme agents contributeurs à l'exposition générale, étaient largement limitées à quelques métaux lourds, principalement le plomb. Le plomb est une toxine sévère du développement ainsi qu'un contaminant majeur associé universellement avec la pollution routière, où il est libéré par l'usage de carburants plombés ou des pièces en plomb assurant l'équilibrage des roues (e.g. see Vojta *et al.* 2002). Il est également libéré par une variété de sources industrielles, comme l'exploitation minière, les hauts-fourneaux et les incinérateurs de déchets.

Les premières études de la contamination chimique des poussières intérieures se sont par conséquent focalisées sur leur propension à accumuler le plomb et d'autres métaux provenant essentiellement de sources extérieures. Par exemple, des niveaux de contamination des poussières au plomb plus élevés furent clairement mis en évidence dans des foyers situés à forte proximité de certaines sources industrielles en Allemagne (Meyer *et al.* 1999) et dans des zones de trafic dense à Hong-Kong (Tong and Lam 2000). Par ailleurs, dans des foyers plus éloignés de sources externes aussi évidentes, des niveaux de plomb et d'autres métaux furent associés plutôt à des sources intérieures au foyer. Ainsi, Tong and Lam (2000) ont mis en évidence une corrélation entre le plomb des poussières domestiques et la couleur des peintures des murs et des installations intérieures, celle-ci changeant en fonction de la composition en plomb des peintures. Il est certain que, dans les domiciles où ont été apposées ou demeurent encore des peintures au plomb, les niveaux induits dans les poussières sont susceptibles de constituer une source au moins aussi importante que les sources extérieures, voire plus élevée (Adgate *et al.* 1998).

Pour d'autres groupes chimiques, la situation est susceptible d'être similaire. Là où sont situées des sources externes de résidus de pesticides, par exemple dans des résidences agricoles, de telles sources peuvent constituer la première contribution à la contamination générale des poussières intérieures via la présence de contaminants sur les chaussures et les habits des résidents (e.g. Curl *et al.* 2002).

En contraste, dans l'environnement urbain, la présence substantielle de résidus de pesticides dans les poussières est plus probablement liée à l'usage direct de ces produits dans le domicile. Par exemple, Gurunathan *et al.* (1998) ont rapporté l'accumulation de résidus du pesticide organophosphoré chlorpyrifos sur plusieurs supports dans des foyers américains. Bien que ce fait particulier soit probablement d'un moindre intérêt pour une grande part de l'Europe, où l'usage ménager des pesticides tend à être moins prévalent, il permet d'illustrer combien il ne faut pas négliger les sources domestiques de contamination. Ce pourrait bien être le cas pour un certain nombre d'autres substances chimiques, incorporées dans les produits de consommation.

Butte and Heinzow (2002) ont effectué la revue la plus documentée à ce jour des recherches conduites sur les contaminants des poussières domestiques. Quoique synthétisant les nombreuses études conduites sur les conséquences de l'usage domestique des pesticides, en particulier aux Etats-Unis, la revue de Butte and Heinzow permet également de souligner la pauvreté des informations disponibles sur les autres contaminants chimiques. Ceci est particulièrement vrai pour ces substances qui ne sont pas délibérément ou consciemment utilisés dans le foyer mais qui se manifestent, comme dit précédemment, simplement par conséquence de leur usage répandu dans les produits de consommation. Ainsi, même s'il est bien connu et documenté que les phthalates, les organoétains et les retardateurs de flamme bromés migrent hors des produits durant l'usage et au fil de leur usure, il existe très peu d'informations qui décrivent leur prévalence dans les poussières domestiques.

Rudel *et al.* (2001) ont rapporté la présence de phthalates, de résidus de pesticides et d'hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) dans l'air et les poussières de bureaux ou de foyers ; les phthalates étaient présents à des concentrations atteignant 0,5 g par kg de poussières (500 mg/kg ou parties par million, ppm). Des composés de nonylphénol étaient également présents, jusqu'à 14 ppm. De plus, un large éventail d'autres composés, dont nombreux suspectés d'être des perturbateurs endocriniens (capables d'interférer avec le

système hormonal) furent aussi identifiés dans la majorité des domiciles et des bureaux étudiés. Lagesson *et al.* (2000) ont rapporté similairement une variété de substances synthétiques comme constituants des poussières intérieures.

Les retardateurs de flamme bromés comme chlorés ont déjà été précédemment identifiés comme des contaminants de l'air et des poussières intérieurs. Bergman *et al.* (1997) ont identifié une gamme de ces substances dans de la poussière en suspension dans l'air de plusieurs bureaux de Stockholm équipés d'ordinateurs. Plus récemment, Sjödin *et al.* (2001) ont rapporté des découvertes similaires dans une usine de recyclage d'électronique, ainsi que dans d'autres environnements de travail ; parmi les concentrations les plus élevées étaient celles des plus grosses molécules, des substances pour lesquelles l'exposition par d'autres sources est souvent considérée comme négligeable. Ingerowski *et al.* (2001) ont décrit la présence de composés organophosphatés chlorés, utilisés comme retardateurs de flamme dans les mousses, les peintures, les vernis et les revêtements muraux, dans l'air et les poussières intérieurs (à des concentrations jusqu'à 375 ppm dans les poussières).

Au cours de l'année 2000, Greenpeace International en conjonction avec les bureaux nationaux de Greenpeace a collecté des échantillons de poussières de bâtiments parlementaires dans plusieurs pays européens. Tous les échantillons se sont révélés contenir des niveaux substantiels de retardateurs de flamme bromés et de composés organoétains (Santillo *et al.* 2001, Leonards *et al.* 2001). Là encore, les substances bromées (en particulier le decabromodiphényl éther, ou deca-BDE) les plus lourdes (plus grande taille moléculaire) étaient présentes aux plus hautes concentrations, bien que des composés plus légers et plus bioaccumulatifs furent aussi détectés dans tous les échantillons. Comme indiqué précédemment, ce fait est particulièrement significatif car il suggère que des composés tels que le deca-BDE, pour lesquels l'exposition par l'alimentation est probablement d'importance moindre, une combinaison d'ingestion, d'inhalation et de contact cutané avec les poussières contaminées peut contribuer substantiellement à



l'exposition générale. Le Déca-BDE a été mesuré à des concentrations comprises entre 0,26 et 6,9 ppm dans les poussières du Parlement. Les composés organoétains étaient aussi prévalents, avec des concentrations totales s'étalant de 0,49 à 3,5 ppm, dominé par ces formes (mono- et dibutyl étain, ou MBT et DBT) utilisées comme stabilisateurs du PVC.

L'étude des poussières de parlements, ainsi qu'un éventail limité d'autres études publiées à ce jour, illustrent l'utilité des analyses de poussières comme une façon de caractériser plus avant les environnements chimiques intérieurs auxquels nous sommes le plus souvent exposés, présentement le lieu de travail et le domicile.

En mai 2003, Greenpeace a publié une étude de la contamination chimique de poussières collectées sur un total de 100 foyers issus de 10 régions britanniques (Santillo *et al.* 2003). Cette recherche a confirmé la présence répandue d'esters de phtalates, de retardateurs de flamme bromés et de composés organoétains dans les poussières domestiques, avec pour composés les plus abondants, le phtalate DEHP et les retardateurs de flamme décabromodiphényl éther (BDE-209) et hexabromocyclododécane (HBCD). La présence commune du nonylphénol et de paraffines chlorées à chaîne courte a également été mise en évidence, ainsi qu'une vaste éventail d'autres substances synthétiques comprenant des pesticides et d'autres additifs chimiques communs des produits de consommation. Cette précédente étude couvrait aussi un petit nombre d'échantillons issus d'autres pays européens, révélant des gammes et des schémas de contamination similaires, retardateurs de flamme bromés mis à part où les résultats semblaient plutôt indiquer des niveaux inférieurs.

La présente étude, rapportée ci-dessous, cherche à étendre ce travail à une couverture géographique plus large, en appliquant des techniques similaires aux échantillons de poussières collectées dans des maisons et des immeubles de cinq pays européens ; Allemagne, Espagne, France, Italie et Slovaquie.

Un total de 58 échantillons ont été prélevés en France, représentant 5 grandes villes et 7 échantillons additionnels d'intérêt spécifique

(lieu, figure politique ou médiatique). 22 échantillons ont été prélevés en Espagne, représentant 4 régions. 5 échantillons furent prélevés en Allemagne, représentant 5 villes différentes, ainsi qu'en Italie, tous en provenance de Rome. 8 échantillons furent prélevés en Slovaquie, quatre pour chacune des deux régions géographiques.

Pour des raisons logistiques, les analyses complètes pour chacune des substances recherchées n'ont pas pu être effectuées sur l'intégralité des échantillons. Chaque fois que cela était possible, les analyses ont été conduites sur des échantillons individuels afin de conserver un pouvoir statistique. Cependant, quelques analyses ont été effectuées sur des échantillons composites (rassemblés), préparés par mélange de quantités égales d'échantillons individuels après criblage et homogénéisation. Ce qui réduit inévitablement le pouvoir statistique, mais offre la possibilité d'étendre la gamme de groupes chimiques à cibler et une idée des concentrations moyennes pour une région (critère d'élaboration des échantillons composites), tout en permettant des économies de temps et de ressources. Les détails du programme de prélèvements et de la préparation des échantillons individuels et composites sont fournis ci-dessous dans le paragraphe sur la méthodologie.

### ***Substances recherchées dans cette étude***

Comme nous l'avons déjà mentionné, cette étude se focalise sur la présence dans les poussières de substances chimiques dangereuses provoquée par leur usage massif (quoique faiblement documenté) dans les produits de consommation du foyer. Nous avons décidé, par conséquent, de cibler les analyses sur la recherche de 5 mêmes familles principales de composés déjà couvertes par l'étude britannique, caractérisées par de gros volumes déclarés de production et par des propriétés intrinsèquement dangereuses :-

- *Alkylphénols* (nonylphénol, octylphénol et leurs dérivés) – utilisation principale comme surfactants non-anioniques dans les détergents industriels, également utilisés comme traitements de finition

des textiles et du cuir, dans les peintures à l'eau et comme composants de produits cosmétiques;

- *Retardateurs de flamme au brome* (diphényl éthers polybromés ou PBDE, hexabromocyclododécane ou HBCD, et tétrabromobisphénol-A ou TBBP-A) – appliqués sur les textiles et/ou incorporés dans les plastiques, les mousses et les composants des produits électriques et électroniques afin d'empêcher ou de retarder l'extension du feu.
- *Composés organoétains* (butylétains, octylétains) – dont les mono- et di-butyl et les octylétains utilisés comme stabilisants des plastiques, particulièrement le PVC, et le tributylétain (TBT) utilisé comme traitement anti-acariens et anti-moisissures de certains tapis et des revêtements de sol en PVC.
- *Esters de phthalates* (dont le très connu di(2-éthylhexyl)phthalate ou DEHP, parmi d'autres) – utilisés comme plastifiants dans les produits en PVC flexible tels que les revêtements de sols, les revêtements muraux, les meubles, les vêtements et les jouets, ainsi que comme ingrédients des cosmétiques et des parfums.
- *Paraffines chlorées à chaîne courte* (SCCP) – moins produites et utilisées aussi massivement qu'avant, mais encore incorporées dans certains plastiques, caoutchoucs, peintures et mastics et toujours un contaminant important du fait de leur utilisation passée.

Tous ces groupes sont chimiquement bien distincts les uns des autres et présentent des propriétés très différentes, même au sein d'une même famille pour certains d'entre eux. Néanmoins, ils ont en commun un certain nombre de caractéristiques qui justifient des préoccupations officielles et croissantes concernant leurs utilisations :

- Ils sont tous toxiques à un ou plusieurs organismes, bien qu'agissant à travers une diversité de mécanismes différents ;
- Ils ne se décomposent pas spontanément en sous-produits inoffensifs, c'est-à-dire qu'ils ont tendance à persister dans l'environnement domestique comme en extérieur ;
- Ils peuvent tous s'échapper ou être libérés des produits de consommation qui les contiennent au cours de l'utilisation normale de ces produits et/ou sous l'effet de l'usure ;
- Ils ont tous été documentés comme des contaminants du corps humain et de l'environnement mondial, dans une large gamme de concentrations.

Les dangers présentés par ces substances ou ces familles chimiques sont bien établis. Par exemple :-

- Les paraffines chlorées à chaîne courte sont classées par la législation européenne comme étant « très toxiques pour les organismes aquatiques » et présentant un « risque possible d'effets irréversibles » en conséquence de leurs propriétés cancérigènes ;
- Le composé organoétain TBT est classé comme « nocif au contact cutané, toxique à l'ingestion, irritant pour les yeux et la peau » et présente un « danger d'atteinte sérieuse à la santé par exposition prolongée par inhalation ou ingestion ».
- Les phthalates DEHP et DBP (dibutyl phthalate) sont classés « toxiques pour la reproduction ».

Le fait que l'ensemble de ces cinq groupes soient désignés comme prioritaires pour l'action par la stratégie de la convention OSPAR pour la protection de l'environnement marin, constitue une illustration supplémentaire de la reconnaissance déjà ancienne et de l'unanimité des préoccupations qui entourent la nature dangereuse de ces familles de substances. La convention OSPAR, signée en 1992 et entrée en vigueur en 1998, est un accord juridique entre 15 pays européens, ayant tous un bassin versant sur la région de l'Atlantique Nord-est, et la

Communauté européenne. La mission d'OSPAR est de protéger l'environnement marin du Nord-est Atlantique d'une diversité de menaces, comprenant la pollution par des substances chimiques dangereuses. En 1998, au niveau ministériel, OSPAR a adopté un Plan stratégique concernant les Substances Dangereuses (OSPAR 1998), comprenant un objectif de cessation de tous les rejets de substances dangereuses dans l'environnement marin d'ici 2020 (l'objectif "une génération"). Un premier pas d'OSPAR vers cet objectif a été de dresser liste de substances chimiques nécessitant une action prioritaire, comprenant entre autres les alkylphénols, les retardateurs de flamme bromés, les organoétains, certains phthalates et les paraffines chlorées à chaîne courte.

Certains usages de ces substances chimiques sont déjà, ou sont sur le point d'être, soumises à des réglementations au niveau de l'Union européenne (c'est le cas des paraffines chlorées à chaîne courte, du TBT et, très récemment de certains retardateurs bromés). Malheureusement, pour l'essentiel, leur utilisation et leur présence dans les produits de consommation se poursuivent sans fléchir.

Des profils plus détaillés de chacun des cinq groupes cibles, leurs usages, leur distribution

dans l'environnement, leurs dangers et leur statut réglementaire actuel, sont disponibles en Annexe 2. En sus des analyses quantitatives effectuées sur ces polluants cibles, nous effectuons aussi une analyse qualitative plus large (screening) afin de fournir quelques informations préliminaires sur la présence d'autres substances chimiques de synthèse.

Avant tout, nous espérons que l'étude présente contribuera à une meilleure connaissance et une meilleure compréhension de l'environnement chimique dans lequel nous vivons, de la qualification et de la quantification des substances chimiques auxquelles nous sommes en permanence exposés par cette route. Nous devons souligner encore une fois, que cette étude ne fournira pas (et n'a pas l'intention de fournir) une quelconque estimation de l'apport en contaminants chimiques résultant de l'exposition aux poussières domestiques, que ce soit en termes absolus ou en comparaison avec d'autres sources potentielles. Cela serait une tâche extrêmement complexe, incertaine et subjective à ce stade. Néanmoins, les informations initiales qu'elle apporte pourront se révéler utiles si une telle évaluation est conduite dans le futur.



## Méthodes de prélèvement et d'analyse des échantillons

### Prélèvement des échantillons

Les échantillons de poussières ont été collectés dans les 5 pays participants, fin du printemps 2003, avec la participation directe d'employés ou de bénévoles de Greenpeace des différents bureaux nationaux ou régionaux. Dans tous les cas, les échantillons furent prélevés avec le consentement préalable et informé des occupants des domiciles concernés ou d'autres personnes responsables dans le cas de lieux publics. Bien que les détails précis du choix des sites varient inévitablement d'un pays à l'autre, l'équipement et les procédures ont été harmonisés autant que possible afin d'éviter une contamination croisée et l'introduction de biais systématiques entre les pays.

Tous les échantillons ont par conséquent été prélevés à l'aide d'un aspirateur du même modèle de la même marque (un AEG Vampyr 1700 Watt) avec un sac d'aspirateur AEG neuf à chaque nouvelle adresse visitée. Le nombre de pièces dans lesquelles nous avons prélevé des échantillons a varié selon les lieux (une pièce entière au minimum) selon la quantité de poussières présente, afin d'obtenir suffisamment de poussières pour pouvoir procéder à des analyses. Si les échantillons de poussières peuvent donc être considérés comme représentatifs de chaque foyer, ils ne le sont pas forcément d'une pièce en particulier.

Après chaque prélèvement, les sacs ont été retirés de l'aspirateur, fermés avec du ruban adhésif, puis scellés dans un sac en polyéthylène (PE) résistant. Les échantillons ont ensuite été envoyés groupés par région aux Laboratoire de recherche de Greenpeace, à l'Université d'Exeter au Royaume-Uni, afin d'y être préparés pour les analyses.

### Préparation des échantillons

Au total, 98 échantillons de poussière ont été reçus par nos laboratoires en provenance des cinq pays participant à l'étude. Le tableau ci-dessous indique la provenance des échantillons.

Répartition européenne des échantillons

Pays	Codes échantillons	Nombre total d'échantillons
Allemagne	HD03001 - 03005	5
Espagne	HD03006 - 03027	22
Slovaquie	HD03028 - 03035	8
Italie	HD03036 - 03040	5
France	HD03041 - 03098	58

Dès leur arrivée au Laboratoire de Greenpeace, tous les échantillons ont été passés à travers un tamis d'un calibre de 2 mm, préalablement lavé et rincé avec un solvant<sup>1</sup>, afin d'enlever tous les gros débris et particules reconnaissables qui sinon auraient pu biaiser les résultats d'analyse de façon disproportionnée. Les résidus retenus par les tamis de 2 mm ont immédiatement été éliminés. La fraction tamisée a été à chaque fois recueillie sur une feuille d'aluminium neuve ayant été rincée avec un solvant. Tout contact avec les poussières a été évité lors de cette opération. Les gants utilisés pour manier les sacs et les tamis ont été préalablement nettoyés avec du pentane chimiquement pur pour enlever tout résidu organique issu de leur fabrication. Le tamisage a été effectué dans un environnement hermétique aux courants d'air pour éviter des pertes ou des contaminations croisées dans les échantillons.

### Allemagne

Cinq échantillons de poussière en provenance d'Allemagne ont été reçus par notre laboratoire (codes échantillons HD03001 à 03005). Le tableau ci-dessous indique les endroits où ont été prélevés les échantillons.

<sup>1</sup> Pentane qualité analytique

*Allemagne : Codification des échantillons*

Code échantillon	Ville
HD03001	Hambourg
HD03002	Regensburg
HD03003	Leipzig
HD03004	Berlin
HD03005	???

Après le tamisage et l'homogénéisation, des sous-échantillons ont été prélevés dans chaque échantillon et immédiatement emballés entre deux feuilles d'aluminium rincées au solvant, puis mises dans des sacs en polyéthylène souple qui ont à leur tour été scellés dans des enveloppes de papier kraft. Ces sous-échantillons ont été ensuite envoyés aux laboratoires LGC Ltd, à Teddington au Royaume-Uni, pour une analyse quantitative des concentrations d'esters de phthalates et de composés d'alkylphénol. LGC a également effectué une analyse qualitative de chacun des échantillons pour identifier (dans la mesure du possible) les autres contaminants organiques présents en quantités notables.

Un échantillon composite unique a été préparé en mélangeant des quantités identiques (même poids) de matière tamisée et homogénéisée provenant des trois échantillons dont il restait une quantité suffisante, à savoir les échantillons HD03002, 03003 et 03004. Les quantités restantes des échantillons HD03001 et HD03005 après tamisage et sous-échantillonnage pour analyse par LGC n'étaient plus suffisantes pour être utilisées dans les échantillons groupés. Ces échantillons ont donc été écartés de l'analyse. Les échantillons groupés représentent donc la "moyenne" de trois des cinq échantillons allemands.

L'échantillon groupé unique (codifié GERMANY) a été homogénéisé et divisé en deux portions égales, dont une moitié a été envoyée aux laboratoires GALAB, à Geestacht en Allemagne, pour une analyse quantitative des concentrations de composés organoétains, et l'autre moitié aux laboratoires RIVO (Institut Néerlandais d'étude des pêcheries), à Ijmuiden aux Pays-Bas, pour une analyse

quantitative des concentrations de retardateurs de flammes bromés et des paraffines chlorées à chaîne courte.

## *Espagne*

Au total, 22 échantillons ont été reçus en provenance d'Espagne. Le tableau ci-dessous indique les régions d'origine des échantillons.

*Espagne : Codification des échantillons*

Codes échantillons	Région
HD03006 – 03010 (5 prélèvements)	Madrid
HD03011 – 03016 (6 prélèvements)	Grenade
HD03017 – 03022 (6 prélèvements)	Valence
HD03023 – 03027 (5 prélèvements)	Asturies/León

Des sous-échantillons de chaque prélèvement ont été immédiatement préparés, de la même façon que pour les échantillons allemands, et envoyés aux laboratoires LGC Ltd pour une analyse quantitative des concentrations d'esters de phthalates et de composés d'alkylphénol.

*Espagne : Préparation des échantillons composites*

Région	Echantillons utilisés pour préparer les échantillons groupés
Madrid	HD03007 et 03010 uniquement
Grenade	HD03013, 03014 et 03016
Valence	HD03018, 03021 et 03022
Asturies/León	HD03024 et 03026 uniquement

La préparation d'échantillons groupés (composites) par région pour la mesure des autres composés recherchés a été rendue difficile par les quantités très limitées de poussières présentes dans plusieurs des échantillons après tamisage. Dans la plupart des cas, les quantités restantes après sous-échantillonnage n'étaient pas suffisantes pour être utilisées dans les échantillons groupés.

Pour cette raison, les échantillons groupés par régions ont été également préparés à partir d'un sous-ensemble des échantillons de chaque région, comme indiqué dans le tableau ci-dessus.

Les échantillons groupés ont été codifiés selon leur région. Tout comme pour l'échantillon groupé unique allemand, les quatre échantillons groupés régionaux espagnols ont été ensuite divisés en deux portions, une moitié étant envoyée aux laboratoires GALAB pour une analyse quantitative des concentrations de composés organoétains, et l'autre aux laboratoires RIVO pour une analyse quantitative des concentrations de retardateurs de flammes bromés et des paraffines chlorées à chaîne courte.

### **Italie**

Cinq échantillons de poussière ont été reçus en provenance d'Italie, tous prélevés dans différents endroits de Rome (HD03036 à 03040). Des sous-échantillons de chaque échantillon de matière tamisée ont été envoyés individuellement pour une analyse par LGC. Tout comme pour l'Allemagne, un échantillon groupé unique a été préparé à partir des trois échantillons sur les cinq pour lesquels il restait suffisamment de matière tamisée (à savoir les échantillons HD03036, 03038 et 03039). Cet échantillon groupé, dénommé ITALY, a été divisé en deux et envoyé à GALAB et à RIVO, comme dans les cas précédents.

### **France**

Au total, 58 échantillons de poussière ont été reçus en provenance de France, dont 51 provenaient de logements situés dans cinq villes différents. Le tableau ci-après indique la provenance des échantillons.

Les sept échantillons restants ont été collectés dans d'autres lieux sélectionnés en différents endroits de la France, dont une crèche, une maison de campagne et les logements respectifs d'un député, d'une actrice et d'un toxicologue. Ces échantillons ont été codifiés HD03058 et HD03062 à 03067.

*France : Codification des échantillons*

<b>Codes échantillons</b>	<b>Ville</b>
HD03041 – 03050 (10 prélèvements)	Lille
HD03051 – 03057 et 03059 – 03061 (10 prélèvements)	Toulouse
HD03068 – 03077 (10 prélèvements)	Lyon
HD03078 – 03088 (11 prélèvements)	Nantes
HD03089 – 03098 (10 prélèvements)	Paris

Pour les échantillons de chaque région (ville), un sous-ensemble de cinq échantillons a été choisi pour que LGC mesure leurs concentrations de phthalates, d'alkylphénols et d'autres contaminants organiques. Les cinq échantillons choisis dans chaque ville ont été ceux qui avaient les plus grandes quantités de matière après tamisage.

*France : Préparation des échantillons composites*

<b>Ville</b>	<b>Echantillons utilisés pour préparer les échantillons groupés</b>
Lille	HD03041, 03042, 03043, 03045, 03046, 03047 et 03049
Toulouse	HD03054, 03055, 03056, 03057, 03059, 03060 et 03061
Lyon	HD03069, 03071, 03072, 03073, 03074, 03076 et 03077
Nantes	HD03078, 03080, 03081, 03082, 03083, 03084 et 03088
Paris	HD03089, 03090, 03091, 03093, 03095, 03097 et 03098

Un échantillon groupé unique a également été préparé pour chacune des cinq villes, en mélangeant des quantités identiques de matière tamisée et homogénéisée provenant de sept des dix ou onze échantillons de chaque ville (le tableau ci-dessus indique lesquels). Malheureusement, comme pour les échantillons des autres pays, il n'y avait pas suffisamment de poussières dans tous les échantillons pour qu'ils puissent être tous utilisés pour l'échantillon groupé. Une fois de plus, la sélection d'un sous-ensemble pour le groupement des échantillons a été considéré

comme une approche raisonnable et défendable pour surmonter cette limitation.

Comme pour les échantillons groupés décrits précédemment, les cinq échantillons groupés français ont tous été divisés en deux et envoyés à GALAB et à RIVO.

Sur les sept échantillons restants, représentant divers lieux spécifiques en France, un échantillon (HD03067) a été jugé non-apte à l'analyse parce que la façon dont l'échantillon avait été emballé avant d'être envoyé à notre laboratoire était susceptible d'avoir produit une contamination par les matières d'emballage. Cet échantillon a été écarté des analyses.

Dans le cas des six autres échantillons, les matières tamisées ont été divisées en trois portions égales à chaque fois, qui ont ensuite été envoyées pour analyse à LGC, GALAB et RIVO.

### ***Slovaquie***

Huit échantillons ont été reçus en provenance de Slovaquie, prélevés dans des bâtiments publics (des maternités et des garderies) situés dans deux régions de Slovaquie : HD03028 à

03031 pour le sud-ouest du pays (Bratislava, Trenčín, Prievidza et Handlová) et HD03032 à 03035 pour le nord-est (Banská Bystrica, Poprad, Košice et Prešov).

Les échantillons ont été tamisés et homogénéisés séparément comme ceux des autres pays, mais aucun des échantillons provenant de Slovaquie n'a été envoyé individuellement aux laboratoires effectuant les analyses. A la place, un unique échantillon groupé a été préparé pour chacune des deux régions décrites ci-dessus (c'est-à-dire en mélangeant des quantités identiques de chaque échantillon à chaque fois). Ces échantillons groupés ont ensuite été divisés en deux parties, une moitié étant envoyée à LGC pour une analyse quantitative des phthalates et des alkylphénols, et pour l'analyse qualitative des autres contaminants organiques, et l'autre moitié à RIVO pour mesurer uniquement les paraffines chlorées.

On n'a pas mesuré les concentrations de composés organoétains ou de retardateurs de flammes bromés que contenaient ces échantillons.



## Analyses des échantillons

Voici une description rapide des méthodes d'analyse utilisées. Une description plus précise figure en Annexe 3.

### *Composés d'alkylphénols et esters de phtalates (LGC)*

Environ 10 g de chaque échantillon de poussière ont été extraits dans du dichlorométhane chaud pendant deux heures et demi, l'extrait a ensuite été concentré à 50 ml et conservé à 4°C en attendant l'analyse. Un essai à blanc (sable lavé à l'acide) a également été extrait parallèlement à chaque groupe de 10 échantillons pour vérifier l'absence de contamination du laboratoire. Des solutions standards des composés recherchés ont été analysées parallèlement aux échantillons pour calibrer les instruments. Un standard interne deutéré (c'est-à-dire marqué au deutérium, isotope d'hydrogène non-radioactif) a été ajouté à chaque échantillon avant extraction pour permettre une estimation de la récupération (rendement de l'extraction) des composés recherchés.

Les extraits ont été analysés par chromatographie gazeuse-spectrométrie de masse (GC-MS), les composés cibles suivants ont été mesurés :

- Esters de phtalate : di-méthylphtalate (DMP), di-éthylphtalate (DEP), di-n-propylphtalate (DPP), di-isobutylphtalate (DiBP), di-n-butylphtalate (DnBP), Butylbenzylphtalate (BBP), di-2-éthylhexylphtalate (DEHP), di-isononylphtalate (DiNP) et di-isodécylphtalate (DiDP).
- Composé d'alkylphénol : 4-n-octylphénol (4OP), 4-nonylphénol (4NP) et 4-(1,1,3,3-tert-méthylbutyl)phénol (4TMBP).

Les limites de détection variaient d'un composé à l'autre, selon la taille des échantillons. Pour les besoins de ce rapport, cependant, les limites de quantification ont été fixées à <0,1 ppm dans tous les cas.

### *Autres contaminants organiques (LGC)*

En plus de la quantification des phtalates et des alkylphénols décrite ci-dessus, les mêmes extraits ont ensuite été analysés par chromatographie gazeuse-spectrométrie de masse (GC-MS) (selon le protocole BS6920). Cette opération supplémentaire a été effectuée afin d'identifier tout autre contaminant organique présent dans les poussières en quantités notables (c'est-à-dire provoquant une réponse des instruments notablement au dessus du niveau de fond). Ces composés supplémentaires non-ciblés ont été identifiés, quand cela était possible, en combinant recherche dans des bases de données informatiques et interprétations par des experts des spectrométries de masse. La présence des composés identifiés doit être considérée comme hypothétique (c'est-à-dire qu'elle n'est pas certaine à 100%) car elle n'a pas été confirmée par la comparaison avec une solution standard de chaque nouveau composé identifié. En fait, dans de nombreux cas, de tels standards n'existent même pas. Néanmoins, cette analyse apporte des informations supplémentaires utiles sur les autres contaminants éventuels qui pourraient faire l'objet de vérifications et d'analyses quantitatives à l'avenir.

### *Retardateurs de flammes bromés et paraffines chlorées à chaîne courte (RIVO)*

Les échantillons de poussière ont été extraits avec un mélange hexane:acétone (3:1) à chaud pendant 12 heures et, après ajout de standards internes (PCB 112 et BDE-209 marqué), l'extrait a été concentré sur un évaporateur rotatif, acidifié puis la couche organique recueillie. La couche d'eau a été extraite encore deux fois avec de l'isooctane avant que tous les extraits organiques soient mélangés et concentrés dans 2 ml de dichlorométhane. Chaque extrait a été nettoyé par chromatographie par perméation sur gel (CPG), concentré sous azote, dissout dans de l'isooctane et ensuite purifié par agitation avec

de l'acide sulfurique. Enfin, les extraits ont été concentrés sous azote à 2 ml, élués sur un colonne de gel de silice et concentrés à 1 ml pour analyse.

L'analyse a été effectuée par chromatographie gazeuse-spectrométrie de masse (GC-MS), en utilisant une ionisation négative par capture d'électrons (ECNI). On a trouvé dans chaque échantillon des concentrations des composés/congénères suivants:

- Diphényléthers polybromés (PBDEs) : tri- (BDE-28), tétra- (BDE-47, 66, 71, 75, 77), penta- (BDE-85, 99, 100, 119), hexa- (BDE-138, 153, 154), hepta- (BDE-190) et déca- (BDE-209).
- Biphényles polybromés (PBBs) : di- (BB-15), tétra- (BB-49, 52), penta- (BB-101), hexa- (BB-153, 155) et déca- (BB-209).
- Hexabromocyclododécane (HBCD).
- Tetrabromobisphénol-A (TBBPA), ainsi que ses dérivés avec du méthyle.

Les limites de détection (sur la matière sèche) variaient d'un composé sur l'autre, en fonction de la sensibilité du détecteur et furent affectées dans certains cas par des interférences entre substances éluant simultanément. L'analyse des SCCP est assez

difficile du fait du mélange très complexe que forment ces composés et, par conséquent, elle ne fut ici que semi-quantitative.

### ***Composés organoétains (GALAB)***

Tous les échantillons ont été passés à travers un tamis de 0,065 mm avant d'être extraits à l'aide d'un mélange méthanol/hexane et analysés par chromatographie gazeuse / détection d'émission atomique (GC/AED), selon des méthodes agréées. Les concentrations des composés suivants ont été mesurées dans chaque échantillon :

- Butylétains : mono-, di-, tri-, et tétra-butylétain (respectivement MBT, DBT, TBT et TeBT)
- Octylétains : mono- et di- octylétain (MOT et DOT, respectivement)
- Tricyclohexylétain (TCHT)
- Triphénylétain (TPT)

Les limites de détection pour tous les composés organoétains était de de 1 ng de cation d'étain par g de matière sèche (partie par milliard) dans tous les cas.

## Résultats et commentaires

### *Composés cibles*

Les concentrations des cinq groupes de composés qui ont fait l'objet d'analyses quantitatives lors de la présente étude sont présentées, par pays, dans les tableaux R1 à R5. A chaque fois que cela est possible, trois statistiques sont données pour chaque composé, dans chaque pays :

- La **valeur médiane** pour situer le centre des fourchettes de valeurs ;
- L'**amplitude** (valeurs les plus hautes et les plus basses enregistrées), pour connaître la dispersion des valeurs ; et
- La **fréquence de détection** (nombre d'échantillons individuels ou groupés, parmi l'ensemble des échantillons analysés, dans lesquels un composé ou groupe de composé a été retrouvé).

Compte tenu des défauts de certains ensembles de données (qui contiennent un petit nombre de valeurs très élevées pesant de façon disproportionnée sur la moyenne), les valeurs médianes ont été considérées comme un meilleur indicateur du centre des fourchettes que les moyennes. Seules les médianes, c'est-à-dire la valeur centrale d'une série de valeurs ordonnées numériquement, sont indiquées dans le présent rapport. A chaque fois, les médianes ont été calculées en considérant toutes les valeurs au dessous des limites de détection/quantification comme nulles.

Dans les cas où seuls des échantillons groupés uniques (composites) ont été analysés dans un pays, ce sont ces valeurs uniques qui sont indiquées dans les tableaux.

Les résultats détaillés de chaque groupe de composés, pour les échantillons nationaux ou régionaux individuels et/ou groupés (composites), sont présentés dans l'Annexe 1.

Pour pouvoir faire des comparaisons, les tableaux R1 à R5 contiennent également des données provenant d'analyses précédentes effectuées sur des échantillons de poussières domestiques provenant du Royaume-Uni

(Santillo et al., 2003). Dans les grandes lignes, les échantillons analysés dans la présente étude, qui proviennent de cinq pays d'Europe continentale, contenaient des niveaux d'esters de phthalates et de paraffines chlorées à chaîne courte plutôt supérieurs, des niveaux d'organoétains à peu près identiques, et des niveaux d'alkylphénols et de retardateurs de flammes bromés plutôt inférieurs à ceux des échantillons britanniques analysés dans l'étude précédente.

### **Esters de phthalates**

Sur les 9 esters de phthalates spécifiques qui ont été quantifiés, 3 (le DiBP, le DnBP et le DEHP) ont été mesurés à des niveaux supérieurs aux limites de détection (LOD) dans tous les échantillons analysés pour tous les pays (Tableau R1). Un quatrième, le BBP, a été retrouvé dans tous les échantillons sauf un (provenant de France), alors que du DEP a été trouvé dans tous les échantillons sauf deux (provenant également de France, tous les deux).

Entre la moitié et les deux tiers des échantillons contenaient les isomères de phthalates DiNP et DiDP, avec des fréquences légèrement supérieures en France par rapport aux autres pays. On n'a détecté du DDP que dans 3 des échantillons analysés dans de cette étude (tous français), à des niveaux relativement peu élevés variant entre 1,22 et 3,0 parties par million (ppm). Ces données n'ont pas été incluses dans le Tableau récapitulatif R1.

Dans presque tous les échantillons, l'ester de phthalate le plus abondant était le DEHP, une substance couramment utilisée, représentant 22 à 89 % du total des concentrations de phthalates en poids, la fourchette se situant le plus souvent entre 40 et 60 %. Une prédominance similaire a été observée dans la précédente analyse de poussières britanniques (Santillo et al., 2003). Les concentrations de DEHP dans les poussières de la présente étude variaient dans une fourchette assez importante, allant de 15 à 3 289 ppm, mais étaient généralement plus élevées que celles relevées

dans les poussières britanniques. La valeur médiane la plus élevée est celle des cinq échantillons allemands (996 ppm, soit près de 1 mg de DEHP par gramme de poussière), bien que les deux échantillons composites de Slovaquie aient tous deux contenu des concentrations plus importantes (1 290 et 2 124 ppm). Les poussières italiennes, françaises et espagnoles ont des valeurs médianes plus basses pour le DEHP (respectivement 434, 504 et 317 ppm), bien que les concentrations des échantillons individuels soient élevées dans tous les cas et que quelques échantillons individuels français et espagnols contenaient certains des niveaux de DEHP les plus élevés de l'étude. Ainsi, dans les villes de Lille, Toulouse et Nantes en France, ainsi que dans la région des Asturies en Espagne, on a trouvé pour chacune un échantillon contenant plus de 2 000 ppm de DEHP (2 mg/g de poussière) (voir Annexe 1). Un autre échantillon français (HD03062, ou SP01) contenait plus de 3 000 ppm de DEHP.

Le DiBP était le phthalate le plus abondant dans 7 des 65 échantillons, alors que le DnBP et le BBP étaient prédominants dans un seul échantillon chacun. Néanmoins, ces trois composés ont été retrouvés dans la grande majorité des échantillons, avec des valeurs médianes et maximum situées dans une fourchette similaire à celles de l'étude de poussières britanniques (Santillo et al., 2003) et à celles relevées précédemment dans des poussières domestiques allemandes par Butte et Heinzow (2002). La présence de DEP, beaucoup utilisé pour les parfums, cosmétiques et autres produits de beauté, était également commune à presque tous les échantillons, une fois encore dans des concentrations similaires à celles précédemment relevées dans les poussières britanniques.

Il apparaît clairement dans le Tableau R1 que les concentrations cumulées de tous les phthalates mesurés individuellement (colonne « Total des phthalates ») dans les cinq pays de la présente étude étaient généralement plus élevées que celles précédemment relevées dans des poussières comparables prélevées au Royaume-Uni (valeur médiane de 354 ppm pour l'ensemble des phthalates, fourchette comprise entre 1,6 et 1 019 ppm). Ainsi, près de la moitié des 65 échantillons individuels

analysés dans la présente étude contenaient une concentration dépassant le maximum relevé dans l'étude sur les poussières britanniques. Dans les cas de l'Allemagne, de l'Italie et de la Slovaquie, la portée des statistiques est limitée par le nombre relativement petit d'échantillons individuels analysés. Cependant, la comparaison statistique des concentrations totales de phthalates dans les poussières provenant de France, d'Espagne et du Royaume-Uni indique clairement que les concentrations dans les échantillons britanniques étaient notablement inférieures. De plus, bien que la différence soit plus modeste, une analyse similaire des données confirme que les poussières provenant de France étaient, en moyenne, notablement plus contaminées que celles provenant d'Espagne.

A cause du petit nombre d'échantillons, et de la dispersion assez importante des concentrations individuelles, il est difficile de tirer des conclusions certaines en ce qui concerne la signification des différences de contamination par des phthalates entre les régions d'une même pays. Néanmoins, certains échantillons individuels sortent du lot. L'échantillon français HD03062 (SP01) est particulièrement remarquable car il contenait plus de 7 000 ppm de phthalates (7 mg/g de poussière), dont plus de 3 000 ppm pour le BBP et pour le DEHP. On ne peut pas exclure la possibilité que ces concentrations très élevées de phthalates, et peut-être celles d'autres échantillons soient dues à la présence de petits fragments de PVC passés à travers le tamis avec la fraction de poussière homogénéisée, bien que la plus grande précaution ait été prise pour faire en sorte qu'aucun des échantillons préparés ne contienne de fibres ou fragments reconnaissables. Dans tous les cas, les résultats confirment qu'à cause de leur utilisation courante dans des produits que l'on trouve dans les logements, les esters de phthalate sont des composés chimiques omniprésents et très abondants dans les poussières domestiques à travers toute l'Europe.

Vous trouverez plus d'informations sur les utilisations courantes et les dangers de divers esters de phthalates dans l'Annexe 2.

## Alkylphénols

Contrairement à ce qui avait été observé dans les poussières domestiques britanniques, on n'a que rarement trouvé du nonylphénol lors de la présente étude (Tableau R2). Ce composé a été retrouvé dans 22 des 29 échantillons britanniques, à des concentrations pouvant monter jusqu'à 35,2 ppm (valeur médiane de 9,8 ppm). Au contraire, on n'a détecté du nonylphénol que dans 5 des 22 échantillons espagnols, 1 des 31 échantillons français et 1 des 5 échantillons italiens. Quand on en a trouvé, les concentrations se trouvaient dans une fourchette assez basse, généralement inférieure à 1 ppm. Aucun des 5 échantillons allemands ne contenait de niveaux détectables. Ces résultats montrent également une plus faible abondance dans les pays d'Europe continentale que ceux de l'étude de Butte et Heinzow (2002), qui avaient relevé des concentrations médianes pour les poussières domestiques allemandes de 6,2 ppm.

Les deux échantillons composites de Slovaquie contenaient du nonylphénol, à des concentrations elles aussi situées dans une fourchette assez basse. Il est évidemment impossible de savoir si ces niveaux reflètent une contamination générale affectant tous les échantillons individuels à partir desquels les deux échantillons composites régionaux ont été produits ou s'ils résultaient de la dilution d'un échantillon unique plus contaminé lors de la préparation des mélanges.

On n'a pas détecté d'octylphénol ni de 4-(1,1,3,3,-tert-méthylbutyl)phénol (4TMBP) dans le moindre des 65 échantillons analysés dans la présente étude. Du 4TMBP avait été détecté dans 4 des 29 échantillons et de l'octylphénol dans 1 des 29 échantillons de l'étude sur les poussières britanniques (Santillo et al., 2003), bien que dans tous les cas ces composés n'aient que peu contribué aux concentrations totales d'alkylphénols.

Malgré la fréquence relativement faible avec laquelle le nonylphénol a été détecté dans l'étude présente, compte tenu des dangers liés à ce perturbateur endocrinien chimique, sa présence, même dans un sous-ensemble des échantillons de poussière, est véritablement inquiétant. Il n'est évidemment pas possible de déterminer les sources dont cette substance chimique peut provenir dans un cas donné,

même si l'on connaît un certain nombre des utilisations de cette substance (voir Annexe 2 pour plus de précisions sur ses dangers et ses utilisations). La découverte récente de ce composé, et d'éthoxylate de nonylphénol, un composé très proche, dans certains vêtements pour enfants achetés au Royaume-Uni (Peters 2003) indique une source possible de contamination de l'environnement domestique.

## Composés organoétains

Des huit composés organoétains surveillés dans cette étude, quatre ont été trouvés dans tous les échantillons (MBT, DBT, TBT et MOT), tandis qu'un cinquième organoétain n'était absent que d'un seul échantillon (DOT). Aucun des échantillons ne contenait de résidus détectables de TeBT, TCHT ou TPT (Tableau R3).

Les abondances relatives des différents composés étaient similaires dans la majorité des échantillons de France et dans les échantillons composites uniques d'Allemagne et d'Italie, et similaires aussi à ceux précédemment rapportés pour la Grande-Bretagne, avec une prédominance du MBT, des niveaux considérablement moins élevés de MOT et DBT et encore moins élevés de DOT et TBT. Les quatre échantillons composites d'Espagne ont montré une contribution plus équilibrée entre MBT et MOT, bien qu'il puisse s'agir simplement d'un artefact provenant du petit nombre d'échantillons analysés.

Dans l'ensemble, les sommes des composés organoétains étaient les plus fortes en France (médiane 2 234 ppb, 8 échantillons) et les plus faibles pour l'Espagne (1 495 ppb, 4 échantillons), avec les échantillons composites uniques d'Allemagne et d'Italie atteignant des valeurs intermédiaires (1 956 et 1 790 ppb respectivement). Réunies, ces valeurs sont du même ordre, même si bien inférieures, que la médiane de 2 432 ppb déterminée précédemment pour les 10 échantillons composites de Grande-Bretagne. Les concentrations de chaque composé organoétain dans chaque échantillon individuel ou composite figurent dans les Tableaux de l'Annexe 1.

Alors que les concentrations totales d'organoétains dans les échantillons

composites des quatre régions espagnoles se trouvaient dans une fourchette assez étroite (1 125 à 1 958 ppb), les concentrations dans les cinq mélanges régionaux français se trouvaient dans une fourchette plus large. Trois échantillons contenaient des concentrations d'organoétains dépassant les 5 000 ppb (parties par milliard), soit 5 ppm, le mélange de Lille contenant 5 399 ppb, celui de Toulouse 8 806 ppb et celui de Nantes plus de 18 000 ppb (18 ppm), de loin la valeur la plus élevée jamais relevée dans des poussières domestiques jusqu'à présent. Dans les mélanges de Lille et de Nantes, la plus grande partie du total était composé de MOT, bien que les échantillons de Nantes aient contenu également plus de 1 000 ppb (plus de 1 ppm) de DBT, substance connue pour sa toxicité pour le développement du système nerveux et du système immunitaire chez les mammifères (voir Annexe 2). Bien entendu, on ne peut savoir avec ces données si les différences entre mélanges représentent de vraies variations régionales (ou même des variations dues à des sources externes locales), ou sont simplement dues à la présence d'un ou plusieurs échantillons individuels fortement contaminés dans les échantillons qui ont été mélangés. Les niveaux particulièrement élevés d'organoétains dans ces échantillons justifient toutefois des analyses plus poussées des échantillons individuels.

Il est intéressant d'observer que l'échantillon individuel français HD03062 (SP01), qui contenait le plus haut niveau général d'esters de phthalates, contenait parmi les plus faibles concentrations de composés organoétains (928 ppb, la deuxième valeur la plus basse parmi celles relevée dans la présente étude). Compte tenu du fait que les organoétains ont le plus de chances de se retrouver dans l'environnement domestique à cause de leur utilisation comme stabilisant dans des plastiques comme le PVC, on pouvait s'attendre à trouver une meilleure corrélation avec les concentrations d'esters de phthalates. Cette disparité pourrait s'expliquer par le fait que les hauts niveaux de phthalates de l'échantillon HD03062 proviennent principalement de produits en PVC souple qui ne sont normalement pas stabilisés avec des organoétains, comme par exemple des jouets pour enfants. Une fois de plus, une étude plus poussée du lieu de prélèvement de cet

échantillon spécifique serait nécessaire pour que des conclusions plus sûres puissent être tirées.

Bien que ne représentant qu'une contribution relativement faible aux concentrations totales d'organoétains, le TBT est un contaminant notable dans les échantillons de tous les pays. Les concentrations, allant de 11,6 ppb pour le mélange italien à une médiane de 16,2 ppb pour les huit échantillons français, étaient inférieures à la médiane de 49,9 ppb relevée pour les 10 échantillons composites britanniques, mais pas insignifiantes. En effet, l'échantillon composite préparé pour Toulouse contenait plus de 500 ppb (0,5 ppm) de TBT, une immunotoxine pour les mammifères (voir Annexe 2). La source de sa diffusion dans l'environnement domestique a été peu étudiée, mais on sait tout de même qu'il sert d'ingrédient actif dans la finition de certains textiles et peut être présent en tant que contaminant à faible dose dans les préparations d'autre butylétains.

## ***Retardateurs de flamme bromés***

### **Décabromodiphényl éther (BDE-209)**

De tous les diphényl éthers bromés détectés dans les échantillons de poussières de l'étude britannique, le BDE-209 était de loin le plus abondant (médiane 7 100 ppb, soit 7,1 ppm), résultat sans surprise en considération de son usage répandu et continu tandis que des restrictions et des abandons volontaires d'usage ont frappé les autres formulations de PBDE. Dans la présente étude, le BDE-209 était aussi le plus abondant congénère (parmi ceux qui furent quantifiés) de tous les échantillons d'Espagne et de France et dans les analyses de deux échantillons composites allemand et italien, quoiqu'à des concentrations sensiblement inférieures à celles mesurées pour les poussières britanniques (Tableau R4). En effet, la concentration mesurée la plus élevée dans cette étude, 3 400 ppb soit 3,4 ppm dans un échantillon français, demeure inférieure à la concentration la plus basse de 3,8 ppm enregistrée pour les échantillons anglais.

Bien que une telle différence puisse n'être qu'un artefact provenant de la masse limitée des échantillons, cette tendance est confirmée

par les résultats des échantillons composites allemand et italien couvrant un plus grand nombre de prélèvements individuels. Par conséquent, il semble raisonnable de suggérer que ces valeurs reflètent de vraies différences dans la propension à l'usage et l'abondance conséquente dans l'environnement intérieur entre le Royaume-Uni et les autres pays. Cette hypothèse est encore renforcée par les niveaux substantiellement moins élevés de BDE-209 relevés pour les deux échantillons non-britanniques inclus dans l'étude précédente (Santillo *et al.* 2003). Même si aucun des échantillons individuels ou composites que nous avons analysés ne peut être considéré comme représentatif de tous les foyers du pays où il a été prélevé, la différence apparente entre les 10 échantillons britanniques et les 16 échantillons non-britanniques analysés à ce jour est statistiquement très significative.

En dépit de telles différences, les niveaux de BDE-209 dans les échantillons allemands, français, espagnols et italiens demeurent d'un intérêt considérable et pourraient clairement contribuer à une exposition humaine continue à cette substance dans l'environnement domestique. Bien que la contribution à l'exposition générale provoquée par les poussières ne soit pas encore connue, ces résultats soulignent encore une fois l'importance potentielle de cette voie d'exposition additionnelle.

#### **Autres diphenyl éthers bromés**

Le BDE-209 mis à part, plusieurs autres congénères du PBDE ont été fréquemment identifiés dans les échantillons de poussières allemands, espagnols, français et italiens (Tableau R4), encore qu'à des concentrations d'un ordre de magnitude inférieur (10 à 100 fois) à celles du BDE-209. Le congénère tétrabromé BDE-47 et le congénère pentabromé BDE-99 furent tous deux mesurés dans tous les échantillons analysés dans cette étude dans une fourchette de concentrations basse ou moyenne du ppb. Pour ces deux congénères, les concentrations des quatre échantillons composites espagnols (11-16 ppb et 14-21 ppb respectivement pour le BDE-47 et le BDE-99) étaient notablement inférieures à ceux des cinq composites français (11-73 ppb et 16-78 ppb respectivement). Cependant, les plus fortes concentrations enregistrées dans

cette étude pour les deux congénères furent mesurées dans l'échantillon HD03058 (SP05), qui contenait 260 ppb de BDE-47 et 720 ppb de BDE-99.

A la différence du BDE-209, les congénères moins riches en brome tels que le BDE-47 et le BDE-99 ont une forte propension à la bioaccumulation, un facteur qui a permis la croissance rapide de leur concentration dans les tissus corporels et le lait maternel en Europe et en Amérique du Nord (voir Annexe 2) et qui, finalement, a aussi contribué à la mise en place de restrictions de commercialisation et d'utilisation au sein de l'Union européenne. Une fois encore, malgré tout, leur présence dans les poussières domestiques, provoquée probablement par une variété de produits différents traités contre le feu, illustre le fait que l'exposition domestique issue des produits existants restera un problème pour les années à venir, même après l'interdiction de leur incorporation dans de nouveaux produits.

Malheureusement, un des autres congénères de PBDE les plus abondants dans les échantillons britanniques, le BDE-153, n'a pas pu être quantifié dans cette étude du fait d'interférences analytiques (qui ont également empêché la quantification dans cette étude du tétrabromobisphénol A).

#### **Hexabromocyclododécane (HBCD)**

Comme le BDE-209, l'HBCD a été détecté comme un contaminant prédominant de tous les échantillons analysés dans la présente étude, bien que les concentrations fussent généralement largement moins élevées que pour le BDE-209 (Tableau R4). Une fois encore, les niveaux dans les échantillons espagnols, français, allemands et italiens étaient presque tous plus bas que ceux enregistrés pour les poussières britanniques, avec seulement un échantillon composite de France (Lille, 1 600 ppb) et l'échantillon composite allemand (1 200 ppb) excédant la limite basse enregistrée pour les 10 échantillons composites anglais (940 ppb) dans l'étude précédente. Néanmoins, ces données confirment également la présence répandue de ces retardateurs de flamme persistants dans les poussières de l'environnement intérieur pour toute l'Europe. Etant donné ses caractères suspectés

génétoxicité et cancérigène, ainsi que son potentiel à la bioaccumulation, la présence de HCBD de fourchette haute du ppb à fourchette basse du ppm dans les poussières domestiques justifie pleinement la préoccupation.

#### **Tetrabromobisphénol-A**

Comme indiqué ci-dessus, du fait de la co-élution de ce composé avec le BDE-153, le tétrabromobisphénol-A n'a pas pu être quantifié dans la présente étude. Les raisons de cette interférence ne sont pas connues. Il est important de noter, toutefois, que cela n'implique pas l'absence de ces composés dans les échantillons mais simplement que leur présence n'a pu être ni vérifiée ni quantifiée. Étant donné les différences apparentes d'abondance des autres retardateurs de flamme bromés commentés ci-dessus, ce problème est malheureux mais inévitable. Des prélèvements et des analyses supplémentaires, et peut-être le développement des méthodes de laboratoire employées, seraient nécessaires pour résoudre ce problème.

#### ***Paraffines chlorées à chaîne courte (SCCP)***

En contraste avec les concentrations moins élevées de composés bromés identifiées dans les poussières d'Europe continentale en comparaison des poussières britanniques, les niveaux de SCCP étaient, de manière consistante et très marquée, plus élevés que dans l'étude anglaise (Tableau R5). Les concentrations s'évaluaient de 17-41 ppm pour l'Espagne à 30-95 ppm pour la France, avec les échantillons composites uniques d'Italie et d'Allemagne, et les deux échantillons composites de Slovaquie, atteignant des niveaux intermédiaires. Dans tous les cas, les concentrations excédaient la concentration la plus élevée enregistrée pour les échantillons composites anglais (13 ppm).

Les raisons derrière cette différence frappante entre la Grande-Bretagne et l'Europe continentale, et ces niveaux particulièrement alarmants, ne sont pas très claires. Considérant que l'une des applications pour les SCCP est de servir d'additifs retardateurs de flamme dans les textiles, les caoutchoucs et certains plastiques, on peut émettre

l'hypothèse que les fortes concentrations de SCCP dans les échantillons allemands, espagnols, français, italiens et slovaques, couplées avec les concentrations faibles de retardateurs bromés, reflètent les différences dans les schémas historiques (et même courants) d'utilisation d'additifs retardateurs de flamme entre la Grande-Bretagne et le reste de l'Europe. Cette hypothèse n'est que spéculation, en regard du faible nombre d'échantillons sur lequel juger ces différences de distribution, mais elle constitue une anomalie intéressante qui mériterait de plus amples investigations.

Sur la base des évaluations des risques conduites sur les SCCP en UE vers la fin des années 90, des restrictions furent introduites sur la commercialisation et l'usage de ces substances chimiques (UE 2002). Cependant, ces restrictions n'interdisaient l'usage des SCCP que pour les applications d'usinage des métaux et de traitement du cuir, selon le jugement que les autres usages des SCCP, dont son incorporation comme additif plastifiant ou retardateur de flamme dans les polymères et les textiles, ne soulevaient pas de préoccupations significatives pour les rejets dans l'environnement ou la santé humaine. La présence de SCCP à des concentrations atteignant 13 ppm dans les échantillons britanniques soulignait l'urgence de réévaluer la portée trop limitée de ces restrictions réglementaires et de les étendre pour couvrir les autres usages de ces substances chimiques dangereuses. Leur présence à des concentrations considérablement supérieures à ce niveau, atteignant jusqu'à 95 ppm, dans les poussières du reste de l'Europe, permet de renforcer cette conclusion et l'urgence avec laquelle des mesures de restriction additionnelles doivent être entreprises.

Des informations complémentaires sur les usages et les dangers des SCCP sont disponibles en Annexe 2.

#### ***Autres composés organiques (composés non ciblés)***

(section à compléter dès réception des dernières analyses)



Tableau R1: Synthèse des concentrations d'esters de phthalates (médianes, amplitudes et fréquences détectées) dans les échantillons de poussières de cinq pays, et données précédentes des poussières britanniques à titre comparatif

Composé	Allemagne	Espagne	France	Italie (Rome)	Slovaquie	UK
<b>Esters de phthalate</b>	µg/g poussières (parties par million, ppm) [valeur médiane, (amplitude), fréquences détectées]					
DMP	1.42 (<0.1-2.83) 3/5	<0.1 (<0.1-0.92) 2/22	<0.1 (<0.1) 0/31	<0.1 (<0.1-1.5) 1/5	* (<0.1) 0/2	<0.1 (<0.1-1.1) 11/29
DEP	12.9 (1.86-368) 5/5	5.33 (1.09-64.6) 22/22	6.87 (<0.1-49.4) 29/31	6.78 (1.92-23.6) 5/5	* (1.22-4.84) 2/2	3.5 (0.6-114.8) 29/29
DiBP	36.5 (27.9-358) 5/5	148.9 (66.1-409) 22/22	118.8 (16.7-488) 31/31	180.1 (158.2-370.7) 5/5	* (137-149) 2/2	43.2 (0.2-157.4) 29/29
DnBP	44.1 (22.3-1511) 5/5	79.4 (48.6-201) 22/22	55.3 (11.6-624) 31/31	42.8 (22.8-46.8) 5/5	* (600-1029) 2/2	52.8 (0.1-106.4) 29/29
BBP	82.2 (4.4-218) 5/5	4.54 (0.81-153) 22/22	28.2 (<0.1-3551) 30/31	23.6 (9.0-308) 5/5	* (3.8-5.4) 2/2	24.5 (<0.1-238.9) 28/29
DEHP	996 (547-1586) 5/5	317.2 (113-2151) 22/22	504.6 (14.9-3289) 31/31	434.3 (314-933) 5/5	* (1290-2124) 2/2	195.4 (0.5-416.4) 29/29
DiNP	113 (<0.1-250) 4/5	<0.1 (<0.1-717) 6/22	115.3 (<0.1-466) 18/31	<0.1 (<0.1-532) 2/5	* (146-173) 2/2	<0.1 (<0.1-337.2) 11/29
DiDP	<0.1 (<0.1-67.7) 1/5	<0.1 (<0.1-98.8) 6/22	<0.1 (<0.1-170) 11/31	<0.1 (<0.1-380) 1/5	* (<0.1) 0/2	<0.1 (<0.1-156.6) 11/29
<b>Total phthalates</b>	<b>1287</b> <b>(1121-3168)</b>	<b>706.2</b> <b>(291-2644)</b>	<b>956.5</b> <b>(43.2-7237)</b>	<b>808.1</b> <b>(552-1992)</b>	<b>*</b> <b>(2208-3454)</b>	<b>354.3</b> <b>(1.6-1019)</b>

**Abréviations:**

- *Phthalate esters*: DMP - di-méthylphthalate, DEP - di-éthylphthalate, DPP – di-propylphthalate, DiBP - di-isobutylphthalate, DnBP - di-n-butylphthalate, BBP – butylbenzylphthalate, DEHP - di-2-éthylhexylphthalate, DiNP - di-isononylphthalate, DiDP - di-isodecylphthalate.
- \* - deux échantillons composites seulement – médiane pas calculée

NB: UK data from Santillo *et al.* (2003)

Tableau R2: Synthèse des concentrations d'alkylphénols (médianes, amplitudes et fréquences détectées) dans les échantillons de poussières de cinq pays, et données précédentes des poussières britanniques à titre comparatif

Composé	Allemagne	Espagne	France	Italie (Rome)	Slovaquie	UK
<b>Alkylphénols</b>	µg/g poussières (parties par million, ppm) [valeur médiane, (amplitude), fréquences détectées]					
4TMBP	<0.1 (<0.1) 0/5	<0.1 (<0.1) 0/22	<0.1 (<0.1) 0/31	<0.1 (<0.1) 0/5	* (<0.1) 0/2	<0.1 (<0.1-2.4) 4/29
4OP	<0.1 (<0.1) 0/5	<0.1 (<0.1) 0/22	<0.1 (<0.1) 0/31	<0.1 (<0.1) 0/5	* (<0.1) 0/2	<0.1 (<0.1-8.6) 1/29
4NP	<0.1 (<0.1) 0/5	<0.1 (<0.1-4.5) 5/22	<0.1 (<0.1-3.35) 1/31	<0.1 (<0.1-0.22) 1/5	* (1.27-2.53) 2/2	9.8 (<0.1-35.2) 22/29
<b>Total alkylphénols</b>	<b>&lt;0.1</b> <b>(&lt;0.1)</b>	<b>&lt;0.1</b> <b>(&lt;0.1-4.5)</b>	<b>&lt;0.1</b> <b>(&lt;0.1-3.35)</b>	<b>&lt;0.1</b> <b>(&lt;0.1-0.22)</b>	* <b>(1.27-2.53)</b>	<b>9.8</b> <b>(&lt;0.1-36.1)</b>

**Abréviations :**

- Composés d'Alkylphénols : 4TMBP - 4-(1,1,3,3-tert-methylbutyl)phenol, 4OP – 4-n-octylphenol, 4NP - 4-nonylphenol.
- \* - deux échantillons composites seulement – médiane pas calculée

NB: UK data from Santillo *et al.* (2003)

Tableau R3: Synthèse des concentrations de composés organoétains (médianes, amplitudes et fréquences détectées) dans les échantillons de poussières de cinq pays, et données précédentes des poussières britanniques à titre comparatif

Composé	Allemagne	Espagne	France	Italie (Rome)	Slovaquie	UK
<b>Composés Organoétains</b>	ng/g poussières (parties par milliard, ppb) [valeur médiane, (amplitude), fréquences détectées]					
MBT	(1400)	631 (449-978) 4/4	1300 (425-6950) 8/8	(917)	n/a	1350 (810-2800) 10/10
DBT	(255)	202.5 (67.7-342) 4/4	150 (49.8-1150) 8/8	(317)	n/a	519 (157-1300) 10/10
TBT	(13.4)	16.2 (5.3-32.3) 4/4	15 (3.1-521) 8/8	(11.6)	n/a	49.9 (21.6-759) 10/10
TeBT	(<1)	<1 (<1) 0/4	<1 (<1) 0/8	(<1)	n/a	<1 (<1) 0/10
MOT	(270)	554 (520-632) 4/4	367.5 (136-10700) 8/8	(481)	n/a	349 (82.5-1300) 10/10
DOT	(17.9)	61 (35.7-83.4) 4/4	14.5 (<1-2490) 7/8	(63.4)	n/a	62.7 (17.6-545) 10/10
TCHT	(<1)	<1 (<1) 0/4	<1 (<1) 0/8	(<1)	n/a	<1 (<1) 0/10
TPT	(<1)	<1 (<1) 0/4	<1 (<1) 0/8	(<1)	n/a	<1 (<1-68.9) 1/10
<b>Total organoétains</b>	<b>1956</b>	<b>1495</b> <b>(1125-1958)</b>	<b>2234</b> <b>(657-18155)</b>	<b>1790</b>	n/a	<b>2432</b> <b>(1581-5047)</b>

**Abréviations:**

- *Composés Organoétains:* MBT – monobutylétain, DBT – dibutylétain, TBT – tributylétain, TeBT – tetrabutylétain, MOT – monoocetylétain, DOT – dioctylétain, TCHT – tricyclohexylétain, TPT – triphenylétain.
- n/a – non analysé pour ces échantillons

NB: UK data from Santillo et al. (2003)

Tableau R4: Synthèse des concentrations de retardateurs de flamme bromés (médianes, amplitudes et fréquences détectées) dans les échantillons de poussières de cinq pays, et données précédentes des poussières britanniques à titre comparatif

Composé	Allemagne	Espagne	France	Italie (Rome)	Slovakia	UK
Retardateurs de flamme bromés	ng/g poussières (parties par milliard, ppb) [valeur médiane, (amplitude), fréquences détectées]					
BDE-28 (tri-)	(<0.3) 0/1	<0.3 (<0.1-0.7) 1/4	0.25 (0.1-4.8) 6/8	(<0.3) 0/1	n/a	0.35 (<0.1-33) 7/10
BDE-47 (tetra-)	(31) 1/1	13 (11-16) 4/4	24 (7.3-260) 8/8	(23) 1/1	n/a	24.8 (10-1980) 10/10
BDE-99 (penta-)	(37) 1/1	17.5 (14-21) 4/4	28.5 (15-720) 8/8	(36) 1/1	n/a	44 (18-2100) 10/10
BDE-153 (hexa-)	*	*	*	*	n/a	23 (<0.1-170) 9/10
BDE-190 (hepta)	(1.8) 1/1	4.1 (1.7-39) 4/4	8.0 (2.6-44) 8/8	(62) 1/1	n/a	9.5 (<0.1-87) 7/10
BDE-209 (deca-)	(2800)	425 (92-1700) 4/4	420 (69-3400) 8/8	(1600)	n/a	7100 (3800-19900) 10/10
HBCD	(1200) 1/1	225 (190-850) 4/4	485 (77-1600) 8/8	(250) 1/1	n/a	3250 (940-6900) 10/10
TBBP-A	*	*	*	*	n/a	<10 (<10-340) 4/10

**Abréviations:**

- *Retardateurs de Flamme Bromés*: BDE - diphenylethers bromés (tribromo- à decabromo-), HBCD – hexabromocyclododecane, TBBP-A – tetrabromobisphenol-A.
- n/a – non analysé pour ces échantillons
- \* - quantification impossible pour interference de co-elution

NB: UK data from Santillo *et al.* (2003)

Tableau R5: Synthèse des concentrations de paraffines chlorées à chaîne courte (médianes, amplitudes et fréquences détectées) dans les échantillons de poussières de cinq pays, et données précédentes des poussières britanniques à titre comparatif

Composé	Allemagne	Espagne	France	Italie (Rome)	Slovaquie	UK
<b>Paraffines chlorées à chaîne courte</b>	µg/g poussières (parties par million, ppm) [valeur médiane, (amplitude), fréquences détectées]					
SCCPs	(48)	25 (17-41) 4/4	45 (30-95) 8/8	(34)	(24-66) 2/2	3.7 (<0.12-13.0) 8/10

NB: UK data from Santillo *et al.* (2003)



## Conclusions

Les résultats de cette dernière étude, ainsi que ceux du précédent rapport sur les poussières britanniques, confirment la contamination importante des poussières domestiques par diverses substances chimiques dangereuses, dont des retardateurs de flammes bromés, des composés organoétains, des phtalates, des alkylphénols et des paraffines chlorées à chaîne courte. Cela apporte de nouvelles preuves au fait que notre exposition à ces substances chimiques dangereuses, et à d'autres, est continue et ubiquiste, jusque dans notre environnement domestique.

Bien que nous ne puissions pas utiliser les données des deux études pour identifier de quels produits en particulier ces substances chimiques proviennent, il ne fait aucun doute qu'elles se retrouvent dans les poussières à la suite de leur rejet à partir d'une grande diversité de mobiliers et autres biens domestiques présents dans les pièces où les échantillons ont été prélevés. Ces rejets peuvent se produire par volatilisation ou migration dans l'air, suivies d'une adsorption par des particules de poussière, ou bien correspondre plus directement au rattachement à des particules fines perdues par abrasion lors du processus normal d'usure des objets. Quels que soient les mécanismes à l'œuvre, toutefois, ces données suggèrent fortement et directement que l'utilisation actuelle de substances chimiques dangereuses dans les produits de consommation entraîne une contamination étendue et complexe de l'environnement domestique à travers toute l'Europe.

La composition de la contamination d'un logement donné, ou même des échantillons régionaux groupés, va dépendre en grande partie des types de produits présents dans les foyers où ont été effectués les prélèvements. Evidemment, ces résultats ne peuvent être tenus pour totalement représentatifs des niveaux de contamination des poussières dans les pays, villes ou régions étudiés. Néanmoins, ces données, dans leur ensemble, donnent un aperçu de la contamination chimique de l'environnement domestique dans un certain

nombre de pays d'Europe. Dans l'ensemble, ils confirment que nous sommes tous affectés par les conséquences chimiques de l'utilisation étendue d'additifs dangereux dans les biens de consommation.

De plus, bien que ces études n'apportent pas de données (et n'étaient pas conçues pour en apporter) à partir desquelles l'exposition des humains pourrait être estimée, les résultats indiquent clairement la possibilité d'une exposition continue à ces composés par inhalation, ingestion ou contact direct avec la peau (Butte et Heinzow, 2002). Bien entendu, nous ne pouvons jamais être certains qu'une telle exposition a des effets négatifs sur la santé, mais compte tenu des dangers des substances chimiques en question, il n'y a aucune raison de ne pas se méfier. Jusqu'à présent, la question des expositions chimiques dans le milieu domestique a, dans l'ensemble, été peu étudiée et mal évaluée.

Pour les substances que l'on sait s'accumuler dans l'organisme, comme le penta-BDE, le HBCD, les paraffines chlorées et certains composés organoétains, de telles expositions pourraient s'ajouter au fardeau chimique déjà important qui s'accumule dans nos organismes par le biais de notre alimentation. De plus, dans le cas de substances que l'on pense être moins bioaccumulables, comme le déca-BDE (BDE-209), leur présence dans les poussières à des concentrations de l'ordre des parties par million pourrait bien expliquer pourquoi ils sont néanmoins détectables comme contaminants de fond dans une partie importante de la population générale. Cela pourrait également expliquer pourquoi la distribution dans l'environnement des éthers de diphenyle bromés est finalement plus importante en général que ce à quoi on pourrait s'attendre en tenant uniquement compte de sa mobilité chimique.

Les effets qui pourraient résulter de ces expositions continues ne sont pas connus, mais la présence de déca-BDE dans les poussières, par exemple, pourrait signifier que chacun, et non uniquement les personnes travaillant dans

la production et/ou le recyclage de composants électroniques, va porter dans son organisme une certaine concentration de ces substances chimiques fortement persistantes. De plus, quelles que soient les possibilités d'exposition à ces substances dangereuses par contact avec les poussières de son logement, l'élimination finale des poussières ramassées par les aspirateurs et autres ustensiles pourrait représenter une importante source de rejet de ces substances dangereuses et d'autres dans les dépôts d'ordures et, finalement, dans l'environnement qui les entoure.

Il est crucial que l'utilisation des produits de consommation ne comporte pas de risques, ce qui doit inclure la protection contre les substances chimiques dangereuses. Les exigences de sécurité contre les incendies, souvent satisfaites par l'utilisation de dangereux retardateurs de flammes bromés ou chlorés, ou de paraffines chlorées, peuvent dorénavant et déjà être satisfaites grâce à des alternatives moins dangereuses (voir par exemple Lassen et al., 1999), notamment par l'utilisation de matières ou de conceptions différentes qui rendent les produits intrinsèquement moins inflammables. De plus, beaucoup des dangers chimiques domestiques identifiés dans cette étude pourraient être tout bonnement évités grâce à l'utilisation de substances moins dangereuses et plus durables à la place des plastiques en PVC, une source de phtalates, d'organoétains et d'autres additifs dangereux. Il existe déjà des alternatives à tous les produits en PVC utilisés à la maison.

Une étude très récente publiée par Greenpeace Environmental Trust (Greenpeace 2003) recense toute une série de cas où le remplacement de matières et substances chimiques dangereuses par des alternatives plus sûres a déjà été mis en pratique.

Les substances chimiques des cinq groupes choisis pour les analyses quantitatives de la présente étude ont déjà été identifiées comme des substances chimiques nécessitant une action prioritaire par les gouvernements du

Royaume-Uni et d'autres pays européens dans le cadre de la Convention OSPAR de 1992. En 1998, cette Convention, qui vise la protection du milieu marin de l'Atlantique Nord-Est, a décidé de mettre un terme aux rejets de substances dangereuses dans l'environnement en l'espace d'une génération (d'ici 2020). OSPAR a inclus les retardateurs de flammes bromés, les alkylphénols, les paraffines chlorées à chaîne courte, les composés organoétains et certains phtalates (DEHP et DBP) dans sa première liste des produits chimiques devant faire l'objet de mesures prioritaires pour parvenir à cet objectif de cessation des rejets (OSPAR 1998). Cette étude indique clairement que, tant que des mesures n'auront pas été prises pour remplacer les substances chimiques présentes dans les biens de consommation par d'autres moins dangereuses, leur rejet dans l'environnement domestique et la possibilité qu'ensuite ces poussières contaminent le reste de l'environnement resteront des problèmes.

Aujourd'hui, alors que la législation REACH sur le contrôle des utilisations de substances chimiques est sur le point d'être finalisée par la Commission européenne, nous ne pouvons que souhaiter que ce nouveau système apporte le haut niveau de protection de l'environnement et de la santé auquel nous avons tous droit. Pour que cette nouvelle législation soit efficace, toutefois, il serait crucial que les gouvernements européens prennent des mesures pour empêcher l'utilisation de substances chimiques dangereuses dans les biens de consommation en assurant leur remplacement par des alternatives moins dangereuses ou même, de préférence, sans aucun danger. Les résultats de la présente étude apportent de nouvelles preuves que c'est là la seule façon dont la sûreté chimique de notre environnement domestique pourra être assurée de façon définitive.



## Références

- Adgate, J.L., Rhoads, G.G. & Liroy, P.J. (1998) The use of isotope ratios to apportion sources of lead in Jersey City, NJ, house dust wipe samples. *The Science of the Total Environment* 221: 171-180
- Bergman, Å., Ostman, C., Nyborn, R., Sjodin, A., Carlsson, H., Nilsson, U. & Wachtmeister, C.A. (1997) Flame retardants and plasticisers on particulates in the modern computerized indoor environment. *Organohalogen Compounds* 33: 414-419
- Butte, W. & Heinzow, B. (2002) Pollutants in house dust as indicators of indoor contamination. *Reviews in Environmental Contamination and Toxicology* 175: 1-46
- Curl, C.L., Fenske, R.A., Kissel, J.C., Shirai, J.H., Moate, T.F., Griffith, W., Coronado, G. & Thompson, B. (2002) Evaluation of take-home organophosphorus pesticide exposure among agricultural workers and their children. *Environmental Health Perspectives* 110(12): A787-A792
- EC (2001) Commission White Paper: Strategy for a future Chemicals Policy (COM(2001) 88 final), Commission of the European Communities, Brussels, 27.2.2001: 32 pp.
- Edwards, R.D., Yurkow, E.J. & Liroy, P.J. (1998) Seasonal deposition of housedusts onto household surfaces. *The Science of the Total Environment* 224: 69-80
- Greenpeace (2003) Safer Chemicals within REACH: using the substitution principle to drive green chemistry. Report prepared by Clean Production Action for the Greenpeace Environmental Trust, October 2003: 48pp.
- Gurunathan, S., Robson, M., Freeman, N., Buckley, B., Roy, A., Meyer, R., Bukowski, J. & Liroy, P.J. (1998) Accumulation of chlorpyrifos on residential surfaces and toys accessible to children. *Environmental Health Perspectives* 106 (1): 9-16
- Ingerowski, G., Friedle, A. & Thumulla, J. (2001) Chlorinated ethyl and isopropyl phosphoric acid trimesters in the indoor environment – an inter-laboratory exposure study. *Indoor Air – International Journal of Indoor Air Quality and Climate* 11(3): 145-149
- Irvine, K.N. & Loganathan, G.G. (1998) Localized enrichment of PCB levels in street dust due to redistribution by wind. *Water Air and Soil Pollution* 105(3-4): 605-615
- Lagesson, H.V., Nilsson, A. & Tagesson, C. (2000) Qualitative determination of compounds adsorbed on indoor dust particles using GC-UV and GC-MS after thermal desorption. *Chromatographia* 52(9-10): 621-630
- Leonards, P.E.G., Santillo, D., Brigden, K., van der Ween, I., Hesseligen, J.v., de Boer, J. & Johnston, P. (2001) Brominated flame retardants in office dust samples. In: Asplund, L.; Bergman, Å.; de Wit, C., *et al.* eds. *Proceedings of the Second International Workshop on Brominated Flame Retardants, BFR 2001*, Stockholm, May 14-16 2001: 299-302
- Lewis, R.G., Fortmann, R.C. & Camann, D.E. (1994) Evaluation of methods for monitoring the potential exposure of small children to pesticides in the residential environment. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology* 26: 37-46
- Meyer, I., Heinrich, J. & Lippold, U. (1999) Factors affecting lead and cadmium levels in house dust in industrial areas of eastern Germany. *The Science of the Total Environment* 234: 25-36
- OSPAR (1998) OSPAR Strategy with Regard to Hazardous Substances, OSPAR Convention for the Protection of the Marine Environment of the North-East Atlantic, OSPAR 98/14/1 Annex 34
- Peters, R.J.B. (2003) Hazardous Chemicals in Consumer Products, TNO (Netherlands Organisation for Applied Scientific Research) Report Number 52003227,

- prepared for Greenpeace, September 2003: 28pp.
- Rudel, R.A., Brody, J.G., Spengler, J.C., Vallarino, J., Geno, P.W., Sun, G. & Yau, A. (2001) Identification of selected hormonally active agents and animal mammary carcinogens in commercial and residential air and dust samples. *Journal of the Air & Waste Management Association* 51(4): 499-513
- Santillo, D., Johnston, P. & Brigden, K. (2001) The presence of brominated flame retardants and organotin compounds in dusts collected from Parliament buildings from eight countries. *Greenpeace Research Laboratories Technical Note* 03/2001, March 2001: 24 pp.
- Santillo, D., Labunska, I., Davidson, H., Johnston, P., Strutt, M. & Knowles, O. (2003) Consuming chemicals: hazardous chemicals in housedust as an indicator of chemical exposure in the home. *Greenpeace Research Laboratories Technical Note* 02/2003, May 2003: 71 pp.
- Sjödín, A., Carlsson, H., Thuresson, K., Sjölin, S., Bergman, Å. & Ostman, C. (2001) Flame retardants in indoor air at an electronics recycling plant and at other work environments. *Environmental Science and Technology* 35(3): 448-454
- Tong, S.T.Y. & Lam, K.C. (2000) Home sweet home? A case study of household dust contamination in Hong Kong. *The Science of the Total Environment* 256: 115-123
- Vojta, P.J., Friedman, W., Marker, D.A., Clickner, R., Rogers, J.W., Viet, S.M., Muilenberg, M.L., Thorne, P.S., Arbes, S.J. & Zeldin, D.C. (2002) First national survey of lead and allergens in housing: Survey design and methods for the allergen and endotoxin components. *Environmental Health Perspectives* 110 (5): 527-532
- Wilson, N.K., Chuang, J.C. & Lyu, C. (2001) Levels of persistent organic pollutants in several child day care centers. *Journal of Exposure Analysis and Environmental Epidemiology* 11(6): 449-458
- Yin, L.M., Rhoads, G.G. & Liroy, P.J. (2000) Seasonal influences on childhood lead exposure. *Environmental Health Perspectives* 108 (2): 177-182

## Annexe 1 : Résultats détaillés pour les composés cibles et les autres composés dans les échantillons individuels et composites

### Abréviations:

- *Retardateurs de Flamme Bromés*: BDE - diphenylethers bromés (tribromo- à decabromo-), HBCD – hexabromocyclododecane, TBBP-A – tetrabromobisphenol-A.
- *Phthalate esters*: DMP - di-methylphthalate, DEP - di-ethylphthalate, DPP – di-propylphthalate, DiBP - di-isobutylphthalate, DnBP - di-n-butylphthalate, BBP – butylbenzylphthalate, DEHP - di-2-ethylhexylphthalate, DiNP - di-isononylphthalate, DiDP - di-isodecylphthalate.
- *Composés d'Alkylphénols* : 4TMBP - 4-(1,1,3,3-tert-methylbutyl)phenol, 4OP – 4-n-octylphenol, 4NP - 4-nonylphenol.
- *Composés Organoétains*: MBT – monobutylétain, DBT – dibutylétain, TBT – tributylétain, TeBT – tetrabutylétain, MOT – mono-octylétain, DOT – dioctylétain, TCHT – tricyclohexylétain, TPT – triphenylétain.

**NB:** \* - indique que des interférences de co-elution ont empêché la quantification du BDE-153 and TBBP-A

## PHTHALATE ESTERS – INDIVIDUAL SAMPLE ANALYSES

COUNTRY : GERMANY

Sample code	Location	Concentration of phthalate esters (ug/g dust, parts per million, ppm)								
		DMP	DEP	DiBP	DnBP	BBP	DEHP	DiNP	DiDP	Total
<b>HD03001</b>	<b>Hamburg</b>	2.34	13.4	358.1	44.1	4.4	546.8	249.7	67.7	<b>1286.6</b>
<b>HD03002</b>	<b>Regensburg</b>	1.42	12.9	27.9	1510.9	218.4	1306.5	89.7	<0.1	<b>3167.7</b>
<b>HD03003</b>	<b>Leipzig</b>	2.83	1.86	30.8	308.8	82.2	695.7	115.5	<0.1	<b>1237.6</b>
<b>HD03004</b>	<b>Berlin</b>	<0.1	7.48	82.6	22.3	13.4	995.7	<0.1	<0.1	<b>1121.4</b>
<b>HD03005</b>		<0.1	367.7	36.5	33.4	110.8	1586.1	112.7	<0.1	<b>2247.2</b>
Germany mean (average) value		1.32	80.7	107.1	383.9	85.8	1026.2	113.5	13.5	<b>1812.1</b>
Germany median (middle) value		1.42	12.9	36.5	44.1	82.2	995.7	112.7	<0.1	<b>1286.6</b>
Germany minimum (lowest) value		<0.1	1.86	27.9	22.3	4.4	546.8	<0.1	<0.1	<b>1121.4</b>
Germany maximum (highest) value		2.83	367.7	358.1	1510.9	218.4	1586.1	249.7	67.7	<b>3167.7</b>

**PHTHALATE ESTERS – INDIVIDUAL SAMPLE ANALYSES**

COUNTRY: SPAIN

Sample code	Location	Concentration of phthalate esters (ug/g dust, parts per million, ppm)								
		DMP	DEP	DiBP	DnBP	BBP	DEHP	DiNP	DiDP	Total
<b>Madrid</b>										
<b>HD03006</b>		<0.1	7.88	336.7	78.8	8.3	370.1	<0.1	<0.1	<b>801.8</b>
<b>HD03007</b>		<0.1	13.2	201.0	144.8	11.1	583.8	289.3	<0.1	<b>1243.3</b>
<b>HD03008</b>		<0.1	5.13	409.1	149.1	4.5	286.4	<0.1	<0.1	<b>854.3</b>
<b>HD03009</b>		<0.1	3.41	197.9	201.6	3.5	293.2	<0.1	51.0	<b>750.6</b>
<b>HD03010</b>		0.70	40.6	179.5	80.8	5.3	785.9	58.0	<0.1	<b>1150.7</b>
Madrid mean (average) value		0.14	14.0	264.8	131.0	6.55	463.9	69.5	10.2	<b>960.1</b>
Madrid median (middle) value		<0.1	7.88	201.0	144.8	5.31	370.1	<0.1	<0.1	<b>854.3</b>
<b>Granada</b>										
<b>HD03011</b>		<0.1	4.92	257.1	81.7	4.1	267.4	<0.1	<0.1	<b>615.2</b>
<b>HD03012</b>		<0.1	1.09	174.4	72.3	<0.1	159.7	<0.1	<0.1	<b>407.4</b>
<b>HD03013</b>		<0.1	2.95	137.8	76.6	2.0	211.6	<0.1	<0.1	<b>431.0</b>
<b>HD03014</b>		<0.1	1.87	173.9	64.0	1.9	112.6	<0.1	<0.1	<b>354.2</b>
<b>HD03015</b>		<0.1	13.0	121.7	52.8	0.8	137.0	<0.1	<0.1	<b>325.2</b>
<b>HD03016</b>		<0.1	5.30	200.3	99.3	153.4	1917	112.8	72.2	<b>2560</b>
Granada mean (average) value		<0.1	4.85	177.5	74.4	32.4	467.6	18.8	12.0	<b>782.3</b>
Granada median (middle) value		<0.1	3.94	174.1	74.4	2.00	185.6	<0.1	<0.1	<b>419.2</b>

**PHTHALATE ESTERS – INDIVIDUAL SAMPLE ANALYSES**

COUNTRY: SPAIN (CONTINUED)

Sample code	Location	Concentration of phthalate esters (ug/g dust, parts per million, ppm)								
		DMP	DEP	DiBP	DnBP	BBP	DEHP	DiNP	DiDP	Total
<b>Valencia</b>										
HD03017		<0.1	1.54	142.4	62.2	1.8	1064	<0.1	<0.1	<b>1273</b>
HD03018		<0.1	5.37	127.9	70.2	9.1	315.0	<0.1	<0.1	<b>527.6</b>
HD03019		<0.1	2.58	189.7	90.6	2.4	272.4	<0.1	6.03	<b>563.8</b>
HD03020		<0.1	4.40	131.8	64.6	10.9	189.8	<0.1	<0.1	<b>401.4</b>
HD03021		<0.1	64.6	76.7	53.9	7.3	319.4	83.7	<0.1	<b>605.7</b>
HD03022		<0.1	34.9	113.0	60.6	6.6	507.0	<0.1	<0.1	<b>722.1</b>
Valencia mean (average) value		<0.1	18.9	130.3	67.0	6.36	444.7	14.0	1.01	<b>682.2</b>
Valencia median (middle) value		<0.1	4.89	129.8	63.4	6.94	317.2	<0.1	<0.1	<b>584.7</b>
<b>Asturias/Leon</b>										
HD03023		<0.1	9.52	140.7	80.1	2.9	358.3	<0.1	98.8	<b>690.3</b>
HD03024		<0.1	6.57	82.2	135.5	9.7	2151	231.3	27.2	<b>2644</b>
HD03025		0.92	5.82	155.4	131.7	4.2	818.2	<0.1	39.3	<b>1156</b>
HD03026		<0.1	3.67	66.1	48.6	4.1	169.0	<0.1	<0.1	<b>291.4</b>
HD03027		<0.1	16.2	107.1	96.0	5.4	407.0	717.0	<0.1	<b>1349</b>
Asturias mean (average) value		0.18	8.35	110.3	98.4	5.27	780.7	189.7	33.1	<b>1226</b>
Asturias median (middle) value		<0.1	6.57	107.1	96.0	4.20	407.0	<0.1	27.2	<b>1156</b>

## PHTHALATE ESTERS – INDIVIDUAL SAMPLE ANALYSES

COUNTRY: FRANCE

Sample code	Location	Concentration of phthalate esters (ug/g dust, parts per million, ppm)								
		DMP	DEP	DiBP	DnBP	BBP	DEHP	DiNP	DiDP	Total
<b>Lille</b>										
<b>HD03043</b>		<0.1	2.23	126.7	64.2	16.4	298.2	<0.1	<0.1	<b>507.8</b>
<b>HD03045</b>		<0.1	9.53	64.8	66.1	11.2	456.2	18.0	<0.1	<b>626.0</b>
<b>HD03047</b>		<0.1	<0.1	65.8	51.3	5.50	372.5	213.2	62.2	<b>770.5</b>
<b>HD03049</b>		<0.1	13.0	125.2	55.3	734.3	2639	186.6	104.7	<b>3858</b>
<b>HD03050</b>		<0.1	3.81	201.5	102.7	10.4	266.8	<0.1	<0.1	<b>585.2</b>
Lille mean (average) value		<0.1	5.71	116.8	67.9	155.6	806.6	83.6	33.4	<b>1270</b>
Lille median (middle) value		<0.1	3.81	125.2	64.2	11.2	372.5	18.0	<0.1	<b>626.0</b>
<b>Toulouse</b>										
<b>HD03052</b>		<0.1	10.0	67.8	27.9	9.33	941.4	301.8	115.3	<b>1474</b>
<b>HD03053</b>		<0.1	12.6	106.1	18.4	4.27	246.0	<0.1	<0.1	<b>387.5</b>
<b>HD03054</b>		<0.1	2.73	118.8	120.6	48.6	427.5	155.6	85.0	<b>958.8</b>
<b>HD03055</b>		<0.1	2.69	139.6	72.6	315.9	2172	<0.1	<0.1	<b>2702</b>
<b>HD03061</b>		<0.1	32.9	112.2	99.7	48.4	1065.1	183.9	<0.1	<b>1542</b>
Toulouse mean (average) value		<0.1	12.2	108.9	67.8	85.3	970.3	128.3	40.1	<b>1413</b>
Toulouse median (middle) value		<0.1	10.0	112.2	72.6	48.4	941.4	155.6	<0.1	<b>1474</b>

Consommation toxique

**PHTHALATE ESTERS – INDIVIDUAL SAMPLE ANALYSES**

COUNTRY: FRANCE (CONTINUED)

Sample code	Location	Concentration of phthalate esters (ug/g dust, parts per million, ppm)								
		DMP	DEP	DiBP	DnBP	BBP	DEHP	DiNP	DiDP	Total
<b>Lyon</b>										
HD03070		<0.1	6.87	136.5	35.1	28.2	1444	160.7	<0.1	<b>1812</b>
HD03071		<0.1	5.57	75.1	15.1	17.9	275.7	<0.1	<0.1	<b>389.4</b>
HD03075		<0.1	4.67	159.0	168.0	332.7	753.2	140.3	170.2	<b>1728</b>
HD03076		<0.1	15.2	40.6	29.7	6.65	155.4	<0.1	75.4	<b>322.9</b>
HD03077		<0.1	3.43	154.4	18.0	3.26	118.3	<0.1	<0.1	<b>297.4</b>
Lyon mean (average) value										
		<0.1	7.14	113.1	53.2	77.7	549.5	60.2	49.1	<b>910.0</b>
Lyon median (middle) value										
		<0.1	5.57	136.5	29.7	17.9	275.7	<0.1	<0.1	<b>389.4</b>
<b>Nantes</b>										
HD03081		<0.1	<0.1	16.7	11.6	<0.1	14.9	<0.1	<0.1	<b>43.2</b>
HD03082		<0.1	5.28	134.7	58.6	1006	2507	221.9	<0.1	<b>3933</b>
HD03084		<0.1	2.91	49.0	127.4	28.2	596.9	105.3	<0.1	<b>909.8</b>
HD03087		<0.1	7.10	165.4	37.9	18.1	504.6	136.9	<0.1	<b>870.0</b>
HD03088		<0.1	4.18	487.6	33.9	10.6	989.9	<0.1	<0.1	<b>1526</b>
Nantes mean (average) value										
		<0.1	3.90	170.7	53.9	212.6	923.0	92.8	<0.1	<b>1456</b>
Nantes median (middle) value										
		<0.1	4.18	134.7	37.9	18.1	596.9	105.3	<0.1	<b>909.7</b>



**PHTHALATE ESTERS – INDIVIDUAL SAMPLE ANALYSES**

COUNTRY: FRANCE (CONTINUED)

Sample code	Location	Concentration of phthalate esters (ug/g dust, parts per million, ppm)								
		DMP	DEP	DiBP	DnBP	BBP	DEHP	DiNP	DiDP	Total
<b>Paris</b>										
HD03091		<0.1	12.4	94.6	33.2	481.5	2750	<0.1	<0.1	<b>3371</b>
HD03093		<0.1	8.72	73.8	65.8	11.9	322.5	298.4	122.3	<b>903.4</b>
HD03095		<0.1	6.93	133.9	624.2	419.0	1792.7	197.3	<0.1	<b>3174</b>
HD03097		<0.1	6.91	86.1	104.7	23.8	332.0	115.3	118.7	<b>787.5</b>
HD03098		<0.1	14.4	68.7	43.9	200.1	356.2	<0.1	<0.1	<b>683.3</b>
Paris mean (average) value		<0.1	9.88	91.4	174.4	227.3	1111	122.2	48.2	<b>1784</b>
Paris median (middle) value		<0.1	8.72	86.1	65.8	200.1	356.2	115.3	<0.1	<b>903.4</b>

Sample code	Location	Concentration of phthalate esters (ug/g dust, parts per million, ppm)								
		DMP	DEP	DiBP	DnBP	BBP	DEHP	DiNP	DiDP	Total
<b>Individual samples</b>										
HD03062	SP01	<0.1	5.30	151.7	119.2	3551	3289	<0.1	118.8	<b>7235</b>
HD03063	SP02	<0.1	4.89	220.5	168.9	45.8	159.1	<0.1	<0.1	<b>599.2</b>
HD03064	SP03	<0.1	49.4	88.8	44.4	161.2	1062	326.4	166.7	<b>1899</b>
HD03065	SP04	<0.1	19.7	250.3	27.4	370.7	343.1	466.2	83.4	<b>1561</b>
HD03058	SP05	<0.1	10.1	48.1	43.2	7.77	713.5	133.8	<0.1	<b>956.5</b>
HD03066	SP06	<0.1	3.47	127.3	144.7	28.3	2650	154.4	<0.1	<b>3109</b>

## PHTHALATE ESTERS – INDIVIDUAL SAMPLE ANALYSES

COUNTRY: ITALY (ROMA)

Sample code	Location	Concentration of phthalate esters (ug/g dust, parts per million, ppm)								
		DMP	DEP	DiBP	DnBP	BBP	DEHP	DiNP	DiDP	Total
<b>Italy (Roma)</b>										
<b>HD03036</b>		<0.1	6.78	138.3	45.2	308.4	933.4	180.0	380.0	<b>1992</b>
<b>HD03037</b>		1.50	11.4	370.7	42.8	14.9	366.8	<0.1	<0.1	<b>808.1</b>
<b>HD03038</b>		<0.1	1.92	180.1	46.8	9.0	314.2	<0.1	<0.1	<b>552.0</b>
<b>HD03039</b>		<0.1	23.6	158.2	25.3	89.2	467.0	531.7	<0.1	<b>1295</b>
<b>HD03040</b>		<0.1	4.31	257.6	22.8	23.6	434.3	<0.1	<0.1	<b>742.6</b>
Italy mean (average) value		0.30	9.60	221.0	36.6	89.0	503.1	142.3	76.0	<b>1078</b>
Italy median (middle) value		<0.1	6.78	180.1	42.8	23.6	434.3	<0.1	<0.1	<b>808.1</b>
Italy minimum (lowest) value		<0.1	1.92	158.2	22.8	9.0	314.2	<0.1	<0.1	<b>552.0</b>
Italy maximum (highest) value		1.50	23.6	370.7	46.8	308.4	933.4	531.7	380.0	<b>1992</b>

COUNTRY: SLOVAKIA

Sample code	Location	Concentration of phthalate esters (ug/g dust, parts per million, ppm)								
		DMP	DEP	DiBP	DnBP	BBP	DEHP	DiNP	DiDP	Total
<b>Slovakia</b>										
<b>Slovakia I</b>	<b>South West</b>	<0.1	1.22	149.0	1028.6	5.4	2123.8	145.8	<0.1	<b>3454</b>
<b>Slovakia II</b>	<b>North East</b>	<0.1	4.84	137.0	599.8	3.8	1289.6	172.5	<0.1	<b>2208</b>

Consommation toxique

## ALKYLPHENOLS – INDIVIDUAL SAMPLE ANALYSES

COUNTRY: GERMANY

Sample code	Location	Concentration of alkylphenols (ug/g dust, parts per million, ppm)			
		4TMBP	4OP	4NP	<b>Total</b>
HD03001	Hamburg	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03002	Regensberg	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03003	Leipzig	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03004	Berlin	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03005		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1

COUNTRY: SPAIN

Sample code	Location	Concentration of alkylphenols (ug/g dust, parts per million, ppm)			
		4TMBP	4OP	4NP	<b>Total</b>
Madrid					
HD03006		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03007		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03008		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03009		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03010		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1

Consommation toxique

## ALKYLPHENOLS – INDIVIDUAL SAMPLE ANALYSES

COUNTRY: SPAIN (CONTINUED)

Sample code	Location	Concentration of alkylphenols (ug/g dust, parts per million, ppm)			
		4TMBP	4OP	4NP	Total
<b>Granada</b>					
HD03011		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03012		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03013		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03014		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03015		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03016		<0.1	4.49	<0.1	4.49
<b>Valencia</b>					
HD03017		<0.1	0.75	<0.1	0.75
HD03018		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03019		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03020		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03021		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03022		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
<b>Asturias/Leon</b>					
HD03023		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03024		<0.1	0.68	<0.1	0.68
HD03025		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03026		<0.1	0.67	<0.1	0.67
HD03027		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1

Consommation toxique

## ALKYLPHENOLS – INDIVIDUAL SAMPLE ANALYSES

COUNTRY: FRANCE

Sample code	Location	Concentration of alkylphenols (ug/g dust, parts per million, ppm)			
		4TMBP	4OP	4NP	Total
	<b>Lille</b>				
HD03043		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03045		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03047		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03049		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03050		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
	<b>Toulouse</b>				
HD03052		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03053		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03054		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03055		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03061		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
	<b>Lyon</b>				
HD03070		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03071		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03075		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03076		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03077		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1

Consommation toxique

## ALKYLPHENOLS – INDIVIDUAL SAMPLE ANALYSES

COUNTRY: FRANCE (CONTINUED)

Sample code	Location	Concentration of alkylphenols (ug/g dust, parts per million, ppm)			
		4TMBP	4OP	4NP	Total
<b>Nantes</b>					
HD03081		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03082		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03084		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03087		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03088		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
<b>Paris</b>					
HD03091		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03093		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03095		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03097		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03098		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
<b>Individual samples</b>					
HD03062	SP01	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03063	SP02	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03064	SP03	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03065	SP04	<0.1	<0.1	3.35	3.35
HD03058	SP05	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD03066	SP06	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1

Consommation toxique

## ALKYLPHENOLS – INDIVIDUAL SAMPLE ANALYSES

COUNTRY: ITALY (ROMA)

Sample code	Location	Concentration of alkylphenols (ug/g dust, parts per million, ppm)			
		4TMBP	4OP	4NP	<b>Total</b>
<b>Italy (Roma)</b>					
HD30036		<0.1	<0.1	0.22	0.22
HD30037		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD30038		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD30039		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
HD30040		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1

COUNTRY: SLOVAKIA

Sample code	Location	Concentration of alkylphenols (ug/g dust, parts per million, ppm)			
		4TMBP	4OP	4NP	<b>Total</b>
<b>Slovakia</b>					
Slovakia I	South West	<0.1	<0.1	2.53	2.53
Slovakia II	North East	<0.1	<0.1	1.27	1.27

**ORGANOTINS – POOLED AND INDIVIDUAL SAMPLE ANALYSES**

Country/region	Concentration of organotin compounds (ng/g dust, parts per billion, ppb)								
	MBT	DBT	TBT	TeBT	MOT	DOT	TCHT	TPT	Total organotins
<b>Germany</b>									
Single composite	1400	255	13.4	<1	270	17.9	<1	<1	<b>1956</b>
<b>Spain</b>									
Madrid	563	273	7	<1	530	81.8	<1	<1	<b>1455</b>
Granada	449	67.7	5.31	<1	520	83.4	<1	<1	<b>1125</b>
Valencia	978	342	25.4	<1	577	35.7	<1	<1	<b>1958</b>
Asturias/Leon	699	132	32.3	<1	632	40.2	<1	<1	<b>1536</b>
<i>Mean (average) value</i>	<i>672</i>	<i>204</i>	<i>17.5</i>	<i>&lt;1</i>	<i>565</i>	<i>60.3</i>	<i>&lt;1</i>	<i>&lt;1</i>	<i>1518</i>
<i>Median (middle) value</i>	<i>631</i>	<i>202.5</i>	<i>16.2</i>	<i>&lt;1</i>	<i>553.5</i>	<i>61</i>	<i>&lt;1</i>	<i>&lt;1</i>	<i>1495</i>
<b>France</b>									
Lille	1290	149	49.8	<1	2550	1360	<1	<1	<b>5399</b>
Toulouse	6950	992	521	<1	322	21	<1	<1	<b>8806</b>
Lyon	1040	135	15.6	<1	141	<1	<1	<1	<b>1332</b>
Nantes	3800	1150	15.1	<1	10700	2490	<1	<1	<b>18155</b>
Paris	1910	292	11.6	<1	413	14.7	<1	<1	<b>2641</b>
HD03058 (SP05)	425	72.7	14.9	<1	136	7.9	<1	<1	<b>657</b>
HD03062 (SP01)	610	151	12.8	<1	140	14.2	<1	<1	<b>928</b>
HD03064 (SP03)	1310	49.8	3.1	<1	452	12.1	<1	<1	<b>1827</b>
<i>Mean (average) value</i>	<i>2167</i>	<i>373.9</i>	<i>80.5</i>	<i>&lt;1</i>	<i>1857</i>	<i>490</i>	<i>&lt;1</i>	<i>&lt;1</i>	<i>4968</i>
<i>Median (middle) value</i>	<i>1300</i>	<i>150</i>	<i>15</i>	<i>&lt;1</i>	<i>367.5</i>	<i>14.5</i>	<i>&lt;1</i>	<i>&lt;1</i>	<i>2234</i>
<b>Italy (Roma)</b>									
Single composite	917	317	11.6	<1	481	63.4	<1	<1	<b>1790</b>



**BROMINATED FLAME RETARDANTS – POOLED AND INDIVIDUAL SAMPLE ANALYSES**

Country/region	Concentration of individual brominated diphenyl ether congeners (ng/g dust, parts per billion, ppb)																
	Tri-	Tetra-						Penta-				Hexa-			Hepta-		Deca-
	28	47	49	66	71	75	77	85	99	100	119	138	153*	154	183	190	209
<b>Germany</b>																	
Single composite	<0.3	31	<0.1	<0.3	15	<0.3	<0.3	2.4	37	8.0	<0.3	<0.5	*	4.5	1.8	<2.3	2800
<b>Spain</b>																	
Madrid	0.7	13	0.4	0.9	12	<0.3	<0.3	<0.4	14	2.4	<0.3	<0.4	*	3.0	39	<2.1	430
Granada	<0.1	16	0.4	0.6	3.5	<0.3	<0.3	1.1	21	4.1	<0.3	<0.5	*	1.8	3.3	<2.3	420
Valencia	<0.3	13	<0.1	<0.3	4.8	<0.3	<0.3	1.1	16	3.3	<0.3	<0.4	*	1.5	4.8	<2.0	1700
Asturias/Leon	<0.3	11	0.1	<0.3	2.2	<0.3	<0.3	1.1	19	4.2	0.9	<0.4	*	1.8	1.7	<2.2	92
<i>Mean (average) value</i>	<0.3	13.3	0.23	0.38	5.63	<0.3	<0.3	0.83	17.5	3.5	<0.3	<0.4	*	1.7	12.2	<2.2	660
<i>Median (middle) value</i>	<0.3	13	0.25	0.3	4.15	<0.3	<0.3	1.1	17.5	3.7	<0.3	<0.4	*	.8	4.1	<2.2	425
<b>France</b>																	
Lille	0.3	41	<0.1	0.4	42	<0.3	<0.3	2.4	48	10	<0.3	<0.4	*	3.4	3.5	<2.1	500
Toulouse	0.3	73	0.3	0.5	16	<0.3	<0.3	4.3	78	17	0.7	<0.4	*	1.0	9.2	<2.2	1800
Lyon	<0.3	11	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	20	4.5	<0.3	<0.3	*	2.6	2.6	<0.3	3400
Nantes	0.1	32	0.3	<0.3	7.4	<0.3	<0.3	2.0	37	7.9	<0.3	<0.5	*	4.3	9.8	<2.4	300
Paris	0.2	13	0.2	<0.3	2.4	<0.3	<0.3	0.9	16	3.7	<0.3	<0.4	*	2.1	6.8	<2.1	340
HD03058 (SP05)	4.8	260	3.7	7.3	<0.4	<0.3	<0.3	43	720	92	<0.3	11	*	64	4.1	<2.2	69
HD03062 (SP01)	<0.3	7.3	<0.1	<0.3	12	<0.3	<0.3	<0.4	7.5	1.4	<0.3	<0.5	*	1.1	44	<2.3	140
HD03064 (SP03)	1.9	16	2.3	1.2	<0.5	<0.3	<0.3	<0.4	15	2.6	<0.3	<0.5	*	2.8	29	<2.4	800
<i>Mean (average) value</i>	0.95	56.7	0.85	1.18	9.98	<0.3	<0.3	7.23	117.7	17.4	<0.3	1.38	*	11.5	13.6	<2.2	919
<i>Median (middle) value</i>	0.25	24	0.25	<0.3	4.9	<0.3	<0.3	0.9	28.5	6.2	<0.3	<0.4	*	2.8	8.0	<2.2	420
<b>Italy (Roma)</b>																	
Single composite	<0.3	23	<0.1	<0.3	29	<0.3	<0.3	1.9	36	6.5	<0.3	2.3	*	6.5	62	<2.5	1600

**BROMINATED FLAME RETARDANTS – POOLED AND INDIVIDUAL SAMPLE ANALYSES (CONTINUED)**

Country/region	Concentration of additional brominated flame retardants (ng/g, ppb)							
	Brominated biphenyls (PBBs)					HBCD	TBBP-A	methyl-TBBP-A
	BB-15	BB-49	BB-52	BB-101	BB-209			
<b>Germany</b>								
Single composite	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<3	1200	*	<0.1
<b>Spain</b>								
Madrid	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<3	850	*	<0.1
Granada	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<3	190	*	<0.1
Valencia	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<3	250	*	<0.1
Asturias/Leon	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<3	200	*	<0.1
<i>Mean (average) value</i>	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<3	373	*	<0.1
<i>Median (middle) value</i>	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<3	225	*	<0.1
<b>France</b>								
Lille	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<3	1600	*	<0.1
Toulouse	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<3	830	*	<0.1
Lyon	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<3	470	*	<0.3
Nantes	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<3	660	*	<0.2
Paris	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<3	240	*	<0.1
HD03058 (SP05)	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<3	77	*	<0.1
HD03062 (SP01)	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<3	500	*	<0.1
HD03064 (SP03)	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<3	160	*	<0.2
<i>Mean (average) value</i>	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<3	567	*	<0.1
<i>Median (middle) value</i>	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<3	485	*	<0.1
<b>Italy (Roma)</b>								
Single composite	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<3	250	*	<0.2

\* - co-elution interference prevented quantitation of BDE-153 and TBBP-A

**SHORT-CHAIN CHLORINATED PARAFFINS (SCCPS) - POOLED AND INDIVIDUAL SAMPLE ANALYSES (CONTINUED)**

Country/region		Concentration of short-chain chlorinated paraffins (ug/g dust, parts per million, ppm)
<b>Germany</b>		
Single composite		48
<b>Spain</b>		
Madrid		41
Granada		22
Valencia		28
Asturia/Leon		17
<i>Mean (average) value</i>		27
<i>Median (middle) value</i>		25
<b>France</b>		
Lille		30
Toulouse		35
Lyon		95
Nantes		49
Paris		43
HD03058	(SP05)	52
HD03062	(SP01)	48
HD03064	(SP03)	41
<i>Mean (average) value</i>		49
<i>Median (middle) value</i>		45
<b>Italy (Roma)</b>		
Single composite		34
<b>Slovakia</b>		
Slovakia I	South West	24
Slovakia II	North East	66



## Annexe 2 : Usages, distribution, dangers et profils réglementaires des cinq groupes clés de contaminants chimiques étudiés

### LES ALKYLPHENOLS ET LEURS DERIVES (AP, APE)

Les Alkylphénols (AP) sont des substances chimiques non-halogénées fabriquées presque exclusivement pour produire des éthoxylates d'alkylphénol (APE) une famille de surfactants non-anioniques. Les APE les plus largement utilisés dont les éthoxylates de nonylphénol (NPE) et, dans une moindre mesure, les éthoxylates d'octylphénol (OPE). Dans l'environnement, les APE se dégradent en AP, lesquels sont persistants, bioaccumulables et toxiques pour la vie aquatique.

#### USAGES

Les NPE sont utilisés comme surfactants, émulsifiants, dispersants et/ou agents mouillants dans une grande variété d'applications commerciales et industrielles. Des 77 000 tonnes utilisées en Europe de l'ouest, la plus grande part (presque 30 %) était incorporée dans des produits de nettoyage industriels ou à destination des collectivités (détergents) ; d'autres usages étaient également significatifs : émulsifiants (11 %), finition des textiles (10 %), finition du cuir (7 %), ingrédients de pesticides et autres produits agricoles (6 %), peintures à l'eau (5 %) [OSPAR 2001]. De plus, la littérature indique qu'une proportion substantielle (16% soit plus de 12 000 tonnes) était utilisée dans plusieurs autres « niches commerciales » (ingrédients de cosmétiques, de shampoings, et autre produits de soin corporel) ou ne faisait l'objet d'aucune affectation connue. Dans cette dernière catégorie, se classeraient les usages comme ingrédients de colles et de mastics, mais les informations sont très limitées. La documentation mentionne également l'usage de dérivés de NP comme antioxydants de certains plastiques [Guenther et al. 2002].

La littérature indique pour les OPE une gamme d'usages similaire à celle des NPE, bien que très peu d'informations fiables soient disponibles pour ce groupe. [OSPAR 2001]. Pour les deux groupes, on trouve peu de documentation

permettant d'évaluer dans quelle mesure ces usages ont pu évoluer au cours des cinq dernières années.

#### DISTRIBUTION DANS L'ENVIRONNEMENT

Les APE et les AP (particulièrement le nonylphénol et ses dérivés) sont distribués largement dans les eaux douces et marines et, en particulier, dans les sédiments où ces composés persistants s'accumulent. Du fait de leurs rejets dans les eaux usées, les APE et les AP sont des composants communs des boues d'épuration des eaux, y compris celles épandues dans les champs. Les niveaux de contamination de la faune ont fait l'objet de peu de recherches, même si la littérature cite des niveaux significatifs détectés dans des poissons et des oiseaux aquatiques en aval des sites de production d'APE ou d'installations les utilisant. Le NP comme l'OP sont connus pour s'accumuler dans les tissus des poissons et d'autres organismes vivants, et suivre un processus de biomagnification dans la chaîne alimentaire. [OSPAR 2001].

Des travaux récents ont montré l'omniprésence du NP dans toute une variété d'aliments en Allemagne [Guenther et al. 2002], mais les conséquences de cette exposition pour l'homme restent encore à évaluer. La portée et les conséquences de l'exposition directe provoquée par leur usage dans les produits de consommation n'ont pas non plus été beaucoup étudiées, bien qu'un rapport récent fasse état de la présence de résidus de NP et d'OP dans des poussières domestiques. [Butte and Heinzow 2002].

#### DANGEROUSITÉ

Les principaux dangers associés aux APE proviennent de leur dégradation partielle en éthoxylates à chaîne plus courte et le retour à la forme AP elle-même, c'est à dire le NP et l'OP qui sont tous deux toxiques pour les organismes aquatiques. L'évaluation des risques effectuée par l'UE pour le nonylphénol a associé aux usages courants des NPE des risques significatifs pour l'environnement aquatique, les

sols et pour les organismes supérieurs par empoisonnement secondaire (i.e. résultant de l'accumulation du NP dans la chaîne alimentaire, OSPAR 2001). En considération de l'exposition humaine provoquée par l'usage des NPE dans les produits de

consommation, le Comité Scientifique de l'UE sur la Toxicité, l'Ecotoxicité et l'Environnement (CSTEE 2001) a conclu inter alia que le "manque sérieux de données mesurées pour le NP en relation avec la production et l'utilisation de ce composé et de ces dérivés rend l'évaluation des expositions professionnelles et domestiques incertaines".

Le danger associé aux AP (NP et OP) le plus largement reconnu réside indubitablement dans leur activité oestrogène, i.e. leur capacité à imiter les hormones oestrogènes naturelles. Cette activité peut altérer le développement sexuel de plusieurs organismes vivants, et provoquer notamment la féminisation des poissons [Jobling et al. 1995, 1996], un facteur suspecté d'avoir contribué de façon importante aux modifications massives du développement sexuel des poissons dans les rivières britanniques [Jobling et al. 2002]. Atienzar et al. (2002) ont récemment décrit les effets directs du NP sur la structure et les fonctions de l'ADN dans la larve de bernacle, un mécanisme qui pourrait être responsable des effets de perturbation hormonale observés dans l'ensemble des organismes vivants.

Les dangers pour la santé humaine demeurent obscurs. Des travaux récents ont néanmoins soulevé des préoccupations relevant directement de la santé humaine. Par exemple, Chitra et al. (2002) et Adeoya-Osiguwa et al. (2003) décrivent des effets sur les fonctions du sperme chez les mammifères, tandis que de récents documents citent également une détérioration de l'ADN dans les lymphocytes humains. [Harreus et al. 2002].

#### ACTIONS DE CONTRÔLE ENTREPRISES

En 1998, la réunion ministérielle d'OSPAR s'est accordée sur l'objectif de cessation des rejets, émissions et pertes de toutes les substances dangereuses dans l'environnement marin d'ici 2020 (l'objectif générationnel) et a inclus les NP/NPE sur la première liste de substances nécessitant une action prioritaire vers cet objectif [OSPAR 1998]. Depuis lors, le NP a été classée dans le cadre de la Directive Eau de l'UE comme « substance dangereuse prioritaire », de telle sorte qu'une action de prévention des rejets dans l'eau sur 20 ans soit requise dans les pays membres [EU 2001]. Une décision sur la prioritarisation des OP/OPE est toujours en considération.

Les dangers environnementaux reconnus présentés par les AP/APE ont déjà conduit à certaines restrictions d'usage. Notons en particulier dans le contexte européen, la Recommandation adoptée par la Commission de Paris (depuis absorbée dans la Commission OSPAR) en 1992, qui exigeait l'abandon des NPE des agents d'entretien domestiques d'ici 1995, et des agents d'entretien industriels d'ici 2000 [PARCOM 1992]. Cependant, il reste difficile d'évaluer dans quelle mesure cette décision a été suivie d'effets.

Comme nous l'avons cité ci-dessus, l'évaluation des risques conduite par les autorités européenne a conclu que, pour le NP, il y avait un besoin de renforcer la réduction des risques dans quelques usages, tandis que des propositions pour des restrictions de la commercialisation et des usages du NP et de ses dérivés font encore l'objet de discussions. Par ailleurs, il n'existe que très peu d'informations sur les usages en cours du NP, de l'OP et de leurs dérivés dans les produits de consommation et, en conséquence, sur notre exposition directe à ces substances.

- Adeoya-Osiguwa, S.A., Markoulaki, S., Pocock, V., Milligan, S.R. & Fraser, L.R. (2003) 17-beta-estradiol and environmental estrogens significantly effect mammalian sperm function. *Human Reproduction* 18(1): 100-107
- Atienzar, F.A., Billingham, Z. & Depledge, M.H. (2002) 4-n-nonylphenol and 17-beta-estradiol may induce common DNA effects in developing barnacle larvae. *Environmental Pollution* 120(3) 735-738
- Butte, W. & Heinzow, B. (2002) Pollutants in house dust as indicators of indoor contamination. *Reviews in Environmental Contamination and Toxicology* 175: 1-46
- Chitra, K.C., Latchoumycandane, C. & Mathur, P.P. (2002) Effect of nonylphenol on the antioxidant system in epididymal sperm of rats. *Archives of Toxicology* 76(9): 545-551
- CSTEE (2001) EC Scientific Committee on Toxicity, Ecotoxicity and the Environment, Opinion on the results of the Risk Assessment of: 4-NONYLPHENOL (Branched) AND NONYLPHENOL - Report version (Human Health effects) : November 2000. Opinion expressed at the 22nd CSTEE plenary meeting, Brussels, 6/7 March 2001: [http://europa.eu.int/comm/food/fs/sc/sct/out9\\_1\\_en.html](http://europa.eu.int/comm/food/fs/sc/sct/out9_1_en.html)
- EU (2001) Decision No 2455/2001/EC of the European Parliament and of the Council of 20 November 2001 establishing the list of priority substances in the field of water policy and amending Directive 2000/60/EC, Official Journal L 249 , 17/09/2002: 27-30
- Guenther, K., Heinke, V., Thiele, B., Kleist, E., Prast, H. & Raecker, T. (2002) Endocrine disrupting nonylphenols are ubiquitous in food. *Environmental Science and Technology* 36(8): 1676-1680
- Harreus, U.A., Wallner, B.C., Kastenbauer, E.R. & Kleinsasser, N.H. (2002) Genotoxicity and cytotoxicity of 4-nonylphenol ethoxylate on lymphocytes as assessed by the COMET assay. *International Journal of Environmental Analytical Chemistry* 82(6): 395-401
- Jobling, S., Coey, S., Whitmore, J.G., Kime, D.E., van Look, K.J.W., McAllister, B.G., Beresford, N., Henshaw, A.C., Brighty, G., Tyler, C.R. & Sumpter, J.P. (2002) Wild intersex roach (*Rutilus rutilus*) have reduced fertility. *Biology of Reproduction* 67(2): 515-524
- Jobling, S., Reynolds, T., White, R., Parker, M.G. & Sumpter, J.P. (1995) A variety of environmentally persistent chemicals, including some phthalate plasticizers, are weakly estrogenic. *Environmental Health Perspectives* 103(6): 582-587
- Jobling, S., Sheahan, D., Osborne, J.A., Matthiessen, P. & Sumpter, J.P. (1996) Inhibition of testicular growth in rainbow trout (*Oncorhynchus mykiss*) exposed to estrogenic alkylphenolic chemicals. *Environmental Toxicology and Chemistry* 15(2): 194-202
- OSPAR (1998) OSPAR Strategy with Regard to Hazardous Substances, OSPAR Convention for the Protection of the Marine Environment of the North-East Atlantic, OSPAR 98/14/1 Annex 34
- OSPAR (2001) Nonylphenol/nonylphenolethoxylates, OSPAR Priority Substances Series, OSPAR Convention for the Protection of the Marine Environment of the North-East Atlantic, OSPAR Commission, London, ISBN 0-946956-79-0: 18 pp.
- PARCOM (1992) PARCOM Recommendation 92/8 on nonylphenol-ethoxylates, OSPAR Convention for the Protection of the Marine Environment of the North-East Atlantic, OSPAR Commission, London: 1 p.

## LES RETARDATEURS DE FLAMME BROMES

Les retardateurs de flamme bromés (RFB) forment un groupe varié de composés organiques bromés utilisés pour prévenir la combustion et/ou retarder la propagation du feu dans divers plastiques, textiles ou autres matériaux. On recense plus de 70 composés ou groupes bromés employés comme retardateurs de flamme [Lassen *et al.* 1999], mais trois groupes chimiques dominent les usages courants ; les diphényléthers polybromés (PBDE), l'hexabromocyclododécane (HBCD) et les bisphénols bromés (le TBBP-A en particulier).

### USAGES

Les retardateurs de flamme bromés sont utilisés dans une large gamme de produits industriels ou de consommation : appareils électriques et électroniques, véhicules, éclairages et câblages, textiles (tapis et autre fournitures), emballages et matériaux d'isolation (particulièrement le polystyrène) [Lassen *et al.* 1999]. Les PBDE et le HBCD sont utilisés comme additifs, tandis que le TBBP-A est plus communément employé comme un composant réactif qui devient plus étroitement lié aux polymères dans lesquels il est incorporé. Néanmoins, il existe aussi des usages du TBBP-A en tant qu'additif.

Trois PBDE sont encore utilisés en UE, le penta-BDE, l'octa-BDE et le déca-BDE. En Europe, l'utilisation de ces additifs représentait en 1999, selon les estimations, 210 tonnes, 450 tonnes et 7 500 tonnes respectivement [OSPAR 2001], le déca-BDE (appelé aussi BDE-209) constituant de loin l'utilisation la plus importante et la plus diverse. La même année, l'utilisation de HBCD représentait quelques 9 200 tonnes, dont 85% incorporés dans des panneaux d'isolation en polystyrène rigide [OSPAR 2001]. La production mondiale de TBBP-A est en augmentation et les estimations de leur utilisation en Europe la créditent de 13 800 tonnes [BSEF 2000]. Un autre groupe, les biphenyles polybromés (PBB), n'est plus produit en Europe, bien qu'indubitablement des quantités substantielles demeurent dans les produits existants ou importés et dans les déchets.

### DISTRIBUTION DANS L'ENVIRONNEMENT

La majorité des retardateurs de flamme bromés sont des substances chimiques persistantes dans l'environnement. Certains, en particulier le penta-BDE, sont hautement bioaccumulables mais l'ensemble des groupes cités ci-dessus sont biodisponibles et peuvent être détectés dans les tissus animaux et humains. En effet, leur production a conduit à leur présence massive et, parfois, croissante dans l'environnement.

Bien que les premiers rapports de la contamination de la faune remontent au début des années 1980, la nature massive de la contamination par les PBDE ne fut reconnue au début des années 1990. [Sellström *et al.* 1993, Jansson *et al.* 1993]. Depuis lors, la littérature a documenté la présence des PBDE dans presque tous les compartiments environnementaux, dont les sédiments [Allchin *et al.* 1999], l'eau douce et les poissons marins [Asplund *et al.* 1999a, b] et même les baleines vivant en eaux océaniques profondes ou en zone arctique [de Boer *et al.* 1998, Stern and Ikonou 2000]. Il existe moins de données disponibles pour les autres retardateurs de flamme bromés d'usage courant, partiellement du fait de difficultés analytiques, quoique des recherches récentes suggèrent que la contamination par le HBCD pourrait être un phénomène d'égale ampleur [Allchin and Morris 2002].

Les PBDE ont également été documentés comme des contaminants courants du corps humain, dans des rapports suédois, espagnols, finlandais et nord-américains [Lindstrom *et al.* 1997, Meneses *et al.* 1999, Strandman *et al.* 1999, She *et al.* 2000]. L'observation des concentrations de PBDE dans le lait maternel et le sang montre une croissance ininterrompue sur les deux dernières décades [Meironyte *et al.* 1999, Thomsen et al 2002], et le TBBP-A semble présenter aussi les mêmes tendances. La présence du déca-BDE dans le sérum humain démontre sa biodisponibilité en dépit de sa grande taille moléculaire.

Bien que la voie majoritaire d'exposition réside probablement dans l'alimentation (particulièrement pour les plus bioaccumulables comme les PBDE), d'autres sources



d'exposition sont aussi susceptibles d'être significatives, comme le contact direct avec des produits contenant des retardateurs de flamme. Les PBDE, l'HCBD et le TBBP-A ont été détectés dans l'air intérieur et/ou dans les poussières des lieux de travail [Sjödín *et al.* 2001, Jakobsson *et al.* 2002] et, dans une certaine mesure, les concentrations dans le sang ont pu être corrélées avec, par exemple, le contact des ordinateurs dans l'environnement professionnel [Hagmar 2000]. Dans une étude précédente des niveaux de contamination des poussières collectées dans des bâtiments parlementaires européens, nous avons documenté la présence de PBDE, HBCD et TBBP-A ; le deca-BDE et le HBCD présentaient généralement les concentrations les plus élevées (de l'ordre de plusieurs parties par million, Leonards *et al.* 2001).

#### DANGÉROSITÉ

Comme indiqué ci-dessus, les retardateurs de flamme bromés sont généralement des substances hautement persistantes ; si certaines d'entre elles sont aussi hautement bioaccumulables, elles sont toutes biodisponibles. Bien que leurs mécanismes de toxicité soient peu à peu élucidés, la toxicité de faibles doses à long terme demeure peu documentée.

Alors que la toxicité aiguë des RFB est réputée faible, des rats soumis à une exposition chronique (spécialement au cours de la gestation) ont montré des signes de perturbation du développement de leur squelette ou de leur cerveau, [Eriksson *et al.* 1999], qui peut induire à son tour des effets neurologiques permanents. [Eriksson *et al.* 2001]. La littérature rapporte que les métabolites communs des PBDE, comme du TBBP-A, interfèrent avec les mécanismes de liaison des hormones thyroïdes [Meerts *et al.* 1998, 2001], augmentant les potentialités de divers effets sur la croissance et le développement. Helleday *et al.* (1999) rapporte des effets génotoxiques observés pour les PBDE et le HCBD sur des lignées cellulaires de mammifères.

Quelque soit la forme chimique du RFB utilisé, l'incinération de déchets contenant ces composés contribue à la formation de dioxines et furanes bromés, qui présentent des toxicités comparables à leurs équivalents chlorés. [IPCS 1998].

#### ACTIONS DE CONTRÔLE ENTREPRISES

Les dangers pour l'environnement et la santé humaine a été reconnue depuis quelque temps. En 1998, la réunion ministérielle d'OSPAR s'est accordée sur l'objectif de cessation des rejets, émissions et pertes de toutes les substances dangereuses dans l'environnement marin d'ici 2020 (l'objectif générationnel) et a inclus les RFB sur la première liste de substances nécessitant une action prioritaire vers cet objectif [OSPAR 1998]. OSPAR a depuis identifié des opportunités d'action contre les PBDE et le HCBD, mais attend les conclusions des évaluations menées par l'UE avant de développer des mesures spécifiques. [OSPAR 2001]. Les travaux sur le TBBP-A se poursuivent au sein d'OSPAR.

Dans le cadre du programme de l'UE sur les Substances Existantes, les évaluations des risques sont maintenant terminées pour deux des trois PBDE d'usage courant, le penta- et l'octa- BDE (voir e.g. EC 2001) et des interdictions à l'échelle européenne sur la commercialisation et l'utilisation ont été adoptées pour les deux substances [EU 2003]. Bien qu'il reste à combler un manque important de données sur le deca-BDE, les états membres de l'UE se sont néanmoins accordés pour que des mesures de réduction des risques soient « considérées sans délai » et développées en parallèle. [EC 2002a].

Avant même l'achèvement de ces évaluations, l'abandon d'ici 2006 des PBDE des équipements électriques et électroniques a déjà été adopté dans le cadre de la « Directive sur les Déchets des Equipements Electriques et Electroniques/Restrictions sur les Substances Dangereuses » [EC 2002b], qui est entrée en vigueur en 2003. Leur présence dans les équipements anciens demeurera, cependant, un problème pour la gestion des déchets pendant un temps considérable.

Du fait de sa haute persistance et sa propension à la bioaccumulation, le penta-BDE fait l'objet d'une proposition de classement comme « substance dangereuse prioritaire » dans le cadre de la Directive UE sur l'Eau [EU 2001], mais les discussions se poursuivent. Par ailleurs, une étude [Peltola and Yla-Mononen 2001] se penche sur l'inscription du penta-BDE sur la liste des Polluants Organiques Persistants (POP) soumis à un contrôle mondial dans le cadre de

la Convention de Stockholm de 2001, développée sous les auspices du PNUE (REF), en reconnaissance de ces propriétés « POP-like ».

Au niveau national, la Suède a proposé pendant des années l'abandon des PBB et des PBDE pour toutes les applications [KEMI 1999]. Très récemment, le gouvernement norvégien a adopté un plan d'action pour réglementer les

RFB qui inclut *inter alia* des propositions pour l'interdiction des penta-, octa- et deca-BDE et un contrôle plus strict du HCB et du TBBP-A [SFT 2003]. Même si une interdiction nationale et/ou régionale prenait effet, il demeurerait néanmoins un héritage important de RFB dans les produits encore en usage et/ou dans les flux de déchets.

Allchin, C. & Morris, S. (2002) The determination and occurrence of three groups of brominated flame retardants (polybrominated diphenyl ethers, tetrabromobisphenol A and hexabromocyclododecane) in samples of aquatic origin from the UK. In: Readman, J.; Worsfold, P., eds. Proceedings of ISEAC 32, International Symposium on the Environment and Analytical Chemistry, Plymouth, 17-20 June 2002: 15

Allchin, C.R., Law, R.J. & Morris, S. (1999) Polybrominated diphenylethers in sediments and biota downstream of potential sources in the UK. *Environmental Pollution* 105: 197-207

Asplund, L., Athanasiadou, M., Sjödin, A., Bergman, Å. & Borjeson, H. (1999b) Organohalogen substances in muscle, egg and blood from healthy Baltic salmon (*Salmo salar*) and Baltic salmon that produced offspring with the M74 syndrome. *Ambio* 28(1): 67-76

Asplund, L., Hornung, M., Peterson, R.E., Turesson, K. & Bergman, Å. (1999a) Levels of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in fish from the Great Lakes and Baltic Sea. *Organohalogen Compounds* 40:351-354

BSEF (2000) An introduction to brominated flame retardants, Bromine Science and Environment Forum, Brussels, July 2000: 29 pp.  
<http://www.ebfrip.org/download/weeeqa.pdf>

de Boer, J., Wester P.G., Klamer H.J.C., Lewis, W.E. & Boon J.P. (1998) Do flame retardants threaten ocean life? *Nature* 394 (2 July): 28-29

EC (2001) European Union Risk Assessment Report, diphenyl ether, pentabromo

derivative ether, 1<sup>st</sup> Priority List, Volume 5, EUR 19730 EN: 293 pp.

EC (2002a) European Union Risk Assessment Report, bis(pentabromophenyl) ether, 1<sup>st</sup> Priority List, Volume 17, EUR 20402 EN: 294 pp.

EC (2002b) European Community Common Position (EC) No 19/2002 of 4 December 2001 adopted by the Council, acting in accordance with the procedure referred to in Article 251 of the Treaty establishing the European Community, with a view to adopting a Directive of the European Parliament and of the Council on the restrictions of the use of certain hazardous substances in electrical and electronic equipment (RoHS). *Official Journal of the European Communities*, 2002 /C 90/E, Vol. 45: 12-18

Eriksson, P., Viberg, H., Ankarberg, E., Jakobsson, E., Örn, U. & Fredriksson, A. (2001) Polybrominated diphenylethers (PBDEs): a novel class of environmental neurotoxicants in our environment. In: Asplund, L.; Bergman, Å.; de Wit, C., *et al.* eds. Proceedings of the Second International Workshop on Brominated Flame Retardants, BFR 2001, Stockholm, May 14-16 2001: 71-73

Eriksson, P., Viberg, H., Jakobsson, E., Örn, U. & Fredriksson, A. (1999) PBDE, 2,2',4,4',5-pentabromodiphenyl ether, causes permanent neurotoxic effects during a defined period of neonatal brain development. *Organohalogen Compounds* 40: 333-336

EU (2001) Decision No 2455/2001/EC of the European Parliament and of the Council of 20 November 2001 establishing the list of priority substances in the field of water

- policy and amending Directive 2000/60/EC, Official Journal L 249 , 17/09/2002: 27-30
- EU (2003) Directive 2003/11/EC of the European Parliament and of the Council of 6 February 2003 amending for the 24<sup>th</sup> time Council Directive 76/769/EEC relating to restrictions on the marketing and use of certain dangerous substances and preparations (pentabromodiphenyl ether, octabromodiphenyl ether), Official Journal L 42, 15.02.2003: 45-46
- Hagmar, L., Jakobsson, K., Thuresson, K., Rylander, L., Sjödin, A. & Bergman, Å. (2000) Computer technicians are occupationally exposed to polybrominated diphenyl ethers and tetrabromobisphenol A. *Organohalogen Compounds* 47: 202-205
- Helleday, T., Tuominen, K.L., Bergman, Å. & Jenssen, D. (1999) Brominated flame retardants induce transgenic recombination in mammalian cells. *Mutation Research – Genetic Toxicology and Environmental Mutagenesis* 439(2): 137-147
- Ikonomou, M.G., Rayne, S. & Addison, R.F. (2002) Exponential increases of the brominated flame retardants, polybrominated diphenyl ethers, in the Canadian Arctic from 1981 to 2000. *Environmental Science and Technology* 36(9): 1886-1892
- IPCS (1998) Polybrominated dibenzo-p-dioxins and dibenzofurans, *Environmental Health Criteria*, No. 205, International Programme on Chemical Safety, UNEP/ILO/WHO, ISBN 92 4 157205 1: 303 pp.
- Jakobsson, K., Thuresson, K., Rylander, L., Sjödin, A., Hagmar, L. & Bergman, Å. Exposure to polybrominated diphenyl ethers and tetrabromobisphenol A among computer technicians. *Chemosphere* 46(5): 709-716
- Jansson, B., Andersson, R., Asplund, L., Litzen, K., Nylund, K., Sellström, U., Uvemo, U.-B., Wahlberg, C., Wideqvist, U., Odsjö, T. & Olsson, M. (1993) Chlorinated and brominated persistent organic compounds in biological samples from the environment. *Environmental Toxicology and Chemistry* 12(7): 1163-1174
- KEMI (1999) Phase-out of PBDEs and PBBs: Report on a Governmental Commission, The Swedish National Chemicals Inspectorate, 15<sup>th</sup> March 1999: 34 pp.
- Lassen, C., Lokke, S. & Hansen, L.I. (1999) Brominated Flame Retardants: substance flow analysis and substitution feasibility study. Danish Environmental Protection Agency Environmental Project No. 494, Copenhagen, ISBN 87-7909-415-5: 240 pp.
- Leonards, P.E.G., Santillo, D., Brigden, K., van der Ween, I., Hesseligen, J.v., de Boer, J. & Johnston, P. (2001) Brominated flame retardants in office dust samples. In: Asplund, L.; Bergman, Å.; de Wit, C., *et al.* eds. *Proceedings of the Second International Workshop on Brominated Flame Retardants, BFR 2001*, Stockholm, May 14-16 2001: 299-302
- Lindstrom, G., van Bavel, B., Hardell, L. & Liljegren, G. (1997) Identification of the flame retardants polybrominated diphenyl ethers in adipose tissue from patients with non-Hodgkin's lymphoma in Sweden. *Oncology Reports* 4(5): 999-1000
- Meerts, I.A.T.M., Letcher, R.J., Hoving, S., Marsh, G., Bergman, Å., Lemmen, J.G., van der Burg, B. & Brouwer, A. (2001) *In vitro* estrogenicity of polybrominated diphenyl ethers, hydroxylated PBDEs and polybrominated bisphenol A compounds. *Environmental Health Perspectives* 109(4): 399-407
- Meerts, I.A.T.M., Marsh, G., van Leeuwen-Bol, I., Luijckx, E.A.C., Jakobsson, E., Bergman, Å. & Brouwer, A. (1998) Interaction of polybrominated diphenyl ether metabolites (PBDE-OH) with human transthyretin *in vitro*. *Organohalogen Compounds* 37: 309-312
- Meironyte, D., Noren, K. & Bergman, Å. (1999) Analysis of polybrominated diphenyl ethers in Swedish human milk. A time-related trend study, 1972-1997. *Journal of Toxicology and Environmental Health - Part A* 58(6): 329-341
- Meneses, M., Wingfors, H., Schuhmacher, M., Domingo, J.L., Lindstrom, G. & von Bavel, B. (1999) Polybrominated diphenyl ethers detected in human adipose tissue from Spain. *Chemosphere* 39(13): 2271-2278

- OSPAR (1998) OSPAR Strategy with Regard to Hazardous Substances, OSPAR Convention for the Protection of the Marine Environment of the North-East Atlantic, OSPAR 98/14/1 Annex 34
- OSPAR (2001) Certain Brominated Flame Retardants – Polybrominated Diphenylethers, Polybrominated Biphenyls, Hexabromocyclododecane, OSPAR Priority Substances Series, OSPAR Convention for the Protection of the Marine Environment of the North-East Atlantic, OSPAR Commission, London: 25pp.
- Peltola, J. & Ylä-Mononen, L. (2001) Pentabromodiphenyl ether as a global POP. TemaNord 2001:579, Nordic Council of Ministers, Copenhagen, ISBN 92-893-0690-4: 78 pp.
- Sellström, U., Jansson, B., Kierkegaard, A., de Wit, C., Odsjo, T. & Olsson, M. (1993) Polybrominated diphenyl ethers (PBDE) in biological samples from the Swedish environment. Chemosphere 26(9): 1703-1718
- SFT (2003) Norwegian Pollution Control Authority Press Release, <http://www.sft.no/english/news/dbafile8520.html>.
- She, J., Winkler, J., Visita, P., McKinney, M. & Petreas, M. (2000) Analysis of PBDEs in seal blubber and human breast adipose tissue samples. Organohalogen Compounds 47: 53-56
- Sjödin, A., Carlsson, H., Thuresson, K., Sjölin, S., Bergman, Å. & Ostman, C. (2001) Flame retardants in indoor air at an electronics recycling plant and at other work environments. Environmental Science and Technology 35(3): 448-454
- Strandman, T., Koistinen, J., Kiviranta, H., Vuorinen, P.J., Tuomisto, J. & Vartiainen, T. (1999) Levels of some polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in fish and human adipose tissue in Finland. Organohalogen Compounds 40:355-358
- Thomsen, C., Lundanes, E. & Becher, G. (2002) Brominated flame retardants in archived serum samples from Norway: A study on temporal trends and the role of age. Environmental Science and Technology 36(7): 1414-1418
- UNEP (2001) United Nations Environment Programme, Final Act of the Conference of Plenipotentiaries on the Stockholm Convention on Persistent Organic Pollutants, UNEP/POPS/CONF/4, 5 June 2001: 44 pp.

## LES COMPOSES ORGANOETAIS

Les organoétains (ou organostanniques) sont des composés organiques contenant au moins une liaison entre un carbone et le métal étain. Le plus connu est de loin le tributylétain (TBT). Du fait de son usage répandu dans les peintures navales antifouling (anti-salissures), il a provoqué des changements massifs du développement sexuel des mollusques marins. Toutefois, plusieurs autres organoétains sont d'usage courant, plus particulièrement les mono- et dibutylétain (MBT, DBT), les octylétains (MOT, DOT) et les triphénylétains (TPT).

### USAGES

Comme indiqué ci-dessus, le TBT a été utilisé pendant des années comme agent antifouling pour les peintures navales. Son utilisation sur les embarcations de petite taille (<25m) a été interdite dans de nombreux pays depuis plus de 10 ans, suite aux impacts dévastateurs sur les populations d'huîtres et d'autres mollusques marins [Santillo *et al.* 2001a]. Son utilisation est encore permise pour les vaisseaux de plus grande taille, quoique récemment soumise à un processus d'abandon (voir ci-dessous).

Bien que les peintures antifouling aient représenté l'utilisation majoritaire de TBT, ce composé est également utilisé comme agent antifongique dans certains produits de consommation, comprenant tapis, textiles et les revêtements de sol vinyliques (PVC) [Allsopp *et al.* 2000, 2001]. Le MBT et le DBT sont, toutefois, bien plus abondants dans les produits de consommation où ils sont utilisés comme stabilisateurs de chaleur dans les produits en PVC rigide (canalisations, panneaux) ou souple (revêtements muraux, mobiliers, revêtements de sol, jouets) ainsi que dans certaines applications de revêtements en verre [Matthews 1996]. Le PVC représente environ deux tiers de la consommation mondiale de ces composés [Sadiki and Williams 1999], qui peuvent représenter jusqu'à 2 % du poids du produit fini. Les mono- et dioctyl- étains (MOT, DOT) sont aussi utilisés comme stabilisateurs du PVC, essentiellement dans les applications alimentaires. Kawamura *et al.* (2000) ont rapporté des niveaux de l'ordre du g/kg pour le MOT dans les conteneurs en PVC. Selon les

chiffres de l'industrie ([www.ortepa.org](http://www.ortepa.org)), approximativement 15 000 tonnes d'organoétains étaient utilisés pour le PVC, en Europe, en 1995.

### DISTRIBUTION DANS L'ENVIRONNEMENT

La plupart des travaux de recherche décrivant la distribution environnementale des composés organoétains se sont focalisés, en toute logique, sur la dissémination du TBT et des produits de dégradation (dont le DBT) dans l'environnement marin. L'utilisation du TBT dans les peintures antifouling à l'échelle mondiale a provoqué une contamination de même échelle. La persistance relative des butylétains, combinée avec leur affinité pour les tissus vivants, a conduit à une vaste contamination du poisson, des phoques, des baleines et des dauphins dans toutes les grandes zones maritimes [Iwata *et al.* 1995, Kannan *et al.* 1996, Ariese *et al.* 1998].

Beaucoup moins d'informations sont disponibles concernant la distribution des organoétains dans d'autres compartiments environnementaux. Dans l'une des rares études effectuées, Takahashi *et al.* (1999) ont rapporté la présence de résidus de butylétain dans le foie de singes et d'autres mammifères au Japon, ainsi que dans des foies humains, et ont suggéré que les usages dans les produits de consommation sont susceptibles de constituer une source majeure d'exposition. La présence des composés organoétains dans une large gamme de matériaux de construction et de produits de consommation, particulièrement les produits en PVC, ont été soulignés ci-dessous. Il a été également reconnu depuis un certain temps que les stabilisateurs en butylétain peuvent migrer de tels produits au cours de leur utilisation normale. [Sadiki and Williams 1999].

Une étude récente effectuée en Allemagne a soulevé des préoccupations sur la présence de niveaux élevés de TBT et d'autres organoétains dans les revêtements de sol PVC [Oeko-Test 2000]. Les données d'Allsopp *et al.* (2000, 2001) sur les revêtements de sol PVC et les tapis, disponibles en vente au détail au Royaume-Uni, confirment l'utilisation courante de ces composés dans ce marché, parfois à de très fortes concentrations (jusqu'à 0,57 g/kg de

DBT dans le PVC, 0,047 g/kg de TBT dans des fibres de tapis traitées). De tels usages contribuent sans aucun doute à la présence très répandue de composés organoétains dans les poussières de l'environnement domestique (voir par exemple Santillo *et al.* 2001b).

#### DANGEROUSITÉ

Les organoétains sont réputés pour leur toxicité à des niveaux d'exposition relativement faibles non seulement pour les invertébrés marins mais aussi pour les mammifères. Pour les invertébrés marins, le TBT est généralement plus toxique que le DBT, lui-même plus toxique que le MBT [Cima *et al.* 1996]. Toutefois, ce n'est pas toujours le cas, puisque le DBT est plus toxique que le TBT pour certains systèmes enzymatiques [Bouchard *et al.* 1999, Al-Ghais *et al.* 2000]. Pour les poissons, le DBT est fréquemment une toxine plus puissante que le TBT [O'Halloran *et al.* 1998], avec le système immunitaire comme cible principale.

Il a été démontré que les organoétains possèdent des propriétés immunotoxiques et tératogènes (effets sur le développement) sur les mammifères également [Kergosien and Rice 1998], le DBT apparaissant fréquemment comme plus toxique que le TBT [Ema *et al.* 1995, De Santiago and Aguilar-Santelises 1999]. Le DBT est neurotoxique pour les cellules du cerveau des mammifères [Eskes *et al.* 1999]. Ema *et al.* (1996, 1997) ont démontré l'importance du moment précis de l'exposition au DBT dans l'induction de perturbations dans le développement d'embryons de rats. Très récemment, Kumasaka *et al.* (2002) ont décrit les effets toxiques sur le développement testiculaire chez les souris.

Les évaluations sur la portée de l'exposition humaine aux organoétains par consommation de produits marins contaminés ont considéré l'immunotoxicité potentielle de ces composés pour l'homme comme un paramètre d'impact [Belfroid *et al.* 2000]. Bien que la consommation de produits marins demeure la source prédominante d'exposition aux organoétains, l'exposition directe aux produits de consommation qui les contiennent ou aux poussières domestiques peut également représenter une source significative.

#### ACTIONS DE CONTRÔLE ENTREPRISES

A ce jour, les actions de contrôle réglementaires sur les composés organoétains se sont focalisées

essentiellement sur le TBT dans les peintures antifouling. Une série d'interdictions nationales sur l'utilisation de ces peintures pour les vaisseaux de petite taille, dont les premières ont concerné la France et le Royaume-Uni, a été suivie d'une interdiction à l'échelle de l'UE sur les vaisseaux de moins de 25 m de long en 1991 [Evans 2000]. Plus récemment, l'Organisation Maritime Internationale (OMI) a adopté une procédure d'abandon progressif de toute nouvelle application de peinture au TBT (à partir de Janvier 2003) et de la présence de TBT déjà apposé (à partir de 2008) dans le cadre de la Convention sur les Systèmes Antifouling Nocifs (voir [www.imo.org](http://www.imo.org)). La première de ces échéances a récemment été transposée en législation communautaire en UE [EU 2002a].

Par ailleurs, et en dépit de la toxicité sur les mammifères exposée ci-dessus, le TBT continue d'être utilisé comme additif dans certains produits de consommation, à l'instar d'autres butylétains et octylétains. Les composés organoétains ne doivent pas être incorporés dans certains textiles candidats à l'éco-label européen [EU 2002b], mais il n'existe pas d'autres restrictions sur les usages tant que les matériaux et produits traités n'ont pas vocation à être utilisés au contact de l'eau. Et ce, malgré le fait que le TBT est classé par la Directive UE sur l'étiquetage comme « nocif au contact avec la peau, toxique si ingéré, irritant pour les yeux et la peau » et comme présentant un « danger d'atteintes sérieuses à la santé par exposition prolongée par le biais de l'inhalation ou de l'ingestion ».

En 2001, l'Allemagne avait notifié la Commission européenne de son intention d'introduire des contrôles plus stricts des organoétains, dont des restrictions d'usage dans les produits de consommation. Toutefois, de telles actions furent rejetées et qualifiées d'« inadmissibles » par la Commission [EC 2002].

En 1998, la réunion ministérielle d'OSPAR a adopté un objectif de cessation des rejets, émissions et pertes de toutes les substances dangereuses dans l'environnement marin d'ici 2020 (l'objectif générationnel) et a inclus les composés organoétains sur la première liste de substances nécessitant une action prioritaire vers cet objectif [OSPAR 1998]. L'action d'OSPAR s'est initialement focalisée sur les

objectifs de la convention de l'OMI sur les agents antifouling nocifs [OSPAR 2000]. En 2001, OSPAR a commencé de considérer une action de plus large portée sur les autres usages du TBT et sur les autres composés organoétains, dont l'usage très répandu de stabilisateurs au

butylétain, bien qu'à ce jour, aucune autre mesure n'ait été proposée.

- Al-Ghais, S.M. & Ahmad, A.B. (2000) Differential inhibition of xenobiotic-metabolizing carboxylesterases by organotins in marine fish. *Ecotoxicology and Environmental Safety* 46(3): 258-264
- Allsopp, A., Santillo, D. & Johnston, P. (2001) Hazardous chemicals in carpets. Greenpeace Research Laboratories Technical Note 01/2001, January 2001: 14 pp. [published under cover title "*Poison Underfoot: Hazardous Chemicals in PVC Flooring and Hazardous Chemicals in Carpets*, ISBN 90-73361-68-0]
- Allsopp, M., Santillo, D. & Johnston, P. (2000). Hazardous chemicals in PVC flooring. Greenpeace Research Laboratories Technical Note 14/00, November 2000: 10 pp. [published under cover title "*Poison Underfoot: Hazardous Chemicals in PVC Flooring and Hazardous Chemicals in Carpets*, ISBN 90-73361-68-0]
- Ariese, F., van Hattum, B., Hopman, G., Boon, J. & ten Hallers-Tjabbes, C. (1998) Butyltin and phenyltin compounds in liver and blubber samples of sperm whales (*Physeter macrocephalus*) stranded in the Netherlands and Denmark.. Institute for Environmental Studies, Vrije Universiteit, Amsterdam, Report W98-04, March 1998
- Belfroid, A.C., Purperhart, M. & Ariese, F. (2000) Organotin levels in seafood. *Marine Pollution Bulletin* 40(3): 226-232
- Bouchard, N., Pelletier, E. & Fournier, M. (1999) Effects of butyltin compounds on phagocytic activity of hemocytes from three marine bivalves. *Environmental Toxicology and Chemistry* 18(3): 519-522
- Cima, F., Ballarin, L., Bressa, G., Martinucci, G. & Burighel, P. (1996) Toxicity of organotin compounds on embryos of a marine invertebrate (*Styela plicata*; Tunicata). *Ecotoxicology and Environmental Safety* 35(2): 174-182
- de Santiago, A. & Aguilar-Santelises, M. (1999) Organotin compounds decrease *in vitro* survival, proliferation and differentiation of normal human B lymphocytes. *Human and Experimental Toxicology* 18(10): 619-624
- EC (2002) Commission Decision 2001/570/EC of 13 July 2001 on draft national provisions notified by the Federal Republic of Germany on limitations on the marketing and use of organostannic compounds. *Official Journal L* 202, 27/07/2001: 37-45
- Ema, M., Harazono, A., Miyawakai, E. & Ogawa, Y. (1997) Effect of the day of administration on the developmental toxicity of tributyltin chloride in rats. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology* 33(1): 90-96
- Ema, M., Iwase, T., Iwase, Y., Ohyama, N. & Ogawa, Y. (1996) Change of embryotoxic susceptibility to di-n-butyltin chloride in cultured rat embryos. *Archives of Toxicology* 70(11): 742-748
- Ema, M., Kurosaka, R., Amano, H. & Ogawa, Y. (1995) Comparative developmental toxicity of butyltin trichloride, dibutyltin dichloride and tributyltin chloride in rats. *Journal of Applied Toxicology* 15(4): 297-302
- Eskes, C., Honegger, P., Jones-Lepp, T., Varner, K., Matthieu, J.M. & Monnet-Tschudi, F. (1999) Neurotoxicity of dibutyltin in aggregating brain cell cultures. *Toxicology In Vitro* 13(4-5): 555-560
- EU (2002a) Commission Directive 2002/62/EC of 9<sup>th</sup> July 2002 adapting to technical progress for the ninth time Annex 1 to Council Directive 76/769/EEC on the approximations of the laws, regulations and administrative provisions of the member States relating to restrictions on the marketing and use of certain dangerous substances and preparations (organostannic

- compounds). Official Journal L 183, 12.7.2002: 58-59
- EU (2002b) Commission Decision 2002/371/EC of 15 May 2002 establishing the ecological criteria for the award of the Community eco-label to textile products and amending Decision 1999/178/EC. Official Journal L 133, 18/05/2002: 29-41
- Evans, S.M. (2000) Marine antifoulants. In: C. Sheppard [Ed.], *Seas at the Millenium: An Environmental Evaluation, Volume III: Global Issues and Processes*, Elsevier Science Ltd, Oxford, ISBN: 0-08-043207-7, Chapter 124: 247-256
- Iwata, H., Tanabe, S., Mizuno, T. and Tatsukawa, R. (1995) High accumulation of toxic butyltins in marine mammals from Japanese coastal waters. *Environmental Science and Technology* 29: 2959-2962
- Kannan, K., Corsolini, S., Focardi, S., Tanabe, S. & Tatsukawa, R. (1996) Accumulation pattern of butyltin compounds in dolphin, tuna and shark collected from Italian coastal waters. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology* 31: 19-23
- Kawamura, Y., Machara, T., Suzuki, T. & Yamada, T. (2000) Determination of organotin compounds in kitchen utensils, food packages and toys by gas chromatography/atomic emission detection method. *Journal of the Food Hygienic Society of Japan* 41(4): 246-253
- Kergosien D.H. and Rice C.D. (1998). Macrophage secretory function is enhanced by low doses of tributyltin-oxide (TBTO), but not tributyltin-chloride (TBTCl). *Arc. Environ. Contam. Toxicol.* 34: 223-228
- Kumasaka, K., Miyazawa, M., Fujimaka, T., Tao, H., Ramaswamy, B.R., Nakazawa, H., Makino, T. & Satoh, S. (2002) Toxicity of the tributyltin compound on the testis in premature mice. *Journal of Reproduction and Development* 48(6): 591-597
- Matthews, G. (1996) *PVC: Production, Properties and Uses*. The Institute of Materials, London: 379 pp.
- O'Halloran, K., Ahokas, J.T. & Wright, P.F.A. (1998) Response of fish immune cells to *in vitro* organotin exposures. *Aquatic Toxicology* 40(2-3): 141-156
- Oeko-Test (2000). *Sondermüll im Haus. öko-test magazine* 5/2000: 74-79
- OSPAR (1998) *OSPAR Strategy with Regard to Hazardous Substances, OSPAR Convention for the Protection of the Marine Environment of the North-East Atlantic, OSPAR 98/14/1 Annex 34*
- OSPAR (2000) *OSPAR Background Document on Organic Tin Compounds, OSPAR Priority Substances Series, OSPAR Convention for the Protection of the Marine Environment of the North-East Atlantic, OSPAR Commission, London, ISBN 0-946956-56-1: 16pp.*
- Sadiki A-I. and Williams D.T. (1999). A study on organotin levels in Canadian drinking water distributed through PVC pipes. *Chemosphere* 38 (7): 1541-1548
- Santillo, D., Johnston, P. & Langston, W.J. (2001a) Tributyltin (TBT) antifoulants: a tale of ships, snails and imposex. Chapter 13 in: P. Harremoës, D. Gee, M. MacGarvin, A. Stirling, J. Keys, B. Wynne, S.G. Vaz [eds], *Late Lessons from Early Warnings: the precautionary principle 1896-2000*, European Environment Agency Environmental Issue Report No 22, Office for Official Publications of the European Communities, Luxembourg, ISBN 92-9167-323-4: 135-148
- Santillo, D., Johnston, P. & Brigden, K. (2001b) The presence of brominated flame retardants and organotin compounds in dusts collected from Parliament buildings from eight countries. *Greenpeace Research Laboratories Technical Note* 03/2001, March 2001: 24 pp.
- Takahashi, S., Mukai, H., Tanabe, S., Sakayama, K., Miyazaki, T. & Masuno, H. (1999) Butyltin residues in livers of humans and wild terrestrial mammals and in plastic products. *Environmental Pollution* 106: 213-218



## LES PHTHALATES (ESTERS DE PHTHALATE)

Les phtalates sont des esters non-halogénés dérivés d'acide phtalique qui servent à diverses applications industrielles et dans de nombreux produits de consommation. Certains sont commercialisés en tant que produits chimiques individuels, comme le fameux di(ethylhexyl) phtalate (DEHP), alors que d'autres sont des mélanges d'isomères complexes comprenant plusieurs composés différents aux structures chimiques similaires, comme le di-iso-nonyl phtalate (DINP) et le di-iso-decyl phtalate (DIDP). Comme ils sont utilisés en grandes quantités dans diverses applications, ils font aujourd'hui partie des substances chimiques produites par les humains les plus présentes dans l'environnement.

### USAGES

Les phtalates ont de nombreuses applications, qui dépendent de leur forme chimique précise, bien que la utilisation la plus courante soit de loin comme additif plastifiant (assouplissant) dans les plastiques flexibles, en particulier le PVC. Ils sont produits en très grandes quantités en Europe : près de 1 millions de tonnes par an, principalement pour utilisation au sein de l'UE. Les volumes de production estimés au milieu des années 1990 étaient ainsi de 595 000 tonnes de DEHP, 185 000 tonnes de DINP et environ 200 000 tonnes pour le DIDP (CSTEE 2001a, b 2002).

Pour ces trois principaux phtalates, plus de 90 % des utilisations sont des applications liées au PVC, dont des jouets, des revêtements de sol et autres matériaux de construction/décoration, intérieurs de voitures, câbles et équipement médicaux (voir par exemple <http://www.ecpi.org/plasticisers/index.html>). De applications moins importantes comprennent l'utilisation comme composant dans les encres, adhésifs, peintures, mastics et revêtements de surface. D'autres phtalates, dont le di(butyl) phtalate (DBP) et le di(ethyl) phtalate (DEP), ont également été utilisé comme additif pour le PVC, mais également comme solvants et fixateurs dans les parfums et comme ingrédient dans d'autres cosmétiques (Koo et al. 2002).

### DISTRIBUTION DANS L'ENVIRONNEMENT

Toutes les utilisations de phtalates, en particulier celles comme plastifiant pour le PVC, entraînent des pertes à grande échelle dans l'environnement (aussi bien en intérieur qu'en extérieur) au cours de la vie des produits, puis suite de leur élimination (ce qui représente des milliers de tonnes par an dans toute l'UE – CSTEE 2001a). En conséquence, les phtalates sont reconnus depuis longtemps comme l'un des contaminants environnementaux produits par l'homme les plus abondants et les plus répandus (Mayer et al. 1972). Les expositions aux phtalates sont donc multiples et continues.

Bien qu'une certaine décomposition soit possible, les phtalates sont considérés comme relativement persistants, en particulier dans les sols et les sédiments. Ils ont également la capacité intrinsèque de s'accumuler dans les tissus biologiques, bien qu'une exposition directe continue contribue également sans aucun doute à leur présence dans ces tissus. Les évaluations des risques effectuées dans le cadre du système de l'UE ont indiqué la distribution étendue des phtalates dans tous les compartiments de l'environnement (voir par exemple CSTEE 2001c, d). Un certain nombre d'études récentes ont indiqué la présence de phtalates et de leurs métabolites primaires dans le corps humain (Colon *et al.* 2000, Blount *et al.* 2000).

A cause de leur utilisation courante dans les matériaux de construction et les produits ménagers, les phtalates sont des contaminants courants de l'air domestique (Otale et al. 2001, Wilson et al. 2001). Ils ont également été signalés comme étant des composantes importantes des poussières domestiques, atteignant dans certains cas plus de 1 part par mille (1 g/kg) de la masse totale des poussières (Butte et Heinzow 2002).

### DANGEROUSITÉ

Comme indiqué ci-dessus, les phtalates sont relativement persistants dans l'environnement et sont bioaccumulables. D'importantes inquiétudes existent également quant à leur

toxicité pour la faune et les humains, bien que les niveaux de toxicité et mécanismes précis varient d'un composé à l'autre. Dans de nombreux cas, ce sont les métabolites de phthalates qui ont la plus grande toxicité (voir par exemple Dalgaard *et al.* 2001)

Les évaluations des risques effectuées par l'UE pour le DEHP, le DINP et le DIDP sont arrivées à la conclusion qu'il n'y avait pas de risques importants pour les organismes aquatiques ou terrestres. Pourtant, le Comité scientifique sur la toxicité, l'écotoxicité et l'environnement de (CSTEE 2001c, d) n'est pas d'accord avec cette conclusion en ce qui concerne l'environnement terrestre, notant qu'il y a très peu de preuves pour arriver à cette conclusion. Le CSTEE a également mis en évidence des faits préoccupants concernant l'empoisonnement secondaire, c'est-à-dire l'accumulation de phthalates dans la chaîne alimentaire.

En ce qui concerne les humains, bien qu'une exposition importante puisse également avoir lieu par le biais d'aliments contaminés, l'exposition directe aux phthalates à partir des produits de consommation et/ou des appareils médicaux est susceptible d'être très importante. L'exemple le plus connu est peut-être l'exposition des enfants aux phthalates présents dans les jouets de dentition en PVC souple (voir par exemple Stringer *et al.* 2000), qui font aujourd'hui l'objet de contrôles d'urgence en Europe (voir ci-dessous).

Le DEHP, qui reste le phthalate le plus utilisé en Europe, est une substance connue pour être toxique pour l'appareil reproductif, en perturbant le développement des testicules chez les mammifères, et est classé par l'UE comme « toxique pour la reproduction ». De fait, sa toxicité pour le système reproductif mâle en développement est reconnue depuis plus de 50 ans (Park *et al.* 2002). Sa toxicité observée est principalement due au composé MEHP, qui se forme dans le corps en tant que métabolite du DEHP, et semble avoir un impact sur de nombreux aspects du développement et du fonctionnement du foie, dont le métabolisme hormonal et les fonctions immunitaires (Dalgaard *et al.* 2001, Wong et Gill 2002). D'autres études récentes ont rappelé la toxicité pour la reproduction de plusieurs autres phthalates couramment utilisés, dont le butylbenzyl phthalate (BBP) et le dibutyl

phthalate (DBP) (Ema et Miyawaki 2002, Mylchreest *et al.* 2002). Comme pour les DEHP, le DBP est classé « toxique pour la reproduction » par l'UE.

La toxicité pour la reproduction est généralement considérée comme étant moins préoccupante chez les phthalates couramment utilisés DINP et DIDP, bien que Gray *et al.* (2000) aient rapporté des preuves de développement sexuel anormal chez des rats exposés au DINP. Avant ceci, Harris *et al.* (1997) ont rapporté la faible œstrogénicité de plusieurs phthalates, dont le DINP. D'autres inquiétudes pour le DINP et le DIDP sont liées à leurs effets toxiques sur le foie et les reins. Des recherches très récentes suggèrent des effets possibles sur le développement du sperme humain pour le DEP (Duty *et al.* 2003), un phthalate beaucoup utilisé pour les cosmétiques et les parfums et jusqu'à présent considéré comme ayant relativement peu d'importance toxicologique.

Dans l'environnement intérieur, des corrélations ont été rapportées entre des occurrences d'obstruction bronchiales (asthme) chez les enfants et l'abondance de matériaux contenant des phthalates dans le foyer (Oie *et al.* 1997).

#### ACTIONS DE CONTRÔLE ENTREPRISES

Pour le moment, la commercialisation et l'utilisation de phthalates est peu contrôlée malgré leur toxicité, les volumes utilisés et leur propension à migrer hors des produits au cours de leur vie. Parmi les mesures de contrôle existantes, la plus connue est sans doute l'interdiction d'urgence dans l'UE de six phthalates dans les jouets pour enfants conçus pour être mâchés (adopté pour la première fois en 1999, récemment renouvelé pour la 13<sup>ème</sup> fois, UE 2003). Bien que cette interdiction ait touché une importante voie d'exposition, on ne s'est pas encore occupé des expositions autres jouets et, bien entendu, des autres produits de consommation et des appareils médicaux en PVC.

Suite à la conclusion de l'évaluation des risques du DEHP effectuée par l'UE, il a été proposé d'interdire son utilisation dans certains appareils médicaux et de restreindre fortement ses autres utilisations, bien que ceci fasse encore l'objet de discussions au niveau européen. Aucune proposition formelle n'a

encore été faite pour les autres phtalates en cours d'évaluation dans l'UE.

En 1998, la rencontre ministérielle d'OSPAR a adopté un objectif d'arrêt des rejets, des émissions et des pertes de substances dangereuses dans l'environnement marin d'ici 2020 (l'objectif d'arrêt générationnel). Les phtalates DBP et DEHP ont été inclus sur la première liste des substances chimiques devant faire l'objet de mesures prioritaires en vue de cet

objectif (OSPAR 1998). Le DEHP est également proposé comme « substance dangereuse prioritaire » dans le cadre de la Directive cadre sur l'eau de l'UE (UE 2001), qui rendrait obligatoires des mesures pour empêcher les rejets dans l'eau d'ici 20 ans dans toute l'Europe, même si la décision d'effectuer ce classement fait encore l'objet de discussions.

Blount, B.C., Silva, M.J., Caudill, S.P., Needham, L.L., Pirkle, J.L., Sampson, E.J., Lucier, G.W., Jackson, R.J. & Brock, J.W. (2000) Levels of seven urinary phthalate metabolites in a human reference population. *Environmental Health Perspectives* 108(10): 979-982

Butte, W. & Heinzow, B. (2002) Pollutants in house dust as indicators of indoor contamination. *Reviews in Environmental Contamination and Toxicology* 175: 1-46.

Colon, I., Caro, D., Bourdony, C.J. & Rosario, O. (2000) Identification of phthalate esters in the serum of young Puerto Rican girls with premature breast development. *Environmental Health Perspectives* 108(9): 895-900

CSTEE (2001a) EC Scientific Committee on Toxicity, Ecotoxicity and the Environment, Opinion on the results of the Risk Assessment of: 1,2-Benzenedicarboxylic acid, di-C8-10-branched alkyl esters, C9-rich and di-"isononyl" phthalate - Report version (Human Health Effects): Final report, May 2001. Opinion expressed at the 27th CSTEE plenary meeting, Brussels, 30 October 2001: 7 pp.  
[http://europa.eu.int/comm/food/fs/sc/sct/out120\\_en.pdf](http://europa.eu.int/comm/food/fs/sc/sct/out120_en.pdf)

CSTEE (2001b) Scientific Committee on Toxicity, Ecotoxicity and the Environment (European Commission), Opinion on the results of the Risk Assessment of: 1,2-Benzenedicarboxylic acid di-C9-11-branched alkyl esters, C10-rich and di-"isodecyl"phthalate - Report version (Human health effects): Final report, May 2001. Opinion expressed at the 24th CSTEE plenary meeting, Brussels, 12 June 2001,

[http://europa.eu.int/comm/food/fs/sc/sct/out103\\_en.html](http://europa.eu.int/comm/food/fs/sc/sct/out103_en.html)

CSTEE (2001c) EC Scientific Committee on Toxicity, Ecotoxicity and the Environment, Opinion on the results of the Risk Assessment of: 1,2-Benzenedicarboxylic acid, di-C8-10-branched alkyl esters, C9-rich and di-"isononyl" phthalate - Report version (Environment): Final report, May 2001. Opinion expressed at the 27th CSTEE plenary meeting, Brussels, 30 October 2001: 5pp.

[http://europa.eu.int/comm/food/fs/sc/sct/out122\\_en.pdf](http://europa.eu.int/comm/food/fs/sc/sct/out122_en.pdf)

CSTEE (2001d) Scientific Committee on Toxicity, Ecotoxicity and the Environment (European Commission), Opinion on the results of the Risk Assessment of: 1,2-Benzenedicarboxylic acid di-C9-11-branched alkyl esters, C10-rich and di-"isodecyl"phthalate - Report version (Environment): Final report, May 2001. Opinion expressed at the 24th CSTEE plenary meeting, Brussels, 12 June 2001, 5 pp.

[http://europa.eu.int/comm/food/fs/sc/sct/out121\\_en.pdf](http://europa.eu.int/comm/food/fs/sc/sct/out121_en.pdf)

CSTEE (2002) EC Scientific Committee on Toxicity, Ecotoxicity and the Environment, Opinion on the results of the Risk Assessment of Bis (2-ethylhexyl) phthalate (DEHP). Report version: Human Health, September 2001. Opinion expressed at the 29th CSTEE plenary meeting, Brussels, 09 January 2002: 8 pp.

[http://europa.eu.int/comm/food/fs/sc/sct/out141\\_en.pdf](http://europa.eu.int/comm/food/fs/sc/sct/out141_en.pdf)

Dalgaard, M., Nellemann, C., Lam, H.R., Sorensen, I.K. & Ladefoged, O. (2001) The acute effects of mono(2-ethylhexyl)phthalate

- (MEHP) on testes of prepubertal Wistar rats. *Toxicology Letters* 122: 69-79
- Duty, S.M., Singh, N.P., Silva, M.J., Barr, D.B., Brock, J.W., Ryan, L., Herrick, R.F., Christiani, D.C. & Hauser, R. (2003) The relationship between environmental exposures to phthalates and DNA damage in human sperm using the neutral comet assay. *Environmental Health Perspectives* (in press)
- Ema, M. & Miyawaki, E. (2002) Effects on development of the reproductive system in male offspring of rats given butyl benzyl phthalate during late pregnancy. *Reproductive Toxicology* 16: 71-76
- EU (2001) Decision No 2455/2001/EC of the European Parliament and of the Council of 20 November 2001 establishing the list of priority substances in the field of water policy and amending Directive 2000/60/EC, Official Journal L 249 , 17/09/2002: 27-30
- EU (2003) Commission Decision 2003/113/EC amending Decision 1999/815/EC concerning measures prohibiting the placing on the market of toys and childcare articles intended to be placed in the mouth by children under three years of age made of soft PVC containing certain phthalates. Official Journal L 46, 20.2.2003: 27-28
- Gray, L.E., Ostby, J., Furr, J., Price, M., Veeramachaneni, D.N.R. & Parks, L. (2000) Perinatal exposure to the phthalates DEHP, BBP and DINP, but not DEP, DMP or DOTP, alters sexual differentiation of the male rat. *Toxicological Sciences* 58(2): 350-365
- Harris C.A., Henttu, P., Parker, M.G. & Sumpter, J.P. (1997) The estrogenic activity of phthalate esters in vitro *Environmental Health Perspectives* 105 (8): 802-811
- Koo J-W, Parham F, Kohn MC, Masten SA, Brock JW, Needham LL, *et al.* 2002. The association between biomarker-based exposure estimates for phthalates and demographic factors in a human reference population. *Environmental Health Perspectives* 110:405-410
- Mayer, F.L., Stalling, D.L. & Johnson, J.L. (1972) Phthalate esters as environmental contaminants. *Nature* 238: 411-413
- Mylchreest, E., Sar, M., Wallace, D.G. & Foster, P.M.D. (2002) Fetal testosterone insufficiency and abnormal proliferation of Leydig cells and gonocytes in rats exposed to di(n-butyl) phthalate. *Reproductive Toxicology* 16: 19-28
- Oie, L., Hersoug, L.G. & Madsen, J.O. (1997) Residential exposure to plasticizers and its possible role in the pathogenesis of asthma. *Environmental Health Perspectives* 105 (9): 972-978
- OSPAR (1998) OSPAR Strategy with Regard to Hazardous Substances, OSPAR Convention for the Protection of the Marine Environment of the North-East Atlantic, OSPAR 98/14/1 Annex 34
- Otake, T., Yoshinaga, J. & Yanagisawa, Y. (2001) Analysis of organic esters of plasticizer in indoor air by GC-MS and GC-FPD. *Environmental Science and Technology* 35(15): 3099-3102
- Park, J.D., Habeebu, S.S.M. & Klaassen, C.D. (2002) Testicular toxicity of di-(2-ethylhexyl)phthalate in young Sprague-Dawley rats. *Toxicology* 171: 105-115
- Stringer, R., Labunska, I, Santillo, D., Johnston, P., Siddorn, J. & Stephenson, A. (2000) Concentrations of phthalate esters and identification of other additives in PVC children's toys. *Environmental Science and Pollution Research* 7(1): 27-36
- Wilson, N.K., Chuang, J.C. & Lyu, C. (2001) Levelsof persistent organic pollutants in several child day care centres. *Journal of Exposure Analysis and Environmental Epidemiology* 11(6): 449-458
- Wong, J.S. & Gill, S.S. (2002) Gene expression changes induced in mouse liver by di(2-ethylhexyl) phthalate. *Toxicology and Applied Pharmacology* 185(3): 180-196

## LES PARAFFINES CHLOREES A CHAINE COURTE (SCCP)

Les paraffines chlorées sont des substances chimiques organochlorées produites simplement en faisant réagir du chlore gazeux avec des paraffines (hydrocarbures). Les paraffines chlorées à chaîne courte, ou SCCP, sont celles qui ont une chaîne principale de carbone composée de 10 à 13 atomes de carbone (C10-C13).

### USAGES

Les SCCP ont été utilisées pour une grande diversité d'applications dans l'industrie et la consommation, notamment comme composants d'huiles de coupe industrielles pour l'usinage des métaux, comme retardateurs de flamme ou additifs dans les caoutchoucs, les peintures et les mastics et comme apprêt pour les produits en cuir et certains textiles [OSPAR 2001]. Dans une certaine mesure, les SCCP ont servi à remplacer les PCB (biphényles polychlorés) quand ceux-ci ont été abandonnés.

En 1994, il a été estimé que 13 200 tonnes de SCCP ont été utilisées au total en Europe, dont plus de 70 % ont servi à des applications d'usinage des métaux. En 1998, cette quantité était descendue à un peu plus de 4 000 tonnes, principalement à cause d'une diminution de son utilisation principale [OSPAR 2001]. En 1994, il y avait deux installations de production en Europe, celle de Hoechst en Allemagne et celle de ICI au Royaume-Uni. Hoechst a depuis arrêté la production de SCCP (Koh et al. 2001).

Cependant, l'utilisation pour les peintures, les revêtements et les mastics (726 tonnes) et comme retardateur de flamme dans les caoutchoucs (638 tonnes) a moins diminué. De plus, les quantités utilisées dans divers autres secteurs non précisés ont augmenté, passant de 100 tonnes en 1994 à 648 tonnes en 1998 [OSPAR 2001]. Par ailleurs, les quantités importées dans l'UE sous forme d'additifs dans des produits finis sont tout bonnement inconnues, bien qu'elles puissent être importantes. Il semble y avoir également une importante réserve de SCCP dans les produits de consommation existants et dans les flux de déchets de l'UE, bien qu'une fois encore il n'existe que très peu d'informations. L'étude récente de Koh et al. (2002), qui ont repéré des SCCP dans les revêtements de fenêtre et de

porte de certains immeubles de bureaux en Allemagne, est l'un des rares travaux disponibles.

### DISTRIBUTION DANS L'ENVIRONNEMENT

Les SCCP sont des polluants organiques persistants ayant un fort potentiel d'accumulation dans les tissus biologiques. A cause de la façon dont ils sont produits, les SCCP sont un mélange complexe de substances chimiques individuelles, avec des longueurs de chaîne et des degrés de chloration qui varient. Cela rend leur étude très difficile et fait que les données sur leur distribution et leurs effets sont encore limitées.

On a néanmoins repéré des SCCP dans divers organismes d'eau douce (moules, poissons) ou de mer (poissons, phoques, baleines), dans des organismes d'animaux terrestres (lapins, élans, balbuzard) et dans le corps humain [Stern et Tomy 2000]. A cause de leur persistance et de leur capacité à être portées par les courants aériens, ce sont aujourd'hui des contaminants environnementaux très répandus, que l'on retrouve même dans des zones reculées de l'Arctique [Tomy *et al.* 1999]. Des recherches récentes ont montré que les SCCP sont également des contaminants courants dans l'air au Royaume-Uni [Peters *et al.* 2000], alors qu'auparavant les hypothèses utilisées pour l'évaluation des risques supposaient que toute concentration dans l'atmosphère serait « très faible ». Aucune chiffre sur les niveaux de SCCP dans les poussières domestiques n'a pu être trouvé dans les publication existantes.

### DANGEROUSITÉ

Les SCCP sont très toxiques pour les poissons et les autres organismes aquatiques, et se sont avérées causer des dommages au foie, aux reins et à la thyroïde de rats suite à une exposition à long terme en laboratoire [Farrar 2000]. Les informations sur les impacts à long terme des expositions à de faibles niveaux restent très limitées [Fisk et al. 1999]. A cause de leurs dangers connus, les SCCP ont été classées cancérigènes de « Catégorie 3 » (« risques possibles d'effets irréversibles ») et « Dangereux pour l'environnement » (« très toxique pour les organismes aquatiques, pouvant entraîner des effets défavorables sur le

long terme dans l'environnement aquatique ») dans la classification de la Directive européenne sur la classification et l'étiquetage. La principale voie d'exposition pour les humains est probablement l'alimentation, bien que l'importance des autres voies (entre autres le contact avec les produits, l'inhalation dans l'environnement domestique et le contact avec des poussières contaminées) n'a jamais été évaluée correctement.

#### ACTIONS DE CONTRÔLE ENTREPRISES

A cause des dangers qu'elles représentent pour l'environnement marin et d'eau douce, les SCCP sont depuis longtemps reconnues comme des substances devant faire l'objet de mesures prioritaires. En 1998, la réunion ministérielle d'OSPAR a adopté un objectif de cessation des rejets, émissions et pertes de toutes les substances dangereuses dans l'environnement marin d'ici 2020 (l'objectif générationnel) et a inclus les SCCP sur la première liste de substances nécessitant une action prioritaire vers cet objectif [OSPAR 1998]. Plus récemment, les SCCP ont été incluses dans la liste des « substances dangereuses prioritaires » de la Directive cadre sur l'eau, qui prévoit la mise en place de mesures pour empêcher les rejets dans l'eau dans les 20 ans qui viennent, dans toute l'Europe [UE 2001].

Pour ce qui est des mesures plus spécifiques, la Commission de Paris (qui fait aujourd'hui partie de la Commission OSPAR) a adopté en 1995 une interdiction d'utilisation des SCCP pour un grand nombre d'utilisations dans la région de l'Atlantique Nord-Est [PARCOM 1995], y compris dans les fluides d'usinage des métaux, comme additifs dans les peintures et mastics et

comme retardateurs de flamme dans les caoutchoucs et plastiques. Cette décision reste encore à être totalement appliquée.

Entre temps, l'UE a effectué une évaluation des risques des SCCP [CE 2000] et adopté des restrictions qui ne couvrent que leur utilisation en usinage des métaux et pour le traitement du cuir [UE 2002]. Près de la moitié de leurs utilisations actuelles dans l'UE, principalement dans des produits de consommation, restent non réglementées. Inévitablement, l'évaluation des risques s'est fondée sur des informations très limitées dans certains domaines, en particulier en ce qui concerne leur toxicité pour la faune des sédiments et des sols et pour les humains.

Courant 2003, l'UE va étudier la possibilité d'étendre l'interdiction de commercialisation et d'utilisation pour couvrir l'ensemble des utilisations. Jusqu'à présent toutefois, son Comité scientifique sur la toxicité, l'écotoxicité et l'environnement (CSTEE) a émis un avis défavorable à des contrôles supplémentaires, malgré les dangers que représentent les SCCP et malgré la reconnaissance par le CSTEE du fait que certaines utilisations des SCCP pourraient continuer de croître et que les importations sous forme de composants de produits pourraient être importantes. Il est évident que les restrictions européennes actuelles ne pourront pas permettre d'atteindre en totalité l'objectif OSPAR d'arrêt des rejets pour les SCCP, et permettront donc la perpétuation des rejets dans l'environnement de SCCP et des expositions à celles-ci à partir des divers produits en contenant.

- CSTEE (2002) EC Scientific Committee on Toxicity, Ecotoxicity and the Environment, Opinion on "Short-Chain Chlorinated Paraffins (SCCPs)", Follow-up of Directive 2002/45/EC (Opinion expressed at the 35th CSTEE plenary meeting, Brussels, 17 December 2002): 8 pp. [http://europa.eu.int/comm/food/fs/sc/sct/out174\\_en.pdf](http://europa.eu.int/comm/food/fs/sc/sct/out174_en.pdf)
- EC (2000) European Union Risk Assessment Report, alkanes, C<sub>10-13</sub>, chloro, 1<sup>st</sup> Priority List, Volume 4, EUR 19010 EN: 176 pp.
- EU (2001) Decision No 2455/2001/EC of the European Parliament and of the Council of 20 November 2001 establishing the list of priority substances in the field of water policy and amending Directive 2000/60/EC, Official Journal L 249 , 17/09/2002: 27-30
- EU (2002) Directive 2002/45/EC of the European Parliament and of the Council of 25 June 2002 amending for the twentieth time Council Directive 76/769/EEC relating to restrictions on the marketing and use of certain dangerous substances and preparations (short-chain chlorinated paraffins), Official Journal L 177, 06/07/2002: 21-22
- Farrar, D.G. (2000) Chlorinated paraffins – their toxicology and environmental effects and regulatory implications. *Organohalogen Compounds* 47: 129-130
- Fisk, A.T., Tomy, G.T. & Muir, D.C.G. (1999) Toxicity of C-10-, C-11-, C-12- and C-14-polychlorinated alkanes to Japanese medaka (*Oryzias latipes*) embryos. *Environmental Toxicology and Chemistry* 18(12): 2894-2902
- Koh, I.-O., Rotard, W. & Thiemann, W.H.-P. (2002) Analysis of chlorinated paraffins in cutting fluids and sealing materials by carbon skeleton reaction gas chromatography. *Chemosphere* 47: 219-227
- OSPAR (1998) OSPAR Strategy with Regard to Hazardous Substances, OSPAR Convention for the Protection of the Marine Environment of the North-East Atlantic, OSPAR 98/14/1 Annex 34
- OSPAR (2001) Short Chain Chlorinated Paraffins, OSPAR Convention for the Protection of the Marine Environment of the North-East Atlantic, OSPAR Commission, London, ISBN 0-946956-77-4: 16 pp.
- PARCOM (1995) PARCOM Decision 95/1 on the Phasing Out of Short Chained Chlorinated Paraffins, OSPAR Convention for the Protection of the Marine Environment of the North-East Atlantic, OSPAR Commission, London: 3 pp.
- Peters, A.J., Tomy, G.T., Jones, K.C., Coleman, P. & Stern, G.A. (2000) Occurrence of C<sub>10</sub>-C<sub>13</sub> polychlorinated *n*-alkanes in the atmosphere of the United Kingdom. *Atmospheric Environment* 34: 3085-3090
- Stern, G.A. & Tomy, G. (2000) An overview of the environmental levels and distribution of polychlorinated paraffins. *Organohalogen Compounds* 47: 135-138
- Tomy, G.T., Stern, G.A., Lockhart, W.L. & Muir, D.C.G. (1999) Occurrence of C-10-C-13 polychlorinated *n*-alkanes in Canadian mid-latitude and arctic lake sediments. *Environmental Science and Technology* 33(17): 2858-2863





## Annexe 3 : description des méthodes d'analyse employée

Cette annexe décrit précisément les méthodes et instruments d'analyse utilisés par les trois laboratoires participant.

ANALYSES QUANTITATIVE DES ESTERS DE PHTHALATE ET DES COMPOSÉS D'ALKYLPHÉNOLS, ET ANALYSE QUALITATIVE PAR CHROMATOGRAPHIE GAZEUSE-SPECTROMÉTRIE DE MASSE (GC-MS) DES AUTRES COMPOSÉS

Ces analyses ont été effectuées par les laboratoires LGC Ltd, à Teddington, au Royaume-Uni.

Environ 10g d'échantillon de poussières ont été extraits selon la méthode soxhlet pendant 2 heures et demi avec 200ml de dichlorométhane. On a saupoudré un standard interne deutéré sur la poussière pour faciliter la quantification. Pour chaque groupe de 10 échantillons, un essai à blanc et un test de récupération ont également été extraits. On a utilisé 10g de sable lavé à l'acide comme simulateur de matrice. A la fin de la période de chauffage, la chaleur a été coupée et le dichlorométhane concentré à moins de 50ml sous un courant d'azote sec à 30°C. L'extrait a été transféré quantitativement dans un flacon volumétrique de 50ml et ramené au volume. Tous les extraits ont été conservés à 4°C jusqu'à l'analyse.

On a analysé 5 mélanges contenant des standards internes avec le reste des échantillons. Les facteurs de réponse ont été calculés pour chaque déterminant spécifique. L'efficacité de la procédure a été vérifiée en calculant le taux de récupération de chaque analyte étudié par rapport au standard interne utilisé pour la quantification (phénanthrene-d10).

ANALYSE QUANTITATIVE DES RETARDATEURS DE FLAMMES BROMES ET DES PARAFFINES CHLOREES A CHAINE COURTE

Ces analyses ont été effectuées par les laboratoires RIVO (Institut Néerlandais d'étude des pêcheries), à Ijmuiden, aux Pays-Bas.

Les échantillons de poussières ont été extraits selon la méthode Soxhlet pendant 12 heures avec un mélange hexane:acétone (3:1, v/v, 70°C). Après l'ajout de standards internes

(2,3,5,6,3'-pentachlorobiphényle (CB112) et <sup>13</sup>C BDE-209), l'extrait a été concentré sur un évaporateur rotatif. De l'eau déminéralisée (pH=2) a ensuite été ajoutée et la couche organique recueillie. On a ensuite extrait l'eau deux fois avec de l'isooctane. Les extraits organiques ont été mélangés et concentrés dans 2 ml de dichlorométhane.

Les extraits ont été nettoyés par chromatographie par perméation (CPG) sur deux colonnes de gel (100 x 25 mm, diamètre de pore 10 µm) Polymer Laboratories (PL), en utilisant du dichlorométhane à 10 ml/min. La fraction recueillie correspond à un temps d'élution de 18 à 23 minutes. La fraction a été concentrée sous azote, dissoute dans de l'isooctane puis purifiée par agitation avec de l'acide sulfurique. Enfin, le mélange pentane/isooctane a été concentré sous azote à 2 ml (isooctane) et élué sur une colonne de gel de silice (2% d'eau) avec 11 ml d'isooctane et 10ml de diéthyléther à 20% dans l'isooctane. Les deux fractions ont été concentrées à 1 ml (isooctane).

L'analyse finale a été effectuée par couplage chromatographie gazeuse-spectrométrie de masse (GC-MS), en utilisant une ionisation négative par capture d'électrons (ECNI) comme technique d'ionisation avec du méthane comme gaz réactif. Une colonne de 50 m CP de Sil 8 (diamètre 0,25 mm, épaisseur de film 0,25 µm) a été utilisée pour la mesure de tous les composés bromés retardateurs de flammes recherchés (à une exception près) et les paraffines chlorées à chaîne courte (SCCP). Le retardateur de flammes décabromodiphényl éther (BDE-209) a été analysé séparément en utilisant une colonne de 15 m DB-5 (diamètre de 0,25 mm, épaisseur de film de 0,2 µm). L'identification des pics est basée sur le temps de rétention des diphényl éther polybromés (tous les PBDE sauf le BDE-209) et la reconnaissance des ions bromure Br<sup>-</sup> (m/z 79/81). Des ions spécifiques ont été utilisés pour le BDE-209, l'hexabromocyclododécane (HBCD) et les SCCP.

Dans chaque échantillon, on a trouvé des concentrations des composés/congénères suivants :

- Diphényles éthers polybromés (PBDE) : tri- (BDE-28), tétra- (BDE-47, 66, 71, 75, 77), penta- (BDE-85, 99, 100, 119), hexa- (BDE-138, 153, 154), hepta- (BDE-190) et déca- (BDE-209).
- Biphényles polybromés (PBB) : di- (BB-15), tétra- (BB-49, 52), penta- (BB-101), hexa- (BB-153, 155) et déca- (BB-209).
- Hexabromocyclododécane (HBCD)
- Tetrabromobisphénol-A (TBBPA), ainsi que ses dérivés avec du méthyle.

La limite de détection a varié selon les échantillons et selon les congénères, en fonction, respectivement, de la taille des échantillons ou de la sensibilité des méthodes/instruments.

La limite de détermination a été alignée sur la plus faible concentration de la courbe de calibration multi-niveaux (6 points) dans chaque cas. La quantification des SCCP est assez difficile à cause du mélange très complexe de composés et, par conséquent, n'est que semi-quantitative.

#### ANALYSE QUANTITATIVE DES COMPOSÉS ORGANOÉTAINS

Ces analyses ont été effectuées par les laboratoires GALAB, à Geestacht, en Allemagne.

Tous les échantillons ont été tamisés une fois de plus pour écarter toutes les particules d'une dimension supérieure à 65 µm (0,065 mm) avant l'analyse. Les composés organoétains ont été extraits à l'aide d'un mélange de méthanol et d'hexane (avec du NaBEt<sub>4</sub>) et quantifiés par chromatographie gazeuse-détection d'émission atomique (GC/AED), selon des méthodes agréées DIN EN 17025. Les concentrations de composés suivantes ont été mesurées dans chaque échantillon :

- Butylétains : mono-, di-, tri-, et tetrabutylétain (respectivement MBT, DBT, TBT et TeBT)
- Octylétains : mono- et di- octylétain (MOT et DOT, respectivement)
- Tricyclohexyltin (TCHT)
- Triphénylétain (TPT)

Les limites de détermination pour tous les composés organoétains était de 1 µg de cation d'étain par kg de matière sèche à chaque fois.



## **Greenpeace european unit**

Chaussée de Haecht/  
Haachtsesteenweg 159  
B -1030 Brussels  
t +32 2 274 02 00  
f +32 2 201 19 50  
e [info@be.greenpeace.org](mailto:info@be.greenpeace.org)

## **Greenpeace Central**

### **€ eastern europe**

siebenbrunnengasse 44  
A - 1050 Vienna  
t +43 1 545 4580  
f +43 1 545 4580-98  
e [office@greenpeace.at](mailto:office@greenpeace.at)

## **Greenpeace France**

22 rue des rasselins  
75020 Paris  
t +33 1 44 64 02 02  
f +33 1 44 64 02 00  
e [contact@diala.greenpeace.org](mailto:contact@diala.greenpeace.org)

## **Greenpeace Germany**

Grosse Elbstrasse 39  
D-22767 Hamburg  
t +49 40 306 180  
f +49 40 306 18100  
e [mail@greenpeace.de](mailto:mail@greenpeace.de)

## **Greenpeace Italy**

Viale Manlio Gelsomini 28  
00153 Rome  
t +39 06 572 9991  
f +39 06 578 3531  
e [staff@greenpeace.it](mailto:staff@greenpeace.it)

## **Greenpeace Spain**

San Bernardo 107  
28015 Madrid  
t +34 91 444 14 00  
f +34 91 447 15 98  
e [greenpeace.spain@diala.greenpeace.org](mailto:greenpeace.spain@diala.greenpeace.org)

## **Greenpeace UK**

Cannonbury Villas  
London N1 2PN  
t +44 207 865 8100  
f +44 207 865 8200  
e [info@uk.greenpeace.org](mailto:info@uk.greenpeace.org)