

Les rencontres scientifiques de l'Anses

Restitution du Programme national de
recherche environnement-santé-travail

Des troubles musculo-squelettiques aux nanoparticules : risques d'aujourd'hui en santé environnement travail

Maison internationale Paris 14^e

Mardi 10 mai 2011





Les rencontres scientifiques de l'Anses

Restitution du Programme national de
recherche environnement-santé-travail

Evaluation de l'impact toxicologique de la pollution particulaire (PM 2.5) à Dunkerque : études sous influences industrielle, non industrielle et rurale

1^{ère} partie : prélèvement et caractérisation physique, chimique et biologique

Fabrice Cazier, Dorothee Dewaele, Habiba Nouali, Agnès Delbende,
Saad Bouhsina, Dominique Courcot, Anthony Verdin, Guillaume Garçon,
Pirouz Shirali (Coordinateur)
Université Lille Nord de France
Université du Littoral Côte d'Opale



INTRODUCTION

LES AXES DE TRAVAIL :

- 1) Déterminer la composition des PM_{2,5} prélevées sous différentes influences
- 2) Evaluer le rôle des particules dans le mécanisme d'action sur des cellules pulmonaires

LES PARTENAIRES :

- Unité de Chimie Environnementale et Interaction sur le Vivant (UCEIV - ULCO)
Equipe « Caractérisation physique et chimique des aérosols »
Equipe « Toxicologie Industrielle et Environnementale »,
- Centre Commun de Mesures (ULCO)
- Groupe Régional d'Etudes sur le CANcer (Greca) (Université de Caen)
- Groupe Hospitalier de l'Institut Catholique de Lille (GHICL)

Zone d'étude

Dunkerque :

- située sur la façade littorale du Nord Pas de Calais
- agglomération de 220 000 habitants
- 2 axes autoroutiers majeurs (A 16 et A 25)

Une des zones industrielles les plus importantes de France :

- divers secteurs industriels : pétrochimie, sidérurgie, métallurgie, cimenterie
- 13 sites SEVESO
- 1 centrale nucléaire



site de référence pour l'étude de la pollution atmosphérique de proximité et de ses impacts sur la santé.

Méthodologie de notre étude

Réalisation de **3 types de prélèvements** :

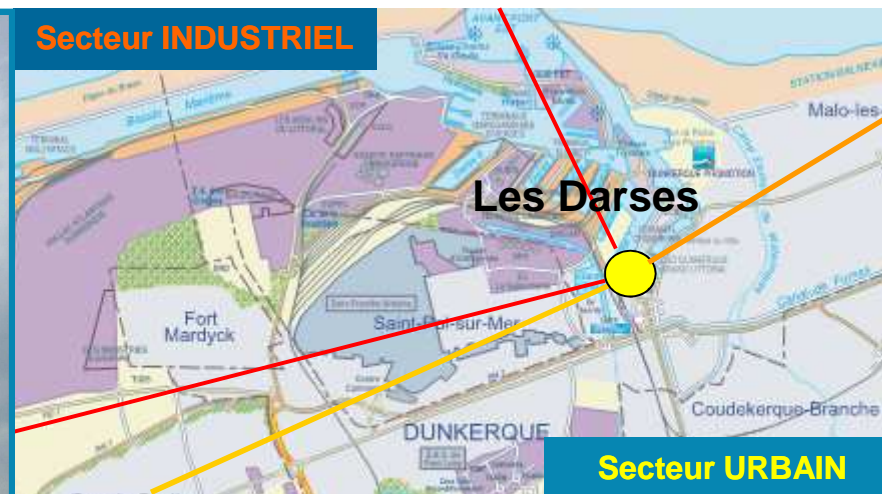
- Prélèvement « Industrie » (I), prélevé en milieu urbain mais asservi à une direction de vent provenant du secteur industriel,
- Prélèvement « Urbain » (U), prélevé en parallèle sur le même site, en milieu urbain mais asservi à une direction de vent provenant du secteur urbain, afin d'apprécier, par défaut, les retombées sous le vent issu de secteurs non industriels (i.e. pollution du fond urbain),
- Prélèvement « Rural » (R), prélevé en milieu rural, sans asservissement (i.e. pollution du fond rural).

Prélèvement pendant **2 saisons** différentes (printemps/été 2008 *versus* automne/hiver 2008/2009):

 6 aérosols atmosphériques particuliers

LES PRELEVEMENTS SUR LE SITE de DUNKERQUE

1^{er} site de prélèvement à Dunkerque (site situé à l'interface entre les zones urbaine et industrielle)



Double dispositif d'impaction en cascades (Sierra Instruments, Inc., USA) , asservi en fonction des conditions de vent

LE PRELEVEMENT

SUR LE SITE DE RUBROUCK

2nd site en zone rurale : Rubrouck, localisé dans les terres à près de 30 km de Dunkerque)



- Dispositif simple d'impaction en cascades
- Prélèvement sous tous les secteurs de vent

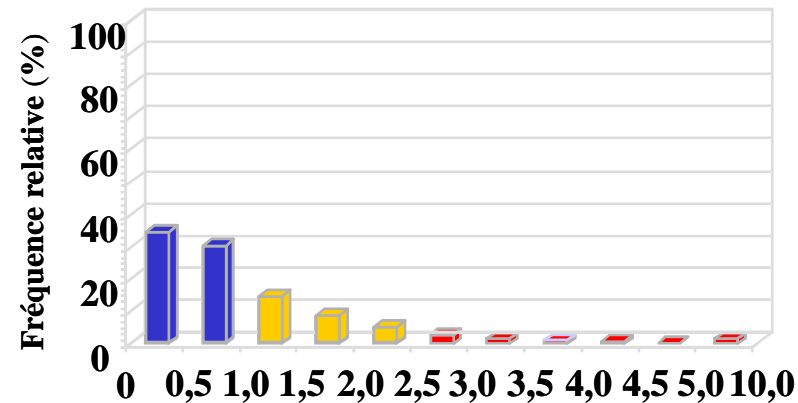
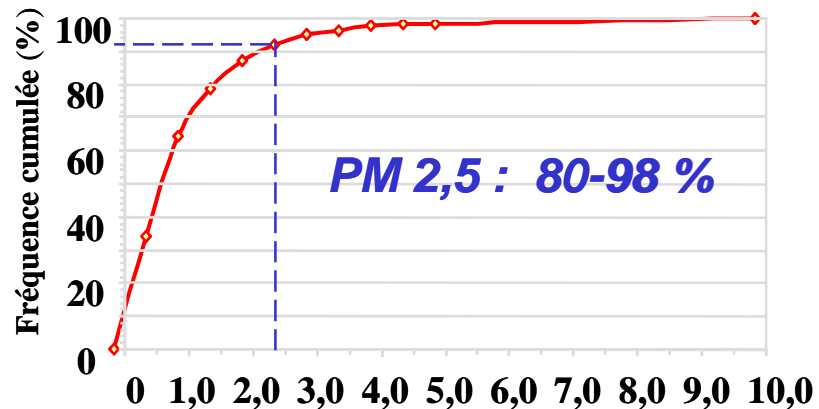
Echantillonnage

Prélèvement sur impacteur en cascade (coupure à 2,5 μm)

Séchage, collecte

Stockage à -18 °C

• Granulométrie



Diamètre aérodynamique équivalent des particules (μm)

LA CARACTERISATION PHYSICO-CHIMIQUE (1ere partie)

- Granulométrie
- **Surface spécifique**
- Composés chimiques inorganiques (**métaux**, ions majeurs)
- Composés chimiques organiques (composés organiques adsorbés, **paraffines, hydrocarbures aromatiques polycycliques, dioxines, furannes, PCB dl**)

LA RECHERCHE DES MECANISMES D'ACTION (2 ème partie, exposée par Guillaume Garçon)

- Modèles de cellules pulmonaires
- Cytotoxicité
- Stress oxydant
- Inflammation
- Activation métabolique
- Génotoxicité

Principaux Résultats et discussion



Particularités de chaque site

Comparaison inter-sites et variations saisonnières

Périodes de prélèvements et dénomination des six aérosols atmosphériques particuliers prélevés dans la région de Dunkerque en fonction des influences et des campagnes

Influence	Campagne 1 : Printemps/Été 2008		Campagne 2 : Automne 2008/Hiver 2009	
	Dates	Nom	Dates	Nom
RURALE	07/02/08 - 24/07/08	R1	17/10/08 - 12/05/09	R2
URBAINE	13/02/08 - 13/08/08	U1	14/10/08 - 23/03/09	U2
INDUSTRIELLE	05/04/08 - 26/09/08	I1	14/10/08 - 23/03/09	I2

Analyse pondérale des prélèvements

	Prélèvement	Volume prélevé (m ³)	Masse de particules collectées (mg)	Concentration µg /m ³
Campagne 1 : printemps été 2008	U1	62 964	623,4	9,9
	I1	26 980	310,3	11,5
	R1	129 024	357,1	2,8
Campagne 2 : Automne hiver 2008 – 2009	U2	57 875	745,8	12,9
	I2	33 246	512,55	15,4
	R2	245 304	464,35	1,9

Teneurs atmosphériques urbaines en PM2.5 décrites dans la littérature

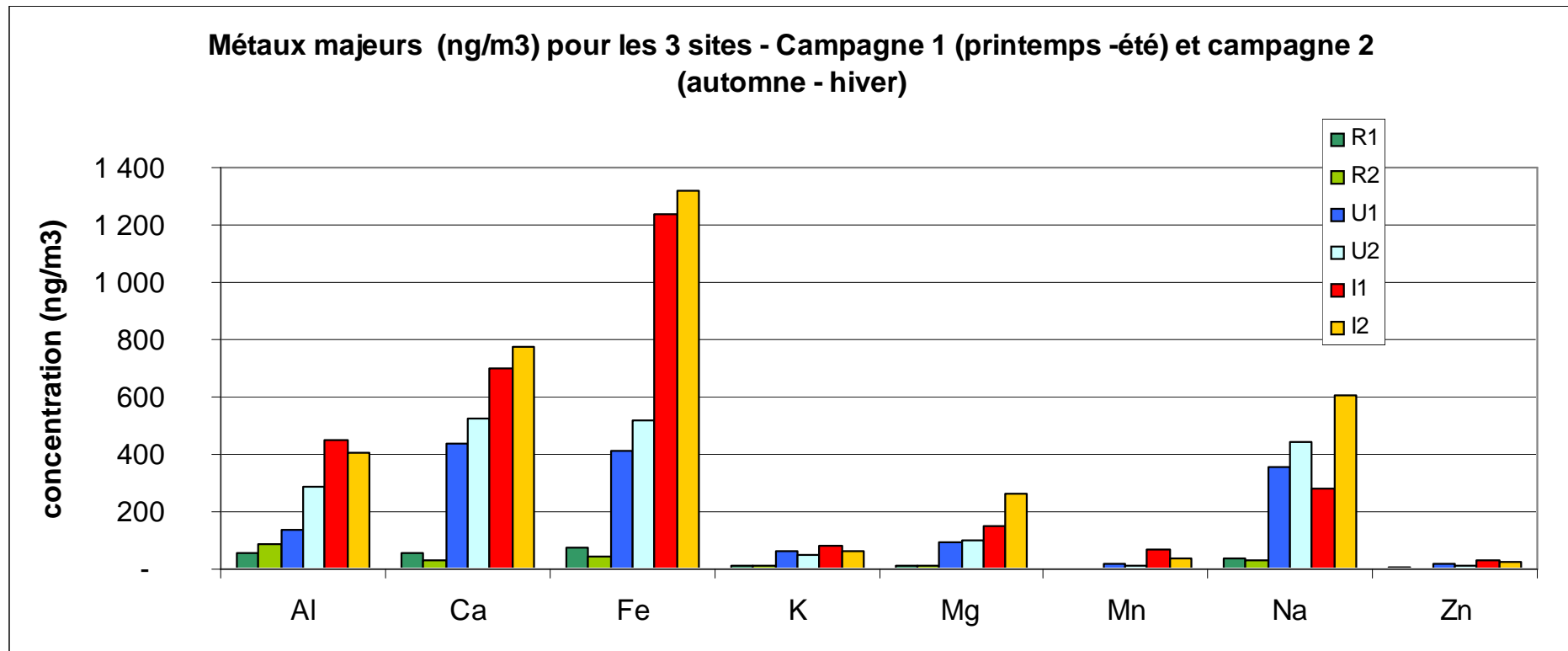
Référence	Lieu	Teneur
Sillanpää (2006)	Milieu urbain - 6 villes européennes (teneurs moyennes été – hiver) <ul style="list-style-type: none"> - Duisburg (Allemagne) - Prague (République Tchèque) - Amsterdam (Pays-Bas) - Helsinki (Finlande) - Barcelone (Espagne) - Athènes (Grèce) 	14,7 µg/m ³ 29,6 µg/m ³ 25,4 µg/m ³ 8,3 µg/m ³ 20,0 µg/m ³ 25,3 µg/m ³
Etude AFSSE (2005)	76 zones urbaines françaises (estimation pour 2002)	12 µg/m ³
Mariani (2007)	site côtier de la zone métropolitaine de Rio de Janeiro	17 µg/m ³

Aire spécifique des échantillons collectés

Aire spécifique (m ² /g)	Campagne printemps été 2008			Campagne automne hiver 2008- 2009		
	rural	urbain	industrie	rural	urbain	industrie
	2,8	3,5	5,2	5,3	5,7	6,2

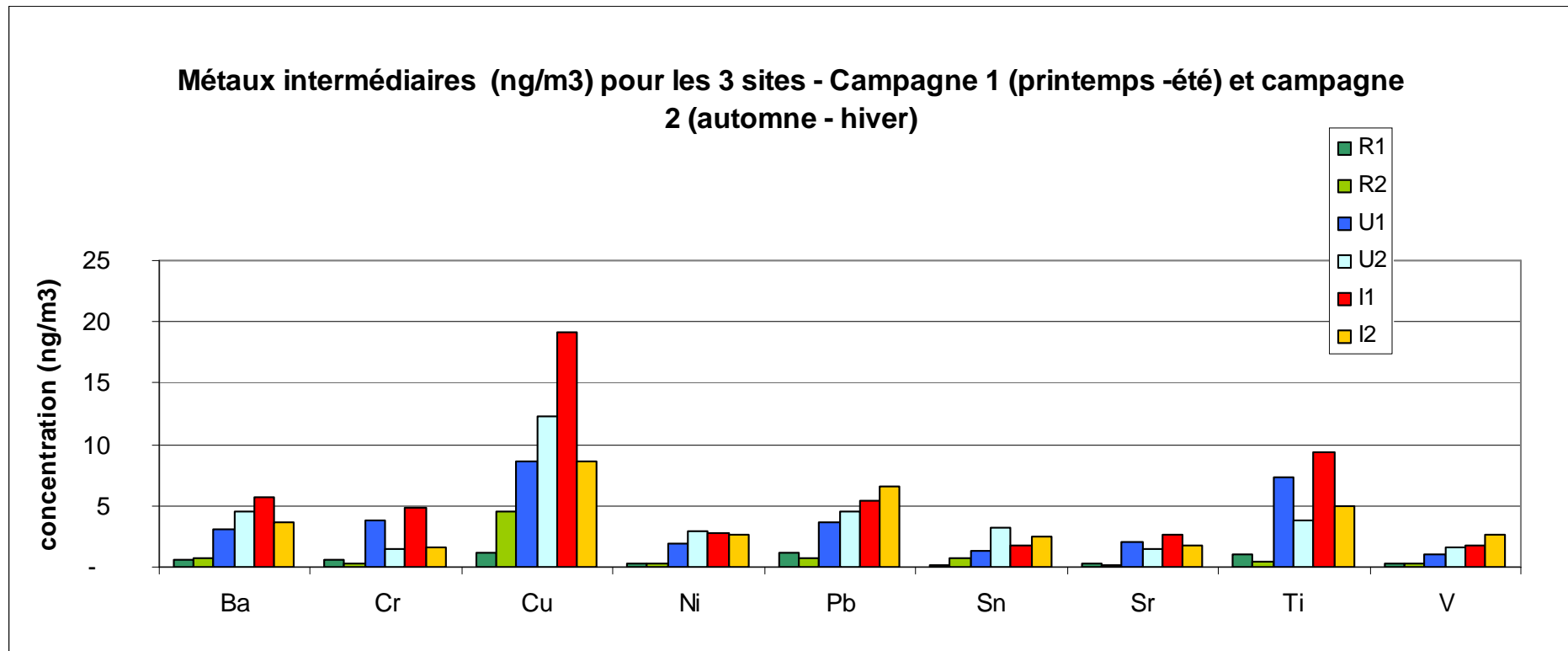
Concentrations en métaux (ng/m³) dans les aérosols particulaires prélevés sous influence rurale, urbaine ou industrielle

Gamme >100 ng/m³



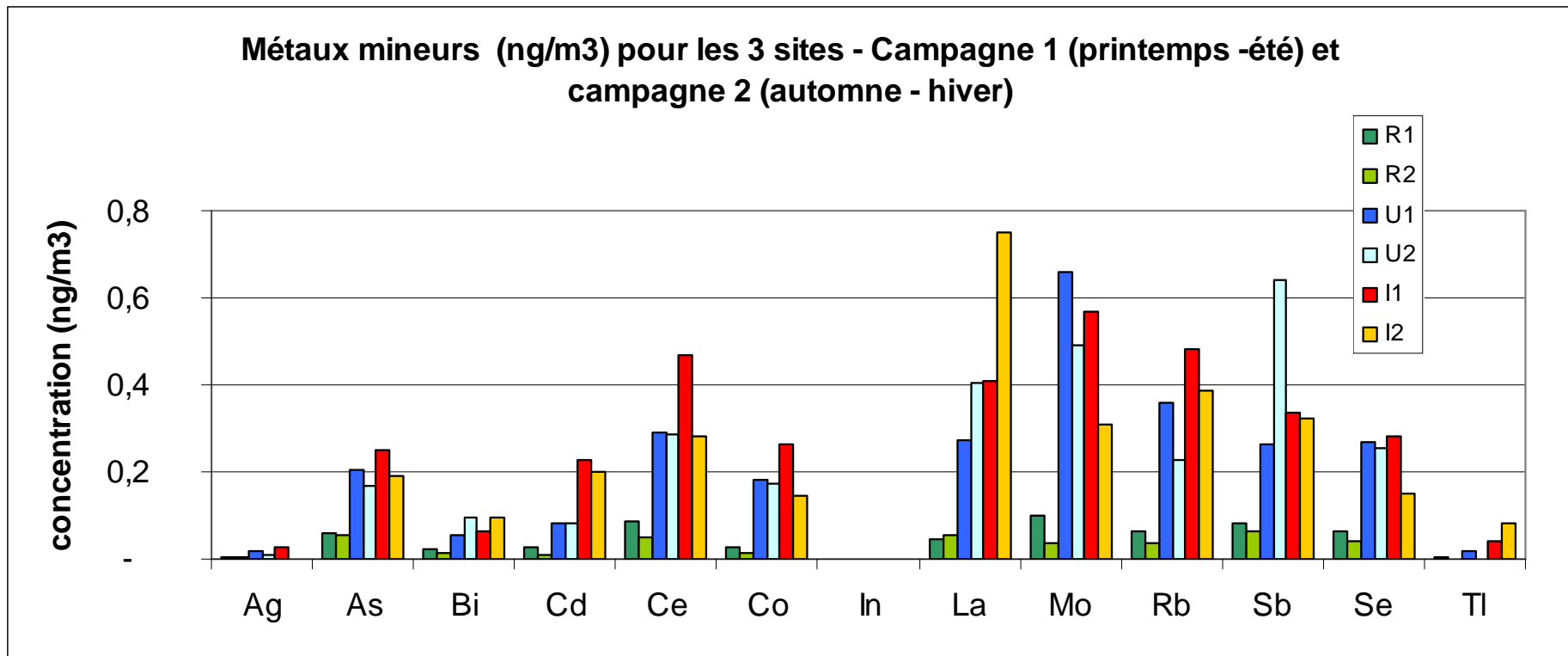
Concentrations en métaux dans les aérosols particuliers

Gamme 1 à 100 ng/m³



Concentrations en métaux dans les aérosols particuliers

Gamme 1 à 100 ng/m³



Concentrations en métaux dans les aérosols particuliers

Pour chacune des campagnes d'échantillonnage, les teneurs en métaux suivent un ordre décroissant $I > U > R$.

Pour les éléments les plus abondants cela est vérifié dans tous les cas sauf pour le sodium ($U1 > I1$) ;

Pour les éléments intermédiaires quelques exceptions sont à relever dans la campagne hiver : on a $U2 > I2 > R2$ pour Ba, Cu, Ni et Sn (l'inversion de rapport sur le cuivre est très marquée).

Hormis les éléments solubles (Ca, K, Mg, Na), les éléments majeurs dans les trois prélèvements sont Al, Fe, Mn et Zn.

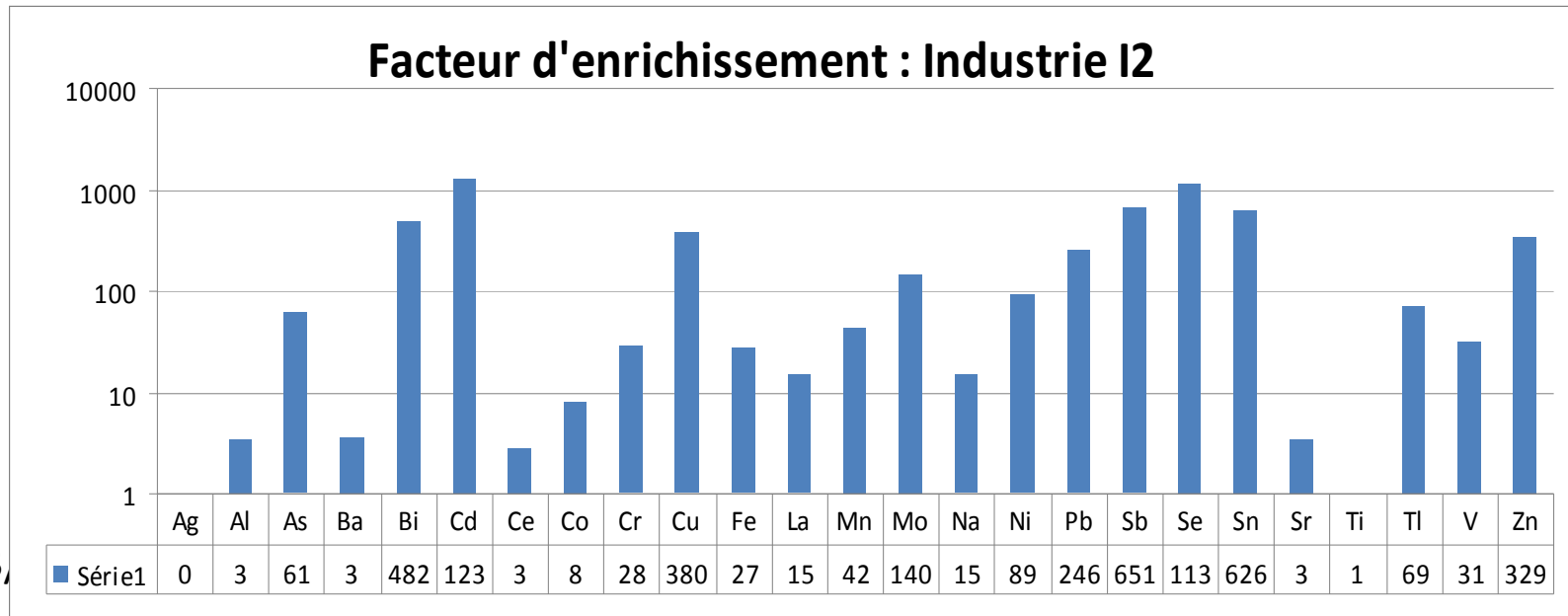
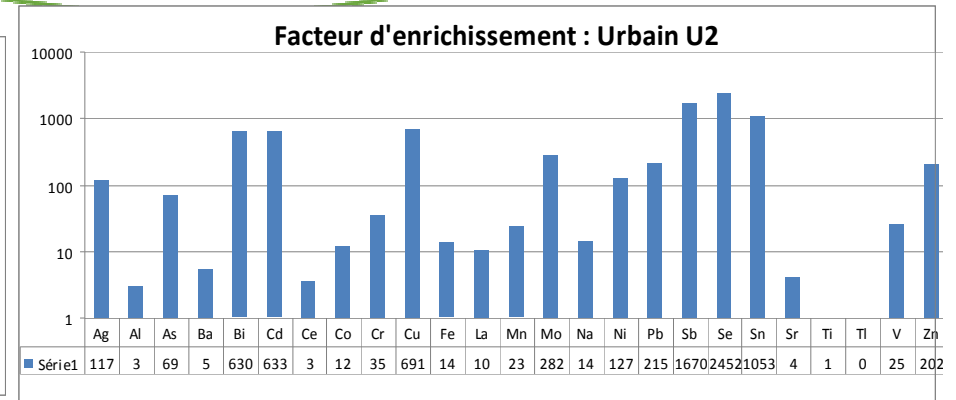
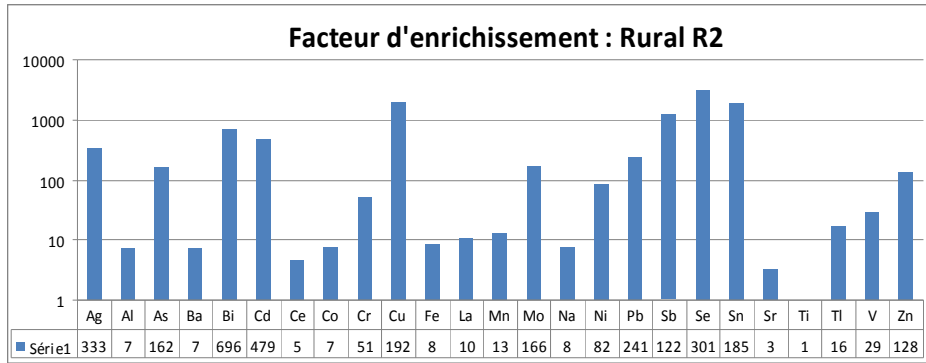
L'examen des rapports par secteur (U/I ; U/R ; I/R) permet de suggérer que l'aluminium aurait une origine mixte (terrigène et industrielle) : attribution cohérente avec les données d'analyse individuelle par MEB-EDX.

Par contre, les ratios observés entre secteurs montrent que Fe, Mn ont une origine industrielle marquée. Cette tendance est valable dans une proportion moindre pour Zn.

Remarques confirmées par l'étude des facteurs d'enrichissement ($F.E. = (X/Ti)_{atm} / (X/Ti)_{ref}$)



Facteurs d'enrichissement (FE)



Valeurs de FE comprises entre 1 et 10 :

Ba, Ce, Co, La, Na et Sr présentent globalement une origine naturelle.

Le facteur d'enrichissement de l'élément Fe est supérieur à 10, uniquement lorsque le site de Dunkerque est exposé aux influences du secteur industriel, et en particulier du site sidérurgique.

Origines anthropiques significatives pour chacun des sites et pour les deux campagnes d'échantillonnage :

10 < FE < 100 : As, Cr, Mn, Ni, Tl et V

100 < FE < 1000 : Ag, Bi, Cd, Cu, Mo, Pb, Sb, Se, Sn et Zn

Comparaison des valeurs de FE entre l'échantillon industriel et urbain :

- mise en évidence d'une origine industrielle prononcée des éléments Cd, Cu et Mn (émis majoritairement par les installations de la sidérurgie et du site de production d'alliages de ferromanganèse, tous deux implantés dans la zone industrielle)
- les autres éléments présentant des valeurs de FE élevées présentent certes une origine industrielle, mais leur émission par des sources domestiques (chauffage) ou par le trafic ne peut être négligée.

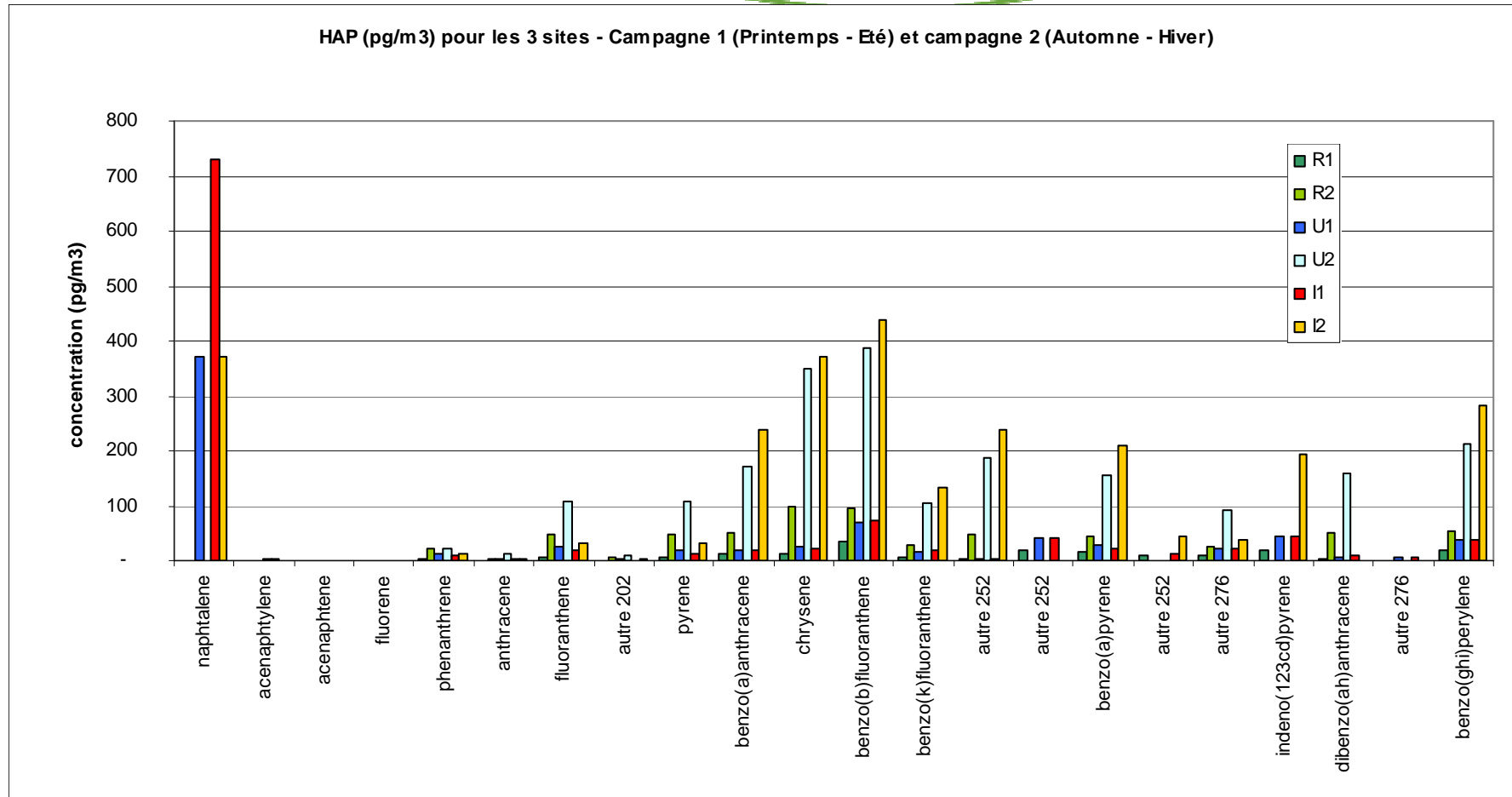
Exemple :

- Zn, l'influence sidérurgique sur le prélèvement industrie visible mais moins marquée que pour Fe et Mn.

Le Zn peut également provenir de l'abrasion des pneus dans des zones de trafic routier important (Huang et al, 1994 – Huston et al, 2009).

- Cr provenant de l'usure des équipements de freinage des véhicules.

Concentrations en HAP (pg/m³) présents dans les particules prélevées



Concentrations en HAP (pg/m³) présents dans les particules prélevées.

Paraffines et HAPs : teneurs bien plus importantes dans la campagne 2 (automne –hiver) que dans la campagne 1 (printemps-été) et ce pour tous les sites.

HAP : profils des trois échantillons d'un site à l'autre, voire d'une saison à l'autre assez similaires en particulier pour les HAP les plus lourds.

Niveaux de concentration en HAP présents sur les particules prélevées sous influence urbano-industrielle plus élevés que ceux déterminés pour les particules prélevées sous influence rurale (I > U > R) et ce pour les 2 campagnes.

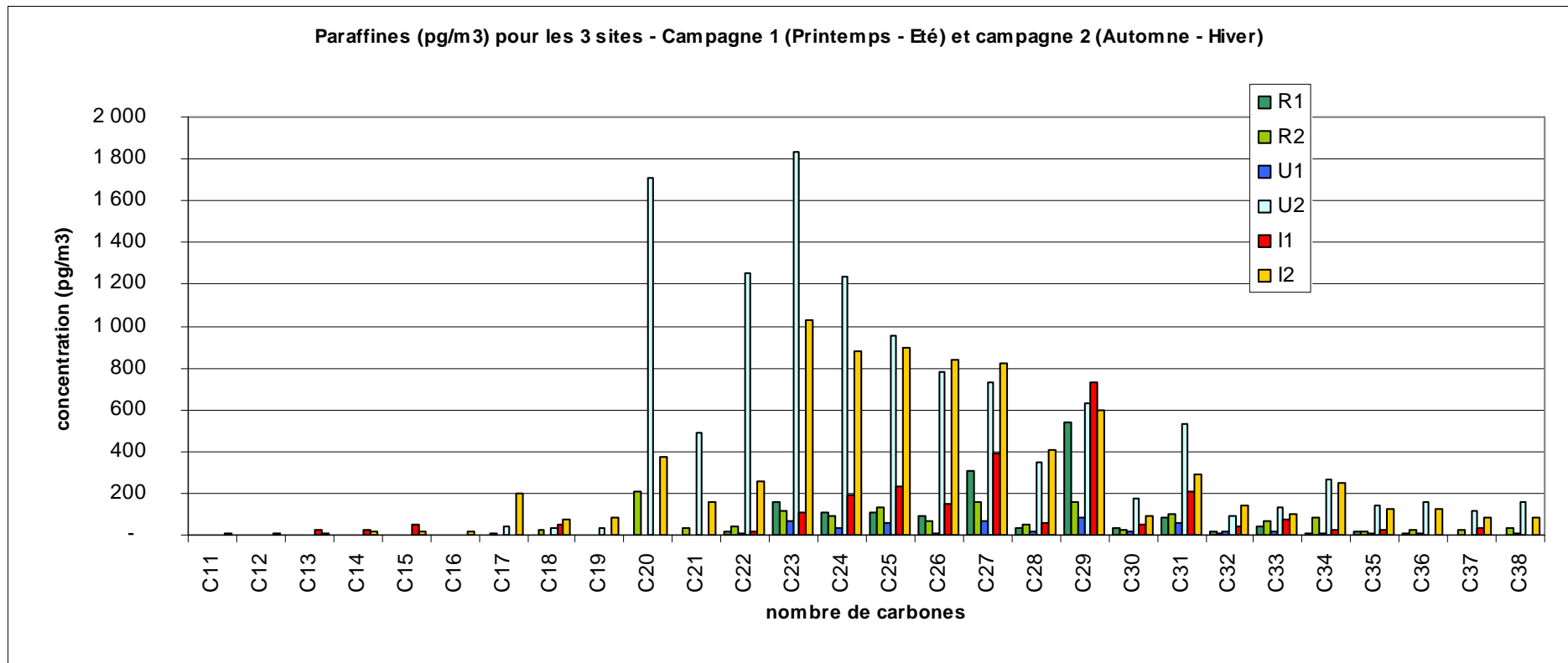
Evolution saisonnière :

- concentration totale en HAP multipliée par 2 à 3 entre l'été et l'hiver.
- profil cohérent avec les sources attendues et conforme aux observations de la littérature (Li, 2009 ; Shimmo, 2002) qui montrent que les concentrations en HAP particulaires varient inversement avec la température (concentrations plus élevées pendant les mois froids que pendant les mois chauds).

Composés majoritaires :

- campagne printemps-été : benzo(b)fluoranthène et indéno(123cd)pyrène
- campagne automne-hiver : chrysène et benzo(b)fluoranthène (Chr < BbF).

Concentrations en Paraffines (pg/m³) présentes dans les particules prélevées.



Concentrations en Paraffines (pg/m³) présentes dans les particules prélevées.

Variabilité saisonnière des paraffines nettement plus marquée que celle des HAP :

- campagne printemps - été : $I > R > U$
- campagne automne – hiver : $U > I > R$

Teneur totale en paraffines des échantillons :

- concentrations en hiver pouvant être jusqu'à 20 fois plus importantes qu'en été (ex : ratio U2/U1)
- les profils évoluent avec un déplacement de la longueur de chaîne (C_n) de la paraffine majoritaire.
- on observe des paraffines ayant de plus courtes chaînes lors de la campagne automne – hiver :
 - campagne printemps - été* : R et U: C22 à C38
I : C13 à C37 avec Concentrations maximales pour les C27-C29
 - campagne automne – hiver* : R et U: C17 à C38
I : C11 à C38 avec Concentrations maximales déplacées vers les C20 à C23
(C20 à C27 : $R < I < U$; C27 à C29 : $R < U < I$)

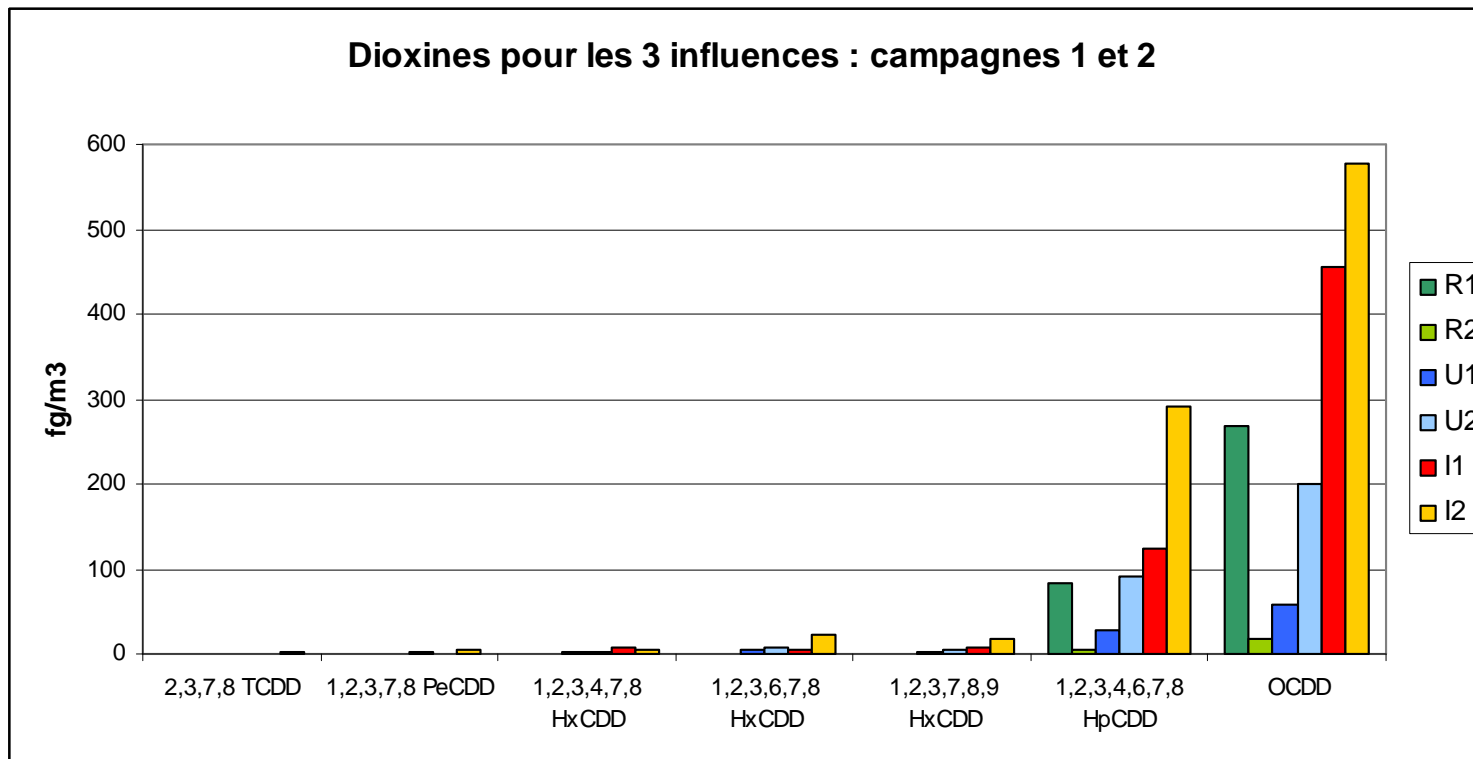
Campagne printemps-été :

- concentrations élevées en paraffines du prélèvement rural liées aux sources biogéniques (paraffines de C23 à C31) secrétées en particulier au niveau des feuilles des arbres (Aboul-Kassim, 1995 ; Mitra, 2002).
- Concentration en paraffines stable en rural à 1 500 pg/m³ été comme hiver : la diminution de la source biogénique est probablement compensée par des apports liés au chauffage, ce qui semble confirmé par l'apparition de paraffines à plus courte chaîne (Mitra, 2002)

Campagne automne – hiver :

- émissions urbaines liées au chauffage urbain deviennent prépondérantes et ce même par rapport à l'échantillon industrie, ce qui est confirmé par l'apparition de paraffines à plus courte chaîne.
- concentration en urbain multipliée par plus de 20 en hiver par rapport à l'été alors que dans le même temps les concentrations en industrie ne sont multipliées que par 3.
- paraffines C23 à C29 prédominantes sous l'influence de l'industrie et ceci en particulier pour I2. Il s'agit très probablement d'émissions liées aux activités pétrochimiques (Simoneit, 2002) et/ou aux apports du chauffage domestique (fioul).

Concentrations en PolyChloro-*p*-DibenzoDioxines (Dioxines) (fg/m³) des particules prélevées.



PolyChloro-*p*-DibenzoDioxines (PCDD) :

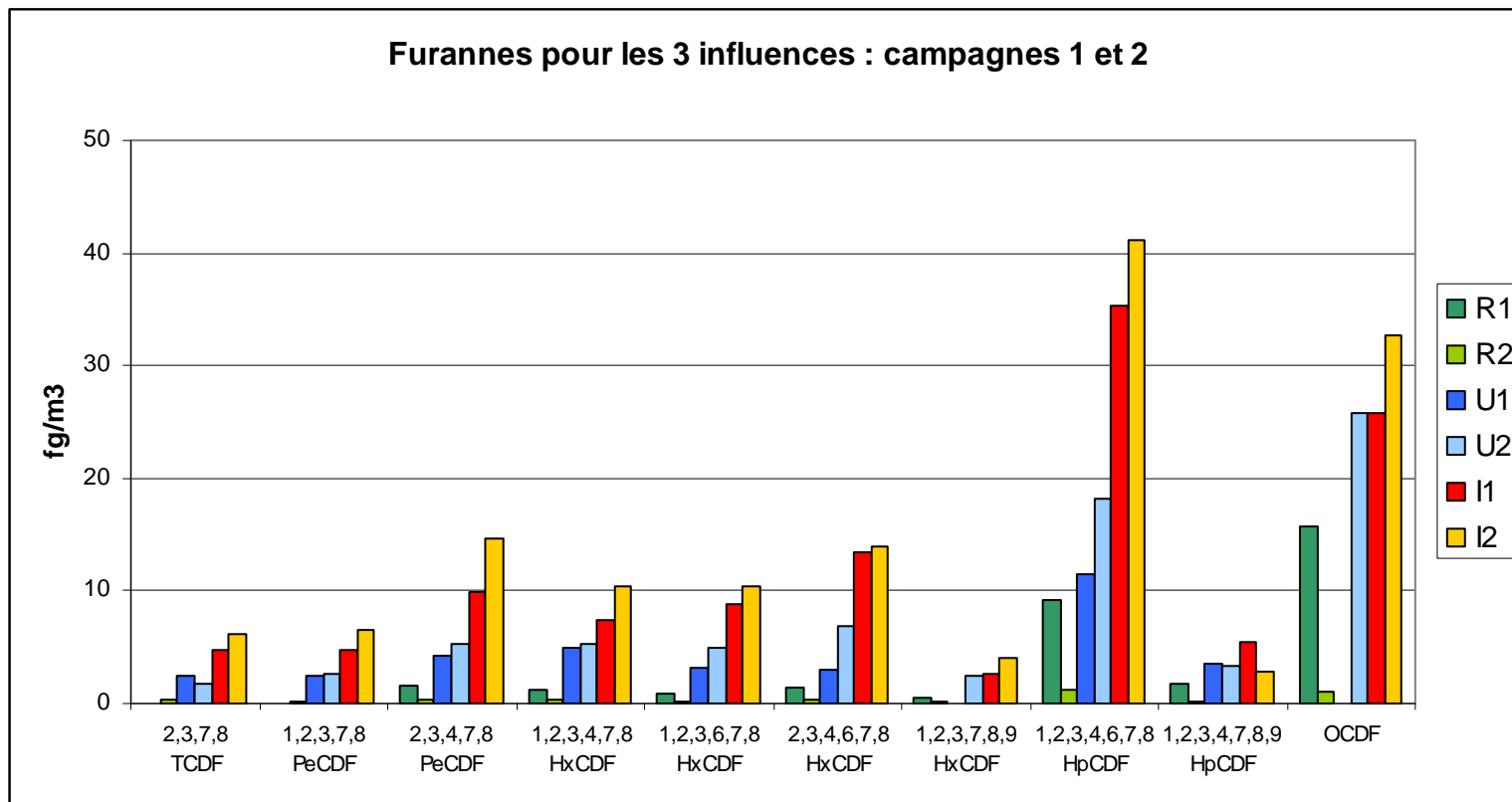
Sous influence rurale : les concentrations en 1,2;3,4,6,7,8 HpCDD et OcDD bien plus importantes dans les prélèvements réalisés lors de la première campagne printemps - été et (effet saisonnier).

Les profils des différents congénères sont différents dans les échantillons d'aérosols prélevés sous influence urbaine *versus* industrielle.

Les concentrations dans les différents aérosols peuvent être classées comme suit :

- Campagne printemps-été: rural>industrie>urbain
- Campagne automne-hiver: industrie>rural>urbain

Concentrations en PolyChloro-*p*-DibenzoFurannes (Furannes) (fg/m³) des particules prélevées.



PolyChloroDibenzoFuranes (PCDF)

a) Influence « Industrie » :

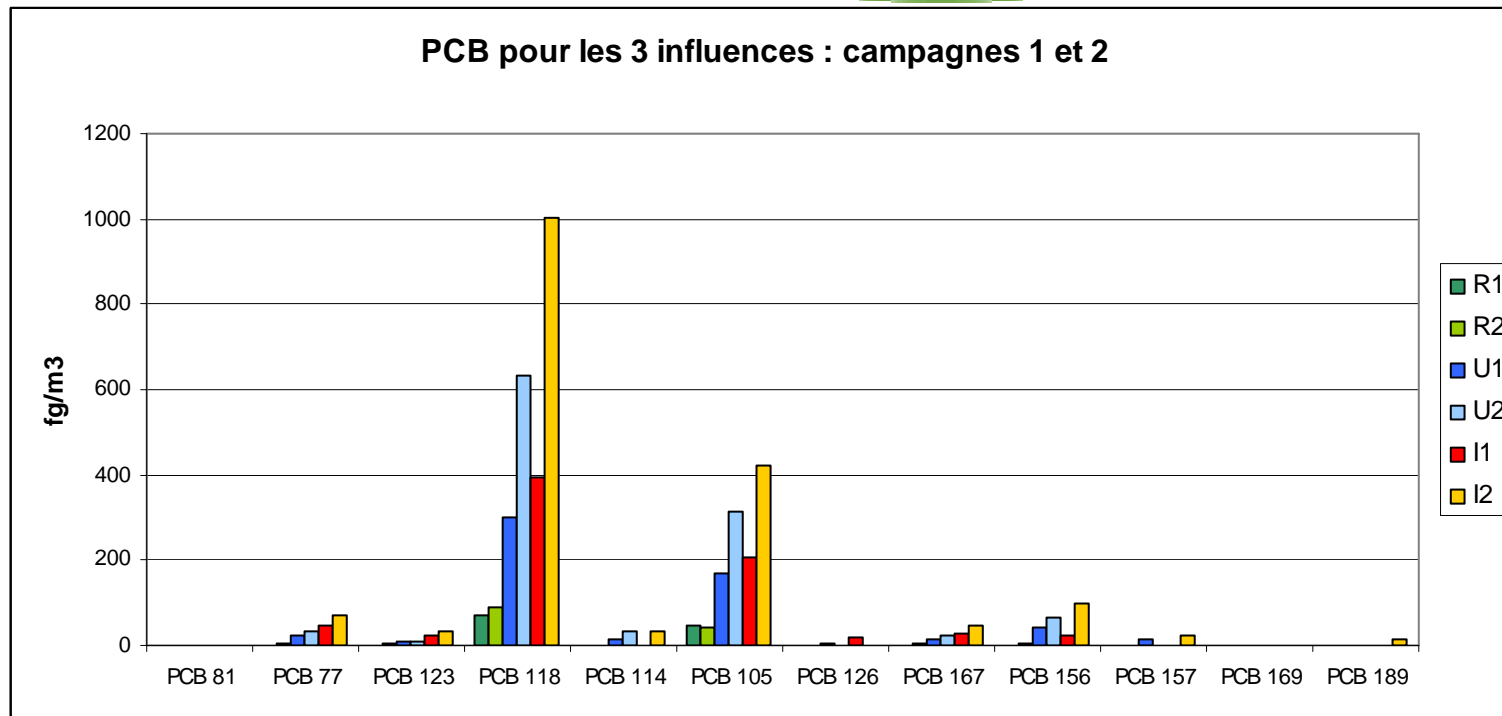
- la 2,3,4,7,8 PeCDF présente un niveau de teneur supérieure à ses congénères voisines,
- la teneur de OCDF est inférieure à celle de 1,2,3,4,6,7,8 HpCDF. Cette observation a été relevée par ailleurs pour les émissions issues de procédés d'agglomération (Wang, 2003 ; Aries, 2006)

b) Influence « Urbaine » :

- le niveau de teneur de 2,3,4,7,8 PeCDF est à un niveau égal à celui 1,2,3,4,7,8 HxCDF,
- la teneur de OCDF est supérieure à celle de 1,2,3,4,6,7,8 HpCDF. Sous l'influence des émissions d'une UIOM, des écarts faibles en ces deux composés ont également été observés par (Chao, 2004).

sous influence rurale, il est important de noter que les concentrations en 1,2,3,4,6,7,8 HpCDF et OcDF sont plus importantes dans les aérosols prélevés lors de la première campagne, et en particulier dans ceux prélevés.

Concentrations en Polychlorobiphényles de type dioxine (PCB dl) (fg/m³) des particules prélevées.



Les concentrations en PCB les plus importantes ont été observées dans les aérosols prélevés lors de la deuxième campagne, et présentent des profils similaires quelle que soit l'influence considérée, mais avec des concentrations plus marquées selon l'ordre ci-après : industrie>urbain>rural.

EVALUATION DE LA CHARGE TOXIQUE GLOBALE

I-TEQ calculés à partir des facteurs d'équivalence toxique de l'OMS

	Rural		Urbain		Industrie	
	C1	C2	C1	C2	C1	C2
I-TEQ (fg/m³)	2,10	0,54	5,60	9,92	14,40	28,30

Ces valeurs ne concernent que l'effet toxique équivalent des dioxines, furannes et PCB dl présents **sous une forme particulaire dans les PM_{2,5}**.

SITUATION DANS D'AUTRES VILLES

En France,

	Limoges 2008-2009	Grenoble 2006-2007	Toulouse 2004	Poitiers 2006	Ile de France 2004	Halluin 2007
I-TEQ (fg/m³)	3 - 10	20 - 80	36 - 50	9 - 28	10 - 200	52

Sources Atmo: données air ambiant (états gazeux et particulaire)

En Europe,

	Rorvik Suède	Mace Head Irlande	Athènes Grèce	Manchester Angleterre	Cologne Allemagne
I-TEQ (fg/m³)	21	4	42-73	410	240

Source : Lohmann and Jones, The Science of the Total Environment

1ere partie

AEROSOLS ATMOSPHERIQUES PARTICULAIRES

PM_{2.5}

PRELEVEMENTS

Impacteur en cascade: printemps/été 2008 et automne/hiver 2008/2009, sous influence industrielle, urbaine ou rurale

CARACTERISATION PHYSIQUE, CHIMIQUE ET BIOLOGIQUE

Granulométrie, porosité et surface spécifique, éléments inorganiques, constituants organiques, espèces ioniques, espèces bactériennes et fongiques

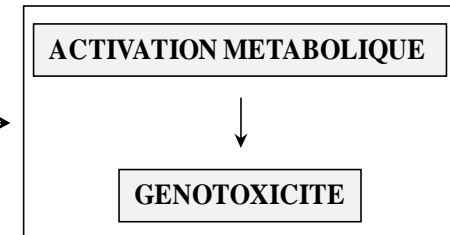
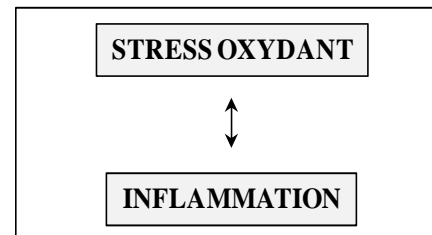
CYTOTOXICITE

Modèle cellulaire: BEAS-2B

PROTOCOLE D'EXPOSITION

2 Concentrations d'Effet
3 Temps d'exposition (24, 48 et 72 h)

MECANISMES PHYSIOPATHOLOGIQUES SOUS-JACENTS



↔

???

???

EVENEMENTS PRECOCES DU PROCESSUS MULTI-ETAPES DE LA CANCEROGENESE

Résumé de l'approche pluridisciplinaire développée

2eme partie



Merci de votre attention

cazier@univ-littoral.fr