

# Élaborer des référentiels pour gérer le risque de transfert de chlordécone sols-légumes ou de bioaccumulation dans les animaux d'élevage - CHLORDEPAN

Maurice Mahieu

► **To cite this version:**

Maurice Mahieu. Élaborer des référentiels pour gérer le risque de transfert de chlordécone sols-légumes ou de bioaccumulation dans les animaux d'élevage - CHLORDEPAN : Caractérisation de la contamination des légumes et des animaux d'élevage terrestres par la chlordécone (volet2). 2013. hal-02807096

**HAL Id: hal-02807096**

**<https://hal.inrae.fr/hal-02807096>**

Submitted on 6 Jun 2020

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



Unité de Recherches Zootechniques



Action 30 du plan national chlordécone, mesure 216 du PDR Guadeloupe 2007-2012

**Projet INRA 2009-2012: Élaborer des référentiels pour gérer le risque de transfert de chlordécone sols-légumes ou de bioaccumulation dans les animaux d'élevage**

Acronyme CHLORDEPAN

**Volet 2 : Caractérisation de la contamination des légumes et des animaux d'élevage terrestres par la chlordécone**

## **Rapport technique final – Décembre 2013 – Contamination des animaux d'élevage terrestres**

## ***Stratégie d'étude***

### **Quatre grandes questions ont été abordées**

- 1) Les voies de contamination des produits animaux
- 2) Les possibilités de décontamination des animaux
- 3) La répartition de la CLD dans les différents tissus animaux, et les possibilités de prédiction ante-mortem
- 4) Les possibilités de prédiction et de cartographie du risque de contamination.

### **Collaborations**

Dès le début de la réalisation du projet, des contacts ont été établis avec l'équipe animée par les Pr G. Rychen et C. Feidt de l'UR AFPA (ENSAIA - Université de Lorraine - INRA, Nancy) qui avaient déjà une solide expérience des pollutions en élevage (PCBs, dioxines, HAPs, métaux lourds...) d'une part et, via le Pr Multigner (INSERM), avec le Pr J-P Thomé, du laboratoire CART de l'Université de Liège (Belgique) qui est à ce jour le seul à maîtriser le dosage de la chlordécone dans le sang (sérum ou plasma). La collaboration avec l'UR AFPA a été formalisée par une convention avec l'INRA-URZ.

Une collaboration avec la DAAF Guadeloupe et l'abattoir du Moule a permis de mettre en place un plan de prélèvement à l'abattoir des tissus (muscle, foie, gras périrénal, sang) sur des bovins abattus puis repérés comme significativement contaminés dans le cadre du plan de contrôle renforcé. En parallèle, une collaboration avec la DAAF Martinique initiée avant la signature du volet 2 du contrat CHLORDEPAN nous a permis de mettre en place le premier suivi de bovins en décontamination en Martinique (financement et logistique DAAF971).

Une collaboration avec deux éleveurs de la zone polluée par la chlordécone a permis d'étudier la possibilité de décontaminer les bovins dans des ateliers hors-sol, mais aussi de récolter des fourrages contaminés en quantités suffisantes pour étudier la contamination de ruminants via ces fourrages.

Par ailleurs, des collaborations antérieures entre l'UR AFPA, le CIRAD Martinique et la FREDON Martinique ont permis d'aborder quelques points comme la biodisponibilité relative de la CLD des andosols et des nitisols pour les monogastriques (volaille et porc), ainsi que la mise en évidence du risque de contamination de canards utilisés pour la maîtrise de l'enherbement de vergers sur sol pollué. Ces points sont donc simplement cités dans le cadre du projet CHLORDEPAN.

### En préalable, un point méthodologique sur les techniques de dosage de la CLD.

L'attributaire du marché de dosage de la chlordecone (CLD) dans les végétaux et assimilés (fourrages, fèces) a utilisé la méthode AFSSA LERHQA –CENPOP/06, tandis que la CLD des sols a été dosée par la méthode interne CMO\_MT06 selon XP X 33-012 (LDA26).

Lors du lancement du projet, début 2011, l'attributaire du marché était le seul à disposer d'une accréditation COFRAC pour le dosage de CLD dans les produits alimentaires d'origine animale selon la méthode référencée AFSSA LERHQA –TOPPOP/04. Cette méthode était par ailleurs recommandée par la note de service de la DGAL DGAL/SDSSA/N2011-8053, du 01 mars 2011, pour le plan de surveillance des produits animaux de la pêche et de l'aquaculture.

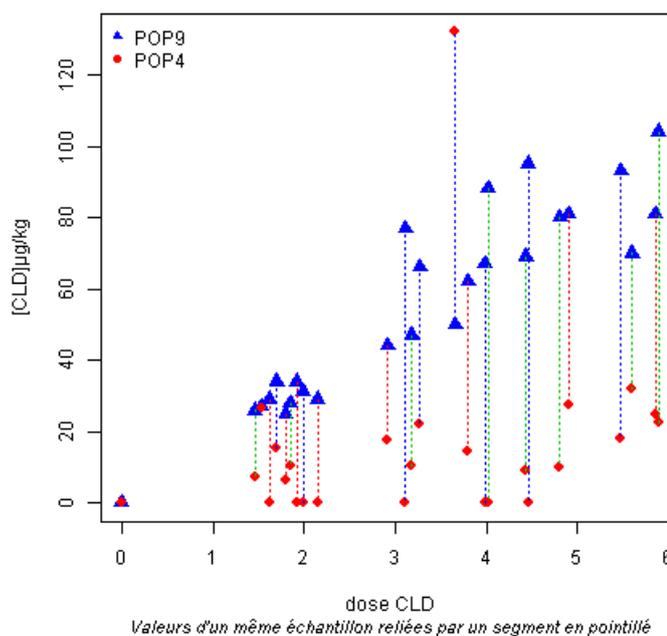
Toutes les analyses demandées sur les tissus gras, muscles et foies ont été effectuées en utilisant cette méthode.

Cependant les résultats des dosages de CLD dans les tissus gras issus de l'évaluation de la biodisponibilité relative de la CLD, nous ont paru suspects, en particulier la réponse très mauvaise à des doses croissantes de CLD (points rouges sur le graphique ci-contre). Notre partenaire de l'UR AFPA a alors fait

analyser les doublons des échantillons dans un autre laboratoire de service, utilisant la méthode plus récente AFSSA LERHQA –TOPPOP/09, qui a fourni des résultats plus conformes à nos hypothèses de départ (triangles bleus sur le graphique). La corrélation entre les résultats issus des deux méthodes est pratiquement nulle ( $R^2 = 0.023$ ), ce qui nous amène à conclure que la méthode AFSSA LERHQA –TOPPOP/04 ne permet pas de doser correctement la CLD dans les tissus adipeux. La principale amélioration apportée par la TOPPOP/09 serait la détermination du rendement dès la phase d'extraction par ajout de CLD marquée, ce qui permet une meilleure correction des résultats, les rendements d'extraction pouvant sembler varier fortement d'un échantillon à l'autre.

Une des conséquences de ce problème de dosage de la CLD dans les tissus animaux est que l'ensemble des résultats sur les prélèvements effectués en abattoir et analysés en 2011- 2012 selon la méthode AFSSA LERHQA –TOPPOP/04\_sont inutilisables, sans que nous ayons pu nous en rendre compte au moment des faits, faute des repères apportés fin 2012 par cette expérimentation en conditions contrôlées. De ce fait, la répartition de la CLD dans les tissus animaux (premier point de la question 3) n'a pu être traitée de façon correcte, à l'exception de ce qui a pu être fait sur les poules pondeuses (p12). Il n'est donc pas encore possible de faire une relation étroite entre un niveau de contamination sanguine (*ante mortem*) et un niveau de contamination des tissus ou organes consommés (*post mortem*).

Comparaison des méthodes AFSSA TOP POP4 et POP9 sur du tissus gras périrénal (coll. UR AFPA)



Valeurs d'un même échantillon reliées par un segment en pointillé

## Les voies de contamination des produits animaux

### Le sol ingéré

Le stock de CLD à l'origine des contaminations de la chaîne alimentaire se trouve dans le sol, avec des niveaux de concentration pouvant atteindre, et dans certains cas dépasser, les 50 mg/kg de sol sec, même si généralement on ne trouve que quelques mg/kg. Ces teneurs en CLD sont de deux à trois ordres de grandeur supérieurs à ceux rencontrés dans les eaux ou les aliments, ce qui fait des sols involontairement ou volontairement ingérés par les animaux des sources potentiellement importantes de contamination. Nous avons abordé le problème en deux étapes : détermination de la biodisponibilité relative de la CLD des sols ingérés, et estimation des quantités de sol ingérées par les animaux.

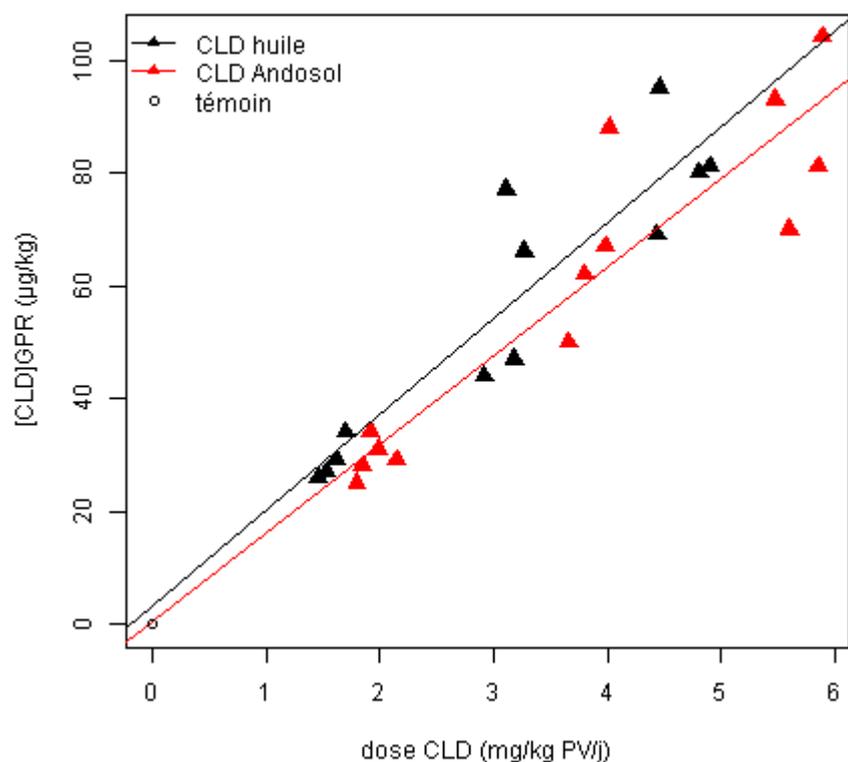
### *Évaluation de la biodisponibilité relative de la CLD des sols ingérés (convention INRA URZ - UR AFPA)*

La biodisponibilité relative de la CLD a été évaluée en comparant les niveaux de concentration en CLD (gras périrénal, foie et sang) d'agneaux exposés à des doses connues de CLD apportées soit par une solution huileuse de référence (12 animaux, 3 niveaux d'exposition), soit par du sol contaminé incorporé à leur alimentation (13 animaux, 3 niveaux d'exposition – environ 2, 4 ou 6 mg/kg vif/j pendant 15 jours), trois animaux formant un groupe témoin non exposé à la CLD. Les données disponibles indiquant que les andosols, du fait de leur structure fractale et de leur teneur en matière organique, ont la plus forte capacité à fixer la CLD (Fernandes et al 2010), nous avons choisi ce type de sol, en veillant à ne pas dégrader sa structure d'origine lors de la préparation des aliments (ni augmentation de température, ni dessiccation).

Les mesures effectuées sur les trois tissus-cible apportent des réponses similaires. La relation dose-réponse est linéaire, les intercepts des droites de régression obtenues pour chaque matrice ne sont pas significativement différents de 0 ( $P = 0.34$  à  $0.42$ ) et il n'y a pas d'effet matrice sur la pente ( $P = 0.10$  à  $0.46$ ). Les résultats sont illustrés par la figure ci-contre (mesures dans le gras périrénal, méthode TOPPOP/09).

On peut en conclure que la CLD est absorbée de la même manière lors du passage dans le

**Biodisponibilité relative de la CLD des andosols**



tractus digestif, qu'elle provienne d'un andosol ingéré ou d'une matrice huileuse de référence : la biodisponibilité relative de la CLD des andosols est proche de 1.

En conséquence, même ingérés en faible quantité, les sols peuvent représenter une source de contamination très importante, compte tenu de leur charge élevée en CLD.

Ces résultats confortent ceux déjà obtenus sur monogastriques (porc et volaille) qui indiquent eux aussi une biodisponibilité relative proche de 1, pour andosol comme pour nitisol. (Bouveret 2012; Jondreville et al 2013).

#### *Estimation des quantités de sol ingérées au pâturage*

La biodisponibilité relative de la CLD des sols pollués étant proche de 1, la quantification de l'importance réelle de cette voie de contamination passe par l'estimation des quantités de sol ingérées par les animaux au pâturage, et la connaissance des causes de modulation de cette ingestion (nature des sols, des fourrages, des animaux, chargement animal, conditions météorologiques...).

Une première étape méthodologique visait à adapter une méthode basée sur la mesure de la fraction minérale insoluble dans l'acide chlorhydrique bouillant (insCHI), contenue dans les fèces des animaux, après prise en compte de l'insCHI du sol et de l'insCHI des fourrages consommés corrigé par leur digestibilité (Van Keulen and Young 1977; Beyer et al 1994).

Malheureusement, et sans doute en raison d'une forte teneur en minéraux et insCHI des fourrages tropicaux (>10%) et à une faible précision de la mesure de l'insCHI, cette méthode s'est avérée inapplicable.

Notre partenaire de l'UR AFPA, qui a déjà utilisé une méthode analogue pour l'étude des quantités de sols ingérées par des vaches au pâturage, en zone tempérée, a ré-analysé les échantillons disponibles et est arrivé au même constat. Pour résoudre ce problème nous devons dans le futur nous tourner vers des marqueurs des sols plus spécifiques, c'est-à-dire présents en quantité importante dans les sols et naturellement absents des tissus végétaux, mais les techniques d'analyse risquent d'être plus coûteuses à mettre en œuvre. Des contacts ont été pris avec l'UMR 6249 (Chrono-environnement CNRS, Besançon) pour mettre au point des techniques adaptées aux caractéristiques des sols et fourrages tropicaux, dans une phase ultérieure et avec des financements spécifiques.

#### *Les eaux d'abreuvement*

Les eaux d'abreuvement peuvent présenter une teneur variable en CLD en fonction de la nature et du niveau de pollution des sols par lesquels elles ont pu percoler, de la charge en solides pollués, ainsi que par d'éventuels effets de chasse par des eaux d'amont non polluées, en fonction des pluies. Nous avons pu relever des valeurs entre 0 et plus de 35µg/l, avec de fortes variations spatiales et temporelles. La CLD est fortement hydrophobe, et son coefficient de solubilité relative fait qu'on peut sans risque considérer que la totalité de la CLD des eaux de boisson est bio-disponible. La seule mesure efficace à préconiser sera donc d'abreuver les animaux avec de l'eau potable et d'éviter d'utiliser les eaux non traitées dans tout le périmètre comportant des sols pollués, ainsi qu'en aval de ceux-ci, les aquifères et les sources, ravines et rivières qu'ils alimentent pouvant être eux-mêmes pollués.

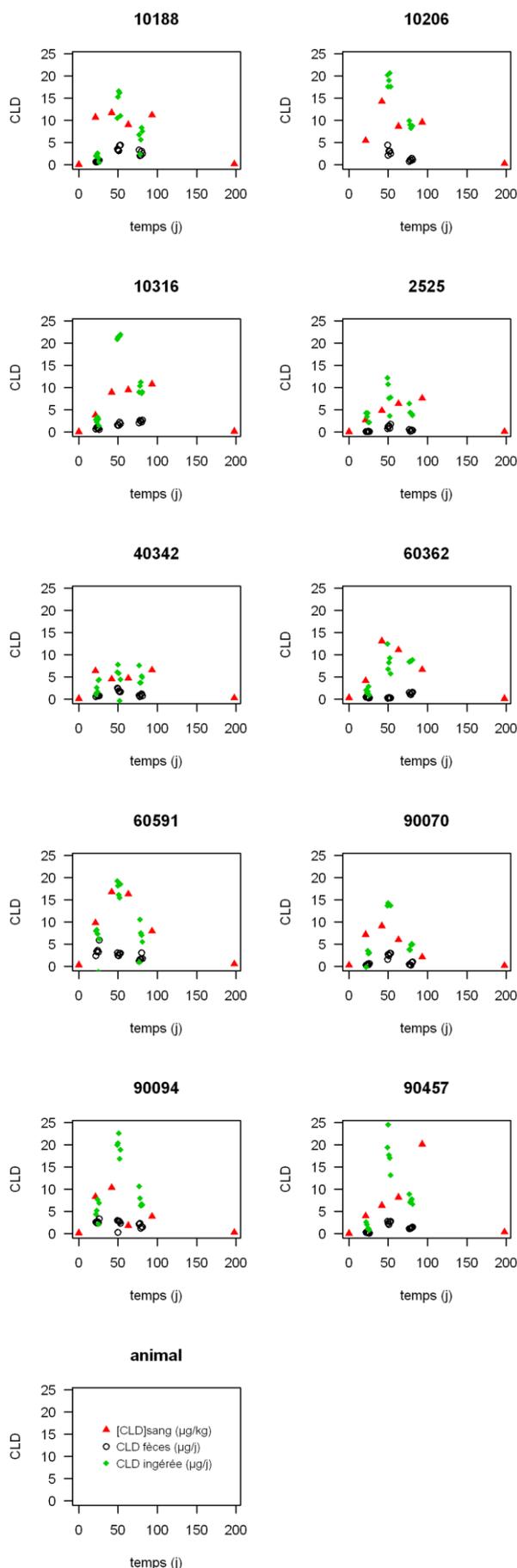
## Les fourrages

Les résultats des dosages de CLD dans les fourrages réalisés par le passé chez les agriculteurs sont dans la plupart des cas inférieurs aux seuils de quantification obtenus à l'époque du dosage (LOQ) de 20 µg/kg sec, bien que des bovins pâturant ces fourrages puissent être fortement contaminés, ce qui suggérerait une contamination essentiellement liée à l'ingestion de sol.

Nous avons donc étudié la possibilité d'élever des ruminants "hors sol" en les nourrissant avec des fourrages fauchés sur des parcelles contaminées, en évitant ainsi toute ingestion involontaire de sol pollué. Dix chèvres à l'entretien ont ainsi été nourries pendant trois mois à partir de foin récolté sur une parcelle de nitisol pollué à hauteur d'environ 2000 µg de CLD/kg sol sec. Les quantités individuelles de foin proposé, refusé et de fèces ont été mesurées à trois périodes, et la teneur en CLD d'échantillons représentatifs a été déterminée. La teneur en CLD a été mesurée dans des échantillons sanguins prélevés au début (point 0), chaque mois pendant l'exposition et trois mois après la fin de l'exposition. Quatre chantiers de récolte de foin ont été nécessaires et chaque lot de foin a été analysé et utilisé séparément. Les dosages de CLD sérique ont été réalisés au laboratoire CART de l'Université de Liège, avec une LOQ de 0.06 µg/l, tandis que les analyses de fourrage et de fèces ont été réalisées par le LDA 26 (méthode AFSSA LERHQUA CENPOP/06, LOQ = 0.5 µg/kg).

Les résultats sont résumés dans les 10 figures regroupées ci-contre (légendes en bas).

On constate qu'il existe des différences individuelles importantes, et que la qualité du fourrage et sa teneur en CLD sont assez variables d'une récolte à l'autre. Cependant, malgré un tri poussé par les animaux des parties les plus feuillues, traduit par un taux de



refus très important (en moyenne 38% du proposé), les quantités estimées de CLD ingérées provenant du fourrage se sont avérées importantes, de l'ordre de 5 à 20 µg/j, soit en moyenne 0.2 à 0.8 µg/j par kg de poids vif (points verts sur les graphiques), et ont conduit à une contamination significative des animaux (jusqu'à 20 µg/kg dans le sérum, triangles rouges sur les graphiques).

Les possibilités de remplacer l'élevage des ruminants au pâturage par des systèmes hors-sol avec récolte des fourrages sur les parcelles polluées sont donc compromises. Cependant une mesure de la CLD sanguine environ 3 mois après la fin de l'exposition montre que celle-ci est redescendue à un niveau très bas, inférieur ou égal à 0.5 µg/kg. Cette possibilité de décontamination des caprins après arrêt de l'exposition à la CLD est cohérente avec les résultats des mesures de pharmacocinétique présentés plus bas, ainsi qu'avec les résultats de décontamination obtenus en bovins.

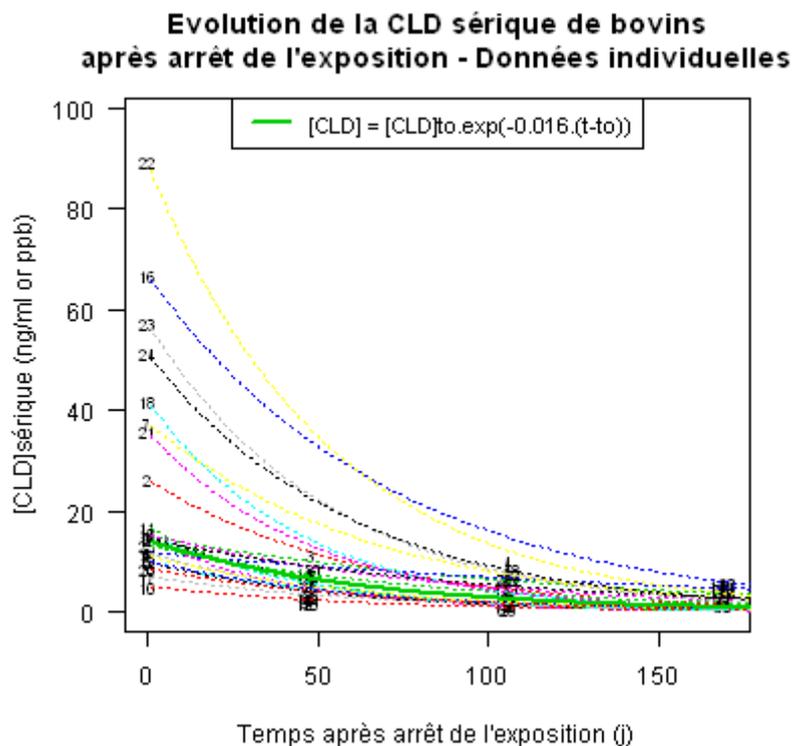
### Possibilités de décontamination des animaux d'élevage et de leurs produits

#### 1) En bovins

Nous avons évalué la vitesse de décontamination de 25 bovins Créole adultes à l'entretien ou jeunes sevrés à croissance modérée, chez deux éleveurs ayant des parcelles polluées. Nous avons placé les animaux hors-sol et les avons alimentés avec une ration à base de paille de canne (récoltée hors périmètre pollué) et de complément (GMA formule INRA1 ou banane fruit + tourteau de soja). Les animaux ont été abreuvés à partir d'eau de pluie récupérée dans une citerne, ou d'eau potable. Nous avons effectué des prélèvements sanguins à l'entrée en bâtiment ( $t_0$ ) pour déterminer la concentration initiale en CLD ( $[CLD]_{t_0}$ ), puis à trois occasions espacées sur une période de 6 mois. Les dosages de CLD ont été réalisés au laboratoire CART de l'Université de Liège pour les sérums (LOQ = 0.06 µg/kg).

Nous avons calculé les paramètres individuels de décontamination (cinétique de premier ordre) du type  $CLD_t = CLD_{t_0} \cdot \exp(-k \cdot (t - t_0))$ , où  $CLD_t$  et  $CLD_{t_0}$  sont les concentrations de CLD sérique au temps  $t$  et  $t_0$  (exprimé en jours),  $\exp$  la fonction exponentielle et  $k$  une constante (proportion de CLD éliminée chaque jour). La demi-vie (temps nécessaire pour éliminer la moitié de la charge en CLD) est égale à  $\text{Log}(2)/k$ . Ces paramètres ont été estimés en utilisant un modèle mixte de régression non linéaire, prenant en compte le fait que les mesures ont été répétées à des moments différents sur les mêmes animaux, considérés comme des individus tirés au hasard dans leur population d'origine.

Les concentrations individuelles de CLD sérique sont reportées sur le graphique ci-contre (repérées par le numéro d'ordre de l'animal) et les



courbes d'ajustement individuelles sont portées en pointillé. La courbe de décontamination moyenne est portée en trait vert épais et continu. En moyenne, le coefficient k vaut 0.0163, ce qui signifie que 1.63% de la CLD présente est éliminée chaque jour, pour l'échantillon de bovins étudié, et qu'il faut en moyenne 42.6 jours pour éliminer la moitié de la charge en CLD (demi-vie).

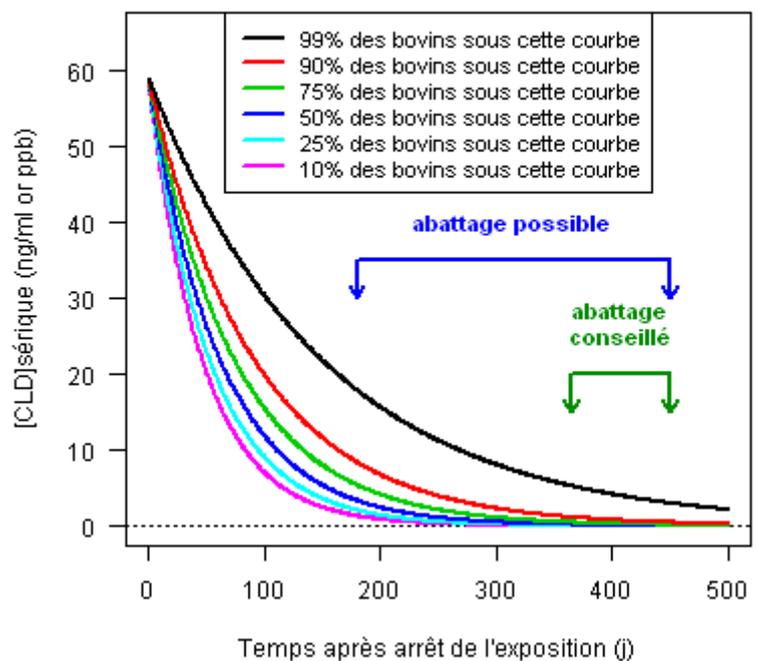
Une première étude menée en Martinique (convention DAAF972-éleveur-INRA URZ) nous avait permis une première estimation du coefficient k (1.57% en moyenne), chez des génisses Brahman au pâturage (Mahieu et al 2012).

Nous avons testé l'effet de la race (Créole vs. Brahman) sur les valeurs individuelles de k. Nous n'avons pas mis en évidence de différence entre les capacités d'excrétion de la CLD chez les bovins Créole et chez les bovins Brahman (P=0.69), ce qui autorise à regrouper toutes les données individuelles pour une estimation plus précise des intervalles de confiance. Globalement, on peut estimer que dans 95% des cas, la demi-vie de la CLD chez un bovin se situe entre 29 et 86 jours, la médiane se situant à 43 jours. Le tableau ci-dessous donne la probabilité qu'un animal présente une capacité d'élimination de la CLD supérieure ou égale à la valeur indiquée pour k (%) ou, ce qui est équivalent, une demi-vie inférieure ou égale à la valeur indiquée (j).

probabilité	1%	10%	25%	<b>50%</b>	75%	90%	<b>99%</b>
k ≥	2.53%	2.12%	1.87%	<b>1.60%</b>	1.33%	1.08%	<b>0.66%</b>
Demi-vie ≤	27 j	33 j	37 j	<b>43 j</b>	52 j	64 j	<b>104 j</b>

Ces probabilités sont illustrées par la figure ci-contre, qui permet d'expliciter les recommandations de durée de décontamination devant permettre de minimiser l'exposition des consommateurs de viande bovine issue des zones polluées par la CLD. La concentration initiale en CLD correspond au maximum constaté dans l'élevage de Martinique, où les animaux abattus présentaient des teneurs en CLD dans le gras périrénel entre 2 et 5 fois la LMR. Pour cet élevage, les analyses réglementaires après abattage au bout de 6 ou 9 mois de décontamination se sont toutes révélées inférieures à la limite de quantification (LOQ, 10µg/kg de matière grasse à l'époque des faits), ce qui confirme la possibilité de décontaminer les bovins en arrêtant l'exposition à la CLD pendant 6 mois ou plus avant abattage. Cependant, pour les 1 à 10% des animaux très fortement contaminés qui présentent une faible capacité d'excrétion de la CLD, compte tenu de l'impossibilité jusqu'ici d'établir

**Diminution de la CLD sérique de bovins après arrêt de l'exposition - Variations individuelles**



des corrélations faibles entre les concentrations en CLD des différents tissus, nous ne pouvons pas garantir que 6 mois de décontamination suffisent pour arriver sous la LOQ dans les prélèvements réglementaires, ni même sous la LMR pour les cas extrêmes. On peut aussi souligner qu'une contamination deux fois plus importante au départ ne nécessitera l'allongement de la phase de décontamination que d'une demi-vie (soit en moyenne 6 semaines) pour arriver au même état final.

Par ailleurs, l'expérience en élevage a aussi montré l'importance de placer les animaux dans des conditions permettant de supprimer toute compétition, au moins pendant l'alimentation. À défaut des bagarres continues peuvent se produire et se traduire par la mort des animaux les plus faibles (coups de corne) et à tout le moins par des performances de croissance très diminuées (accès limité à la nourriture). Des investissements importants en bâtiments, en matériel d'élevage adapté au format des animaux (en particulier auges et cornadis) ainsi qu'en moyens de traitement des effluents et de stockage des fourrages sont donc nécessaires pour mettre en place de tels ateliers de décontamination hors-sol. La viabilité économique de ce type d'atelier reste à évaluer.

La décontamination des animaux peut aussi se faire par transfert des animaux vers des pâturages non pollués pour les 6 à 12 mois nécessaires à leur décontamination et à leur engraissement. C'est la solution mise en œuvre en Martinique, suite à l'essai précité, et les éleveurs de Guadeloupe qui savent posséder des parcelles polluées et des parcelles non polluées ont commencé à en faire autant. Par contre, beaucoup s'interrogent sur le transport de CLD et donc la pollution qui pourrait en résulter sur les pâturages recevant les animaux à décontaminer. En prenant des hypothèses extrêmes, on peut évaluer à 1000 kg de poids vif par ha la production maximale de bovins. Si on considère que ces bovins sont très contaminés (1000 µg/kg vif, soit le double des teneurs maximales mesurées dans les tissus gras lors des contrôles en abattoir), chaque année on transfèrera au plus 1 g (un gramme) de CLD, qui sera épandu sur environ 1 ha recevant les animaux à décontaminer. Cette quantité est à rapprocher des 3 kg/ha (trois mille grammes par ha) de CLD apportés chaque année dans la bananeraie, pendant deux décennies. Dans la pratique, la production bovine annuelle par ha est généralement très inférieure à 1000 kg et le niveau de contamination des bovins est généralement en dessous de 100 µg/kg. On peut donc en conclure que les transferts de CLD par les animaux sont extrêmement faibles (de quelques mg à quelques centaines de mg/ha/an, il faudrait des millénaires pour contaminer significativement les parcelles recevant les animaux) et ne peuvent en aucun cas justifier le non-recours à une décontamination au pâturage.

*En conclusion, quelque soit la méthode (au pâturage ou hors-sol), il est possible d'abattre les bovins après 6 mois de décontamination, avec un risque très faible de dépasser la LMR. Cependant, pour diminuer au maximum le niveau d'exposition des consommateurs, nous recommandons de modifier le système d'élevage des bovins, de façon à n'utiliser les zones polluées que pour la production de veaux sevrés, veaux qui seraient engraisés ensuite hors exposition à la CLD, pendant une période d'environ un an nécessaire à leur finition avant abattage. Les animaux de réforme devraient aussi être finis hors exposition à la CLD pendant un minimum de 6 mois avant abattage.*

## 2) En caprins (convention INRA URZ – UR AFPA)

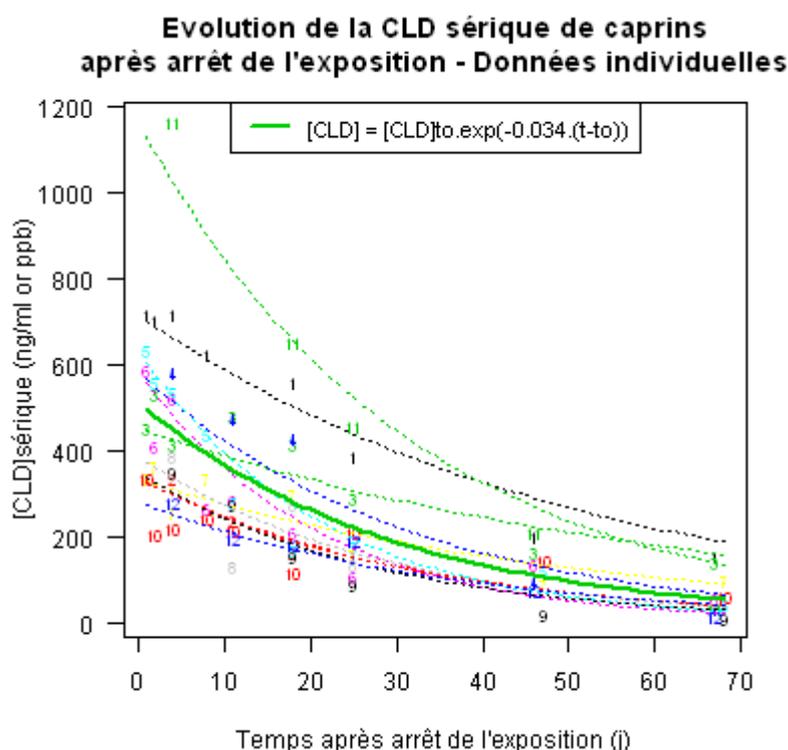
Les connaissances sur la pharmacocinétique de médicaments (Hennessy et al 1993a, b, c; Shukla et al 2007; Javed et al 2009) amènent à penser que les caprins sont généralement plus efficaces que les bovins ou les ovins pour éliminer des toxiques, même s'il existe aussi des contre-exemples (Goudah and Mouneir 2008).

Nous avons donc mis en place une mesure de la pharmacocinétique de la CLD chez les caprins, avec deux objectifs principaux :

- i) évaluer la biodisponibilité absolue de la CLD, en comparant les quantités de CLD dans le compartiment sanguin après une administration par voie orale ou par intra-veineuse. La biodisponibilité est estimée par le rapport des aires sous les courbes de concentration (AUC)
- ii) estimer la demi-vie de la CLD pendant les semaines post exposition, qui conditionne la durée de décontamination des animaux élevés sur des sols pollués.

Douze chèvres à l'entretien ont été utilisées. Six ont reçu 1 mg/kg vif de CLD par voie intraveineuse, tandis que 6 autres ont reçu la même dose de CLD par voie orale, dans une boulette d'aliment. Cette dose de 1 mg/kg vif a été choisie pour mimer une situation de contamination élevée, en restant largement sous le seuil de toxicité (nous n'avons observé aucun syndrome nerveux). Des prélèvements sériés, étalés sur une période de trois mois ont permis de suivre la cinétique de diffusion de la CLD dans l'organisme, puis son élimination. Les dosages des sérums ont été réalisés au laboratoire CART de l'Université de Liège (LOQ = 0.06 µg/kg).

Nous n'avons pas observé de différence significative entre les AUC des animaux ayant reçu la CLD par voie orale et de ceux l'ayant reçue par voie intraveineuse (probabilité d'une différence nulle  $P = 0.79$ ). La **biodisponibilité absolue**, définie par le rapport entre les AUC après administration de CLD en solution dans de l'huile par voie orale et par voie intraveineuse peut donc être estimée à **100%**. La biodisponibilité relative de la CLD des sols étant elle-même proche de 100% chez les ruminants comme chez les monogastriques, on peut donc considérer en pratique que la quasi-totalité de la CLD présente dans l'environnement et ingérée par les animaux passera la barrière intestinale et contaminera les produits animaux.

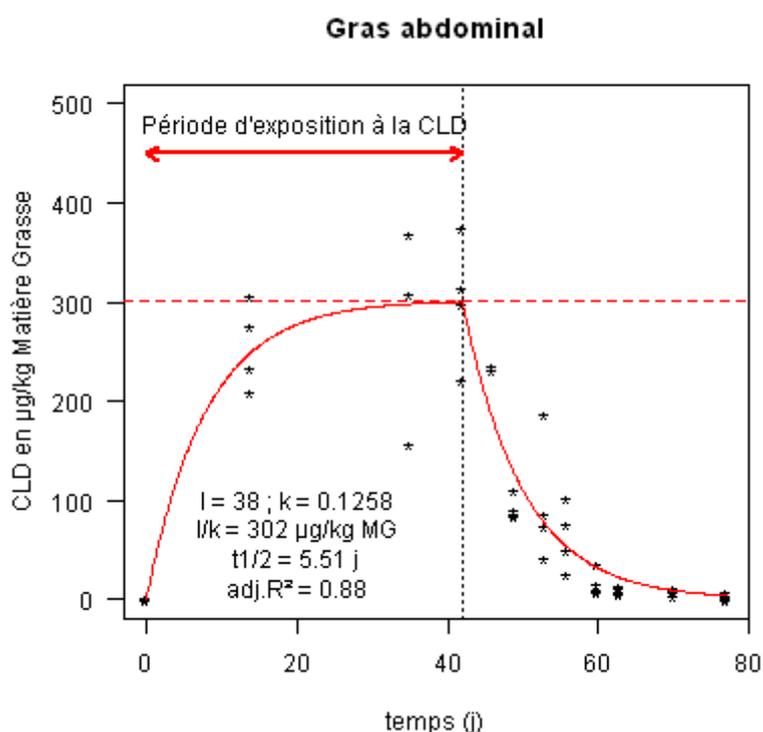


Nous avons ensuite évalué la vitesse de décontamination des caprins. Les données individuelles sont illustrées sur la figure ci-contre. Le coefficient d'élimination  $k$  a été estimé par un modèle mixte de régression non linéaire identique à celui utilisé pour les données de décontamination des bovins. Ce coefficient  $k$  vaut en moyenne 0.034, ce qui signifie que l'animal excrète chaque jour en moyenne 3.4% de sa charge corporelle en CLD. La **demi-vie moyenne est estimée à 20.6 jours**, ce qui est environ la moitié de la demi-vie moyenne chez les bovins et conforte notre hypothèse de départ sur une plus forte capacité des caprins à éliminer les toxiques. Néanmoins, comme pour les bovins, il existe des différences individuelles importantes, et, bien que le nombre d'animaux étudiés soit plus faible, nous pouvons avancer que 95% des chèvres devraient présenter une demi-vie de la CLD entre 13 et 51 j.

### 3) En volaille (poule pondeuse)

Une étude de contamination puis décontamination de poules pondeuses a été réalisée dans le cadre de la convention INRA URZ – UR AFPA.

Au total 48 poules en cages individuelles ont été alimentées pendant 6 semaines avec un aliment contenant 500 µg de CLD par kg, puis placées hors exposition pendant les 5 semaines suivantes. Des échantillons d'œufs ont été prélevés deux fois par semaine, tandis que 3 ou 4 poules ont été sacrifiées toutes les deux semaines pendant la phase d'exposition, puis deux fois par semaine pendant la phase de décontamination, et la CLD a été dosée dans des échantillons de sérum (48), de gras abdominal (46), de foie (48), de muscle pectoral (10) et de muscle de la cuisse (10) ainsi que dans 75 échantillons de jaune d'œuf et 4 échantillons de blanc d'œuf. Les mesures ont été faites sur des échantillons lyophilisés (sauf les sérums, les gras abdominaux et les jaunes d'œuf, congelés), nous avons cependant exprimé les résultats en poids frais sur la base d'un poids moyen du jaune d'œuf de 14 g (taux de ponte 99%), de foie à 31% de matière sèche et de muscles à 27% matière sèche. Les analyses ont été réalisées au LDA56 (méthode interne issue de la NF EN 1528-2 pour l'extraction de la matière grasse et méthode ANSES Maison-Alfort POP09 rév 2 applicable aux matières grasses solides, LOQ = 1µg/kg pour les jaunes d'œuf, LOQ = 2µg/kg pour les tissus gras, foie et muscles) ou au laboratoire CART de l'Université de Liège pour les sérums (LOQ = 0.06 µg/kg).



Le tableau page suivante regroupe les principaux paramètres estimés pour les différents tissus ou produits.

L'évolution de la concentration en CLD de la matière grasse du tissu gras abdominal est illustrée par le graphique ci-dessus. Les "\*" représentent les mesures expérimentales, la courbe rouge continue

indique l'évolution de la teneur en CLD estimée, tandis que la ligne à tirets rouges représente la concentration à l'équilibre (I/k), atteinte en pratique au bout de 6 semaines d'exposition continue. Des courbes similaires ont été obtenues avec l'évolution de la CLD dans le sérum, le jaune d'œuf et le foie.

Paramètres du modèle cinétique de premier ordre de la chlordecone dans différents tissus des poules pondeuses

	Modèle				Demi-vie $t_{1/2}$ (j)		I/k ( $\mu\text{g}/\text{kg}$ )	
	I	k	R <sup>2</sup>	RSD	estimation	IC95	estimation	IC95
Sérum	14.1	0.0859	0.72	35	8.07	7.2 – 9.1 <sup>a</sup>	164	150 - 177 <sup>a</sup>
Jaune d'œuf* <sup>mx</sup>	170.7	0.0906	0.93	197	7.65	7.5 – 7.8 <sup>b</sup>	1883	1847 - 1925 <sup>b</sup>
Gras abdominal**	38.0	0.126	0.88	41	5.5	4.6 – 6.6 <sup>a</sup>	302	276 - 325 <sup>a</sup>
Foie*	189.6	0.114	0.75	355	6.1	5.4 – 6.9 <sup>a</sup>	1666	1498 - 1851 <sup>a</sup>

Le modèle est de la forme suivante :  $Y_{t_1,t_2} = (I/k) * (1 - e^{-kt_1}) * e^{-kt_2}$  avec  $Y_{t_1,t_2}$ , la concentration de CLD dans le tissu (ng/g) après une période de contamination de  $t_1$  jours suivie d'une période de décontamination de  $t_2$  jours. La demi-vie ( $t_{1/2}$ , en j) est estimée par  $\ln(2)/k$  ; où k est une estimation de la proportion de CLD excrétée par unité de temps, I/k est une estimation de la concentration à l'équilibre (en ng/g ou  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ), quand les sorties de CLD deviennent équivalentes aux entrées. RSD est l'écart type résiduel, R<sup>2</sup> la part de la variance expliquée par le modèle, et IC95 l'intervalle de confiance à 95% de l'estimation d'un paramètre.

\* sur le produit frais

\*\* sur la matière grasse

<sup>mx</sup> : modèle mixte (mesures répétées, sujet = poule)

<sup>a</sup> Intervalle de confiance de la moyenne, basé sur 5000 ré-échantillonnages

<sup>b</sup> Intervalle de confiance des valeurs individuelles

La demi-vie de la CLD chez les poules pondeuses est en moyenne de l'ordre de la semaine quelque soit le tissu considéré. On peut donc envisager une décontamination des volailles de ce type avant consommation des œufs ou de la viande, dans un délai raisonnable de un à deux mois après l'arrêt de l'exposition. Il est à noter que seules des traces de CLD ont été détectées dans les blancs des œufs, et que toute la CLD de l'œuf se retrouve dans le jaune. Les blancs des œufs peuvent donc être utilisés même pendant cette période, dès lors que les jaunes sont éliminés.

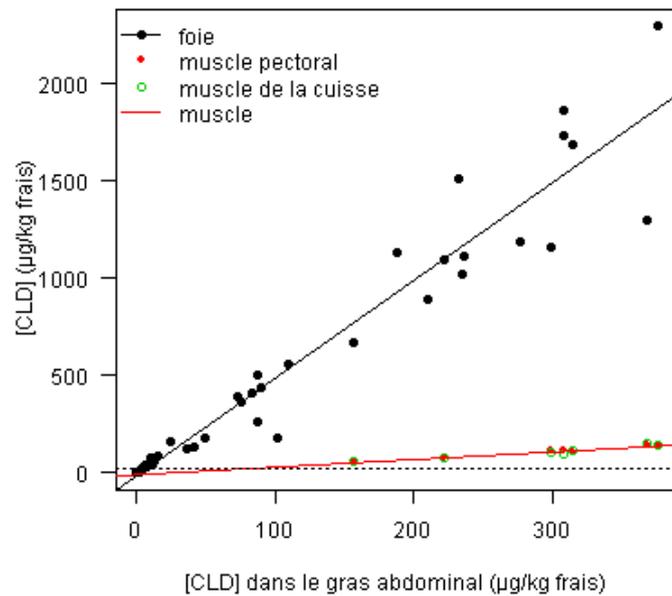
Les œufs constituent une voie de transfert de la CLD très importante puisqu'à l'équilibre, la moitié (48% à 50%) de la CLD ingérée par la poule est susceptible de se retrouver dans le jaune de l'œuf, pour des pondeuses avec un taux de ponte de 99%, et une ingestion quotidienne de 106 g d'aliment à 500  $\mu\text{g}$  CLD/kg, le reste étant excrété par la voie foie – fèces.

*En conséquence, des volailles en croissance modérée ou en arrêt de ponte se décontamineront probablement deux fois plus lentement que des pondeuses. Pour des volailles élevées dans des zones fortement polluées, il conviendra de recommander une décontamination de deux à quatre mois pour s'assurer que les volailles sont consommables avec un risque minimal pour les consommateurs.*

Les relations entre les concentrations en CLD des muscles (sur le poids frais), du foie (sur le poids frais) et du gras abdominal (sur le poids de matière grasse) sont illustrées par le graphique ci-contre.

On constate que :

- Les relations entre les teneurs en CLD des différents tissus sont linéaires ( $R^2 > 0.92$ )
- Le foie est en moyenne 5 fois plus contaminé que la matière grasse abdominale (intervalle de confiance à 95% : 4.6 à 5.5 fois).
- Les muscles pectoraux et de la cuisse sont contaminés au même niveau (test t, mesures appariées,  $p = 0.33$ )
- Les muscles contiennent en moyenne 0.39 fois la teneur en CLD de la matière grasse abdominale (intervalle de confiance à 95% : 0.32 à 0.46 fois).
- Le sérum contient en moyenne 0.46 fois la teneur en CLD de la matière grasse abdominale (intervalle de confiance à 95% : 0.38 à 0.55 fois).



Si on considère que les muscles contiennent de 2% à 10% et le foie de 5% à 10% de lipides sur le produit frais (<http://www.ansespro.fr/TableCIQUAL/index.htm>), leur teneur en CLD apparaît très supérieure à ce qu'elle serait si la CLD était seulement fixée aux graisses, ce qui confirme un comportement de la CLD très différent de celui des autres organochlorés (Soine et al 1982).

Les volailles élevées en plein air sont susceptibles d'ingérer des quantités importantes de sol, pouvant aller jusqu'à près de 30 g/j pour des poules pondeuses (Jondreville et al 2010). La biodisponibilité de la CLD des sols étant proche de 100% on peut prédire que l'ingestion journalière de seulement 6 g de sol à 0.1mg CLD/kg conduit à une contamination du foie de l'ordre de 20 µg/kg frais. Or de tels sols sont habituellement considérés comme faiblement pollués et représentent la limite de culture des végétaux sensibles comme les racines et tubercules. Une étude menée en Martinique confirme, pour des canards utilisés pour désherber des vergers, que les oiseaux sont particulièrement sujets à la contamination par la CLD quand ils sont élevés sur sol pollué (Clostre et al 2013).

En conclusion, les élevages de volailles élevées en plein air à des fins commerciales ne devront en aucun cas être établis sur des sols pollués par la CLD. Les sols des bâtiments et des aires d'exercice devront *a minima* être recouverts d'une couche suffisante de matériaux solides ou stabilisés (ex tuf damé) pour exclure tout contact avec le sol pollué, ou avec de l'eau ou des aliments contaminés. Les mêmes recommandations pourront être faites pour les particuliers élevant des volailles pour leur consommation personnelle. Pour ceux qui ont déjà des volailles en plein air en zone polluée, il leur reste la possibilité de décontaminer leurs animaux pendant un à deux mois (pondeuses) ou deux à quatre mois (volailles non pondeuses) en les plaçant "hors sol" et en les alimentant avec des produits non contaminés (aliments du commerce, fruits d'arbres...). Ils devront par ailleurs éviter de

consommer les jaunes des œufs pondus par des volailles contaminées, y compris pendant la période de décontamination.

#### 4) Possibilités de décontamination des porcs

Les porcs élevés en plein air sont particulièrement exposés à la CLD, du fait de leur comportement fouisseur et de la consommation de racines et petits animaux (vers, mollusques, insectes) potentiellement très contaminés, s'accompagnant d'une ingestion probable de sol, dans des proportions inconnues.

Nous n'avons trouvé qu'une publication (Soine et al 1983) rapportant des mesures de CLD sanguine chez le porc, après une contamination expérimentale à un niveau provoquant une toxicité aigue caractérisée par des symptômes nerveux pendant les 3 à 5 premiers jours, suivant la dose (40 et 80 mg/kg vif). Les animaux ont été suivis pendant 35 jours et on vu leur concentration en CLD diminuer rapidement, avec une demi-vie de l'ordre de 2 (dose 80 mg/kg) à 4 semaines (dose 40 mg/kg). Cependant le niveau de contamination atteint, de l'ordre de 15 000 µg/l dans le sang, est probablement plus élevé de deux ou trois ordres de grandeur que ce que l'on peut s'attendre à observer dans les élevages familiaux. De plus, l'expérimentation portait sur un nombre très faible d'animaux (4 au total), ce qui ne permet pas d'émettre des préconisations à ce stade.

#### 5) Passage dans le lait de vache

La seule étude disponible à notre connaissance, publiée par Smith et Arant (1967), montre que la CLD est excrétée dans le lait quand les animaux reçoivent un aliment contaminé. Les auteurs ont administré pendant deux mois des rations contenant 0 ; 0.25 ; 0.5 ; 1.0 ou 5.0 ppm de CLD à des vaches laitières (2 individus par dose) et ils ont mesuré la CLD dans le lait pendant la phase d'exposition puis pendant deux mois après la fin de l'exposition. Ils rapportent que la concentration en CLD du lait augmente pendant les premières semaines proportionnellement à la dose ingérée et atteint 0.4 ppm pour la dose la plus élevée. Les quantités totales de nourriture consommée et de lait produit ne sont pas reportées dans la publication, il n'est donc pas possible de faire un bilan en masse de la proportion de CLD passant dans le lait. Par contre, les données graphiques fournies pour la phase suivant l'arrêt de l'exposition nous ont permis d'estimer la demi-vie de la CLD chez la vache laitière en lactation à environ 24 jours, soit environ la moitié de la demi-vie estimée chez des bovins non lactants. On peut donc en déduire que les vaches laitières de l'étude ont excrété des quantités de CLD grossièrement équivalentes par la voie foie-fèces et par la voie mamelle-lait. En corollaire, les jeunes mammifères sont potentiellement exposés à la CLD pendant la phase d'allaitement, à des niveaux significatifs, si leur mère est elle-même exposée à la CLD.

*Il conviendrait donc de surveiller le niveau de contamination des laits produits dans les zones polluées, s'ils sont destinés à la consommation humaine.*

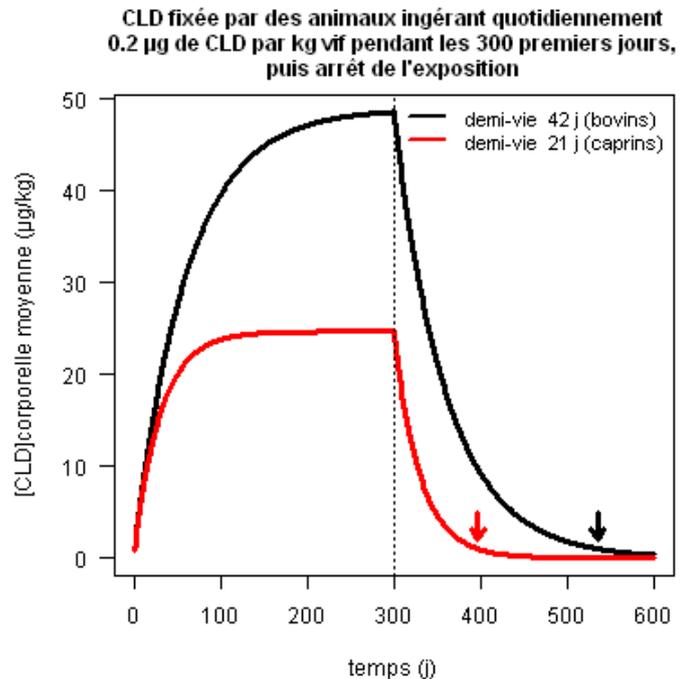
## Les apports de la modélisation pour l'évaluation des risques - premiers résultats en ruminants.

La connaissance des paramètres pharmacocinétiques de la CLD permet de modéliser l'évolution de la teneur moyenne en CLD corporelle d'un animal, en fonction du temps, selon les quantités journalières qu'il ingère. Un tel modèle permet en retour de quantifier les quantités journalières de CLD ingérées pour atteindre un seuil de contamination donné, et le temps nécessaire à sa décontamination.

À quantité de CLD ingérée constante, on calcule qu'en quelques mois le niveau de contamination atteint un plateau, quand les quantités excrétées, proportionnelles au niveau de contamination, deviennent équivalentes aux quantités ingérées. Ce plateau sera,

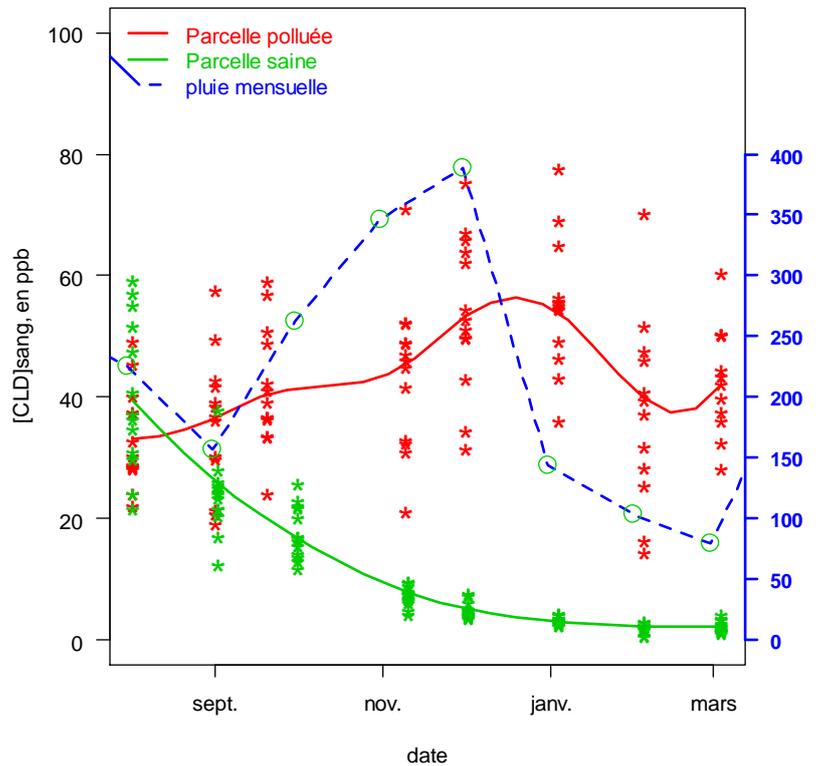
à capacité d'excrétion constantes, proportionnel aux quantités ingérées, alors qu'à quantité de CLD ingérée identique, il dépendra des capacités d'excrétion individuelles. Ceci explique que dans un même troupeau certains animaux présentent des niveaux de contamination différents, et peuvent par exemple dépasser nettement la LMR alors que d'autres se situent bien en dessous.

De même, soumis à un niveau d'exposition identique les caprins présenteront une charge corporelle en moyenne équivalente à la moitié seulement de celle des bovins, comme illustré sur la figure ci-contre (demi-vie des bovins 42 jours, en noir, demi-vie des caprins 21 jours, en rouge). Les flèches rouges (caprins) et noires (bovins), en bas à droite du graphique, indiquent le moment auquel la charge en CLD sera redescendue à 1 µg/kg vif en moyenne. Les caprins, deux fois moins contaminés en moyenne que les bovins, se décontamineront aussi relativement plus vite, et une durée de 3 mois après arrêt de l'exposition devrait être suffisante dans la plupart des cas.

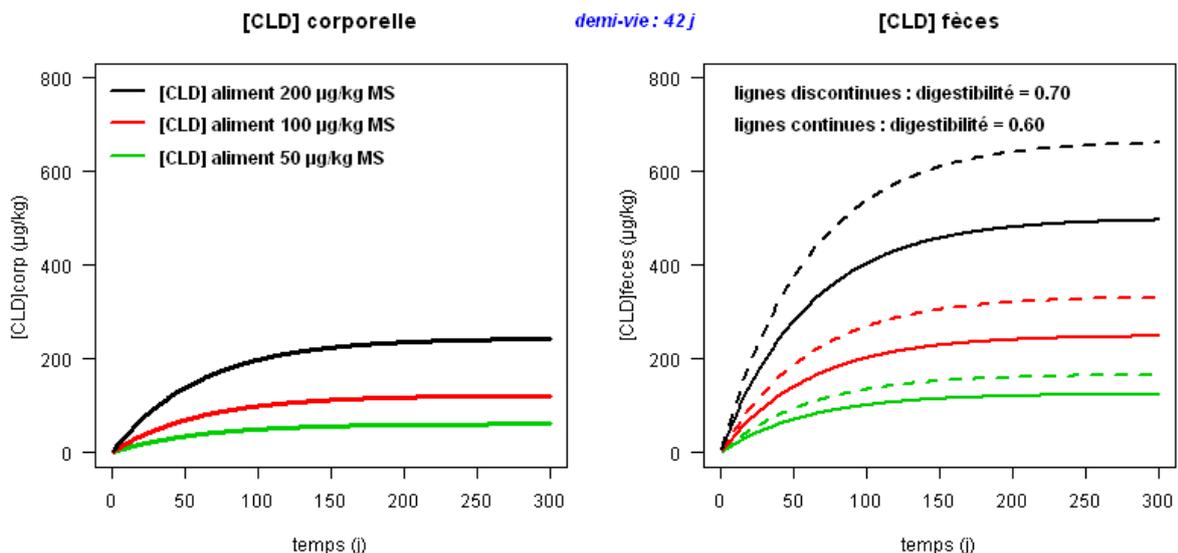


### suivi de [CLD]sang de bovins

Le plateau de charge en CLD corporelle étant théoriquement atteint en quelques mois, il est en pratique indépendant de l'âge réel des animaux, et on ne peut pas parler d'une bioaccumulation, au sens où celle-ci serait irréversible. Les données d'un suivi sur 9 mois d'animaux maintenus sur des pâturages pollués en Martinique montrent d'ailleurs des variations de leur niveau de CLD sanguine grossièrement corrélées à la pluviométrie, ce qui suggère que ce niveau traduit des variations de la CLD ingérée, peut-être suite à une ingestion de sol plus forte en conditions humide, suivi d'une baisse en saison sèche (coll DAAF971-éleveur-INRA), comme illustré par la figure ci-contre, courbe rouge.



À exposition constante, le niveau de contamination se stabilise après quelques mois, les sorties de CLD par les fèces équilibrant les entrées, quelque soit leur provenance (eau, sol ou fourrage). Les quantités de fèces (matière sèche) étant plus faibles que les quantités ingérées (digestibilité des fourrages entre 60 et 70%), la CLD y est alors 2 à 3 fois plus concentrée que dans les fourrages de départ, donc *a priori* plus facile à doser (graphiques ci-dessous). Ceci pourrait être mis à profit pour évaluer le risque de contamination au niveau parcellaire, si on est en mesure de prélever des fèces d'animaux séjournant en permanence sur la parcelle à caractériser depuis 6 mois ou plus. L'ordre de grandeur du niveau de contamination des animaux pourra être déduit de la [CLD] des fèces, le niveau de risque et la durée de décontamination des animaux pourront alors être évalués et rapportés à la parcelle.



## ***En résumé***

La Chlordecone (CLD) des sols pollués entre dans la chaîne alimentaire par transfert passif via la solution du sol dans les végétaux consommés, via les eaux d'abreuvement et via le sol ingéré volontairement ou non.

La biodisponibilité est très élevée, pratiquement 100% de la CLD ingérée est absorbée lors de la digestion. On retrouve la CLD dans tous les produits animaux, lait, œufs et viandes, avec une concentration relative plus forte dans le foie et les jaunes d'œufs. Ce rapport de concentration entre sang, muscle, foie et graisses n'a pu être évalué correctement que pour la poule pondeuse, et reste à préciser pour les mammifères en mettant en œuvre des méthodes de dosage de type POP09 ou ultérieures. La connaissance de ce rapport devrait permettre une prédiction *ante mortem* du niveau de contamination réel des animaux à partir de la mesure de la concentration sanguine en CLD.

Tous les animaux d'élevage terrestres semblent capables d'excréter la CLD via le foie et les fèces (seule voie pour les animaux hors femelles en reproduction), le lait et les œufs étant d'autres voies importantes de sortie pour les femelles. La vitesse de décontamination, exprimée par la demi-vie (temps nécessaire pour éliminer la moitié de la charge en CLD) présente une variabilité individuelle importante et dépend de l'espèce et du statut reproductif (de l'ordre de 6 semaines pour les bovins, 3 semaines pour les caprins, une semaine à une semaine et demie pour les poules pondeuses).

Les activités d'élevage des ruminants pour la production de viande restent possibles sur les sols pollués à condition d'intégrer dans le système d'élevage une période de décontamination avant abattage, d'une durée dépendant de l'espèce considérée (plus de 6 mois pour les bovins, plus de 3 mois pour les caprins). Ces modifications des systèmes d'élevages nécessiteront des investissements importants (décontamination en atelier hors-sol) ou une structuration de la filière, avec des élevages spécialisés naisseurs en zone polluée, des élevages engraisseurs hors zone polluée, et un partage équilibré de la valeur ajoutée.

Sous réserve que les dosages sur les fèces soient suffisamment fiables, il est envisageable d'entreprendre une cartographie des risques de contamination en mesurant la teneur en CLD de fèces de bovins pâturant une parcelle donnée depuis 6 mois ou plus, et en reliant ces mesures à la nature et à la teneur en CLD des sols.

## ***Références***

- Beyer W N, Connor E E and Gerould S 1994** Estimates of soil ingestion by wildlife. *Journal of Wildlife Management* 58, 375-382 <http://dx.doi.org/10.2307/3809405>
- Bouveret C 2012** Biodisponibilité relative du chlordecone de l'andosol et du nitisol chez les animaux d'élevage monogastriques. *Sciences agronomiques*. Université de Lorraine, Nancy, p. 181
- Clostre F, Lavigne A, Jurjanz S, Jondreville C, Dalibard C, Liabeuf J M and Lesueur-Jannoyer M 2013** Cinétiques de contamination et de décontamination de canards par la chlordécone pendant le contrôle

biologique des adventices dans un verger de goyaviers CIRAD  
[http://agents.cirad.fr/pjjimg/magalie.jannoyer@cirad.fr/2\\_5\\_canards\\_et\\_chlordecone\\_2013.pdf](http://agents.cirad.fr/pjjimg/magalie.jannoyer@cirad.fr/2_5_canards_et_chlordecone_2013.pdf)

- Fernandes P, Jannoyer-Lesueur M, Soler A, Achard R and Woignier T 2010** Effects of clay microstructure and compost quality on chlordecone retention in volcanic tropical soils : consequences on pesticide lability and plant contamination. 19th World Congress of Soil Science, Soil Solutions for a Changing World, Brisbane, Australia, pp. 50-53 <http://www.iuss.org/19th%20WCSS/Symposium/pdf/1472.pdf>
- Goudah A and Mounieir S M 2008** Comparative pharmacokinetics of difloxacin in goat kids and lambs. Small Ruminant Research 78, 186-192 <http://dx.doi.org/10.1016/j.smallrumres.2008.05.005>
- Hennessy D R, Sangster N C, Steel J W and Collins G H 1993a** Comparative pharmacokinetic disposition of closantel in sheep and goats. Journal of Veterinary Pharmacology and Therapeutics 16, 254-260
- Hennessy D R, Sangster N C, Steel J W and Collins G H 1993b** Comparative kinetic disposition of oxfendazole in sheep and goats before and during infection with *Haemonchus contortus* and *Trichostrongylus colubriformis*. Journal of Veterinary Pharmacology and Therapeutics 16, 245-353
- Hennessy D R, Sangster N C, Steel J W and Collins G H 1993c** Comparative pharmacokinetic behavior of Albendazole in sheep and goats. International Journal for Parasitology 23, 321-325  
ISI:A1993LJ33500005
- Javed I, Iqbal Z, Zia ur R, Khan M Z, Muhammad F, Aslam B, Sandhu M A and Sultan J I 2009** Disposition Kinetics and Optimal Dosage of Ciprofloxacin in Healthy Domestic Ruminant Species. Acta Veterinaria Brno 78, 155-162 <http://dx.doi.org/10.2754/avb200978010155>
- Jondreville C, Travel A, Besnard J, Dziurla M-A and Feidt C 2010** Intake of herbage and soil by free-range laying hens offered a complete diet compared to a whole-wheat diet. In: Duclos M, Nys Y (Eds.), XIIIth European Poultry Conference. World's Poultry Science Journal, Tours, France
- Jondreville C, Bouveret C, Lesueur-Jannoyer M, Rychen G and Feidt C 2013** Relative bioavailability of tropical volcanic soil-bound chlordecone in laying hens (*Gallus domesticus*). Environmental Science and Pollution Research 20, 292-299 <http://dx.doi.org/10.1007/s11356-012-1010-1>
- Mahieu M, Archimède H, Cabidoche Y-M and Iotti J 2012** Possibilités de décontamination de bovins contaminés par la Chlordécone. 9ème Journée Technique de l'AMADEPA, Martinique, p. 6 pp
- Shukla M, Singh G, Sindhura B G, Telang A G, Rao G S and Malik J K 2007** Comparative plasma pharmacokinetics of meloxicam in sheep and goats following intravenous administration. Comparative Biochemistry and Physiology C-Toxicology & Pharmacology 145, 528-532 <http://dx.doi.org/10.1016/j.cbpc.2007.01.020>
- Smith J C and Arant F S 1967** Residues of kepone in milk from cows receiving treated feed. Journal of Economic Entomology 60, 925-927
- Soine P J, Blanke R V, Guzelian P S and Schwartz C C 1982** Preferential binding of chlordecone to the protein and high density lipoprotein fractions of plasma from humans and other species. Journal of Toxicology and Environmental Health 9, 107-118
- Soine P J, Blanke R V and Schwartz C C 1983** Chlordecone metabolism in the pig. Toxicology Letters 17, 35-41
- Van Keulen J and Young B A 1977** Evaluation of Acid-Insoluble Ash as a Natural Marker in Ruminant Digestibility Studies. Journal of Animal Science 44, 282-287 <http://jas.fass.org/content/44/2/282>