

Exposition de la population française aux dioxines, furanes et PCB de type dioxines

Les dioxines (polychloro-dibenzo dioxines, PCDD) et les furanes (polychloro-dibenzo furanes, PCDF), sont des hydrocarbures aromatiques polycycliques chlorés. Il existe respectivement 75 et 135 congénères pour les PCDD et les PCDF selon le nombre et la position des atomes de chlore sur les cycles aromatiques. Ces molécules, généralement appelés « dioxines », sont très proches : forte stabilité thermique, insolubles dans l'eau mais très solubles dans les lipides, peu biodégradables. Ceci les classe dans les polluants organiques persistants (POPs).

Les PCB (polychlorobiphényles) sont également des composés aromatiques chlorés. Les 209 congénères formant cette famille sont peu biodégradables et ont une forte stabilité chimique et physique comme les dioxines. À la différence des dioxines qui apparaissent au cours des processus thermiques, les PCB étaient utilisés dans l'industrie et l'agriculture jusque dans les années 70. Certains PCB ayant la même toxicité que les dioxines sont appelés PCB de type dioxines (PCB-DL).

Ceci permet de leur attribuer un facteur d'équivalence toxique (TEF) de même qu'aux dioxines et de faciliter ainsi l'estimation de l'exposition au mélange PCDD/F-PCB-DL grâce à un modèle additif (OMS, 1998). 17 congénères de dioxines et 12 de PCB-DL reconnus comme biologiquement actifs possèdent un facteur reflétant leur toxicité. La toxicité d'un mélange de différents congénères peut ainsi être estimée en pondérant la masse de chacun d'eux par leur TEF.

La voie principale d'exposition par les dioxines et PCB-DL est la voie alimentaire (90 %). Les aliments riches en lipides, notamment d'origine animale, sont les principaux vecteurs.

Une première estimation de l'exposition française aux dioxines seules a été réalisée en 2000 (CSHPF/AFSSA, 2000). Compte-tenu de la décroissance des émissions en France, de la prise en compte au niveau international des PCB-DL dans l'estimation totale de ce type de molécules ainsi que de la réévaluation des TEF par l'OMS, l'estimation de l'exposition française aux dioxines, furanes et PCB-DL a été actualisée, utilisant une enquête plus récente de consommation alimentaire pour la population française.

MATÉRIEL ET MÉTHODE

Données de contamination des aliments

Elles proviennent principalement des plans de surveillance et de contrôle de la Direction générale de l'alimentation (DGAL) pour tout ce qui concerne les denrées animales. Les données sur le lait de ces plans ont été complétées par les données fournies par le Centre national interprofessionnel de l'économie laitière (CNIEL). Les données concernant les produits végétaux ont été fournies par la Direction générale de la concurrence, de la consommation et de la répression des fraudes (DGCCRF) à l'exception des produits céréaliers qui ont fait l'objet d'un échantillonnage particulier.

En tout, 797 échantillons d'aliments ont été analysés. La quasi totalité était des produits animaux, dont pratiquement 2/3 de produits de la mer.

Les analyses ont été effectuées selon la directive 2002/69/CE de la Commission européenne.

Données de consommation alimentaire

Ces données proviennent de l'enquête INCA (Individuelle et Nationale sur les Consommations Alimentaires) qui s'est déroulée d'août 1998 à juin 1999 en France métropolitaine (Volatier et al., 2000). Elle recueille toutes les prises alimentaires des individus pendant une semaine entière. Les données de consommation alimentaire ont été obtenues à partir de carnets de consommation, renseignés sur une période de 7 jours consécutifs, l'identification des aliments et des portions étant facilitée par un cahier photographique. La nomenclature des aliments de cette enquête se base sur celle utilisée dans les tables de composition ; elle contient environ 1 000 codes d'aliments répartis en 44 groupes.

L'enquête a été réalisée auprès de 3 003 individus, enfants et adultes, représentatifs de la population française. La représentativité nationale de l'échantillon a été assurée par stratification (région d'habitation et taille d'agglomération) et par la méthode des quotas (âge, sexe, PCS individuelle et taille du ménage).

L'échantillon des adultes comprend 1 985 individus de 15 ans et plus. Les calculs ne portent que sur les 1 474 adultes normo-évaluants c'est-à-dire dont les

apports énergétiques sont plausibles compte tenu de leurs besoins. L'échantillon des enfants regroupe 1 018 individus âgés de 3 à 14 ans. Il n'y a pas, dans cette étude, de données disponibles sur les enfants de moins de 3 ans.

Dans cette enquête alimentaire, le poids et la taille de pratiquement tous les participants ont été relevés. L'estimation de l'exposition alimentaire aux dioxines et PCB a été effectuée sur ces deux tranches d'âge : les enfants et les adultes, puis pour la vie entière.

Recettes

À partir de la base RECIPE des recettes des aliments de la nomenclature INCA (Calamassi, 2004), le lien entre les recettes des aliments complexes (constitués par plusieurs ingrédients) et les produits consommés de l'enquête INCA a pu être établi. On a ainsi disposé, pour chaque enquêté, de la somme de ses consommations, non plus par types d'aliments (viennoiseries, plats composés...) mais par catégories d'ingrédients (légumes, céréales, viandes...) Ceci permet de prendre en compte non seulement les aliments tels que consommés (steak haché de bœuf par exemple) mais aussi les ingrédients (beurre dans une pâtisserie) pouvant apporter des dioxines, ce qui nous rapproche ainsi d'une exposition alimentaire complète.

Estimation de l'exposition

L'exposition alimentaire a été calculée par une méthode déterministe standard pour mesurer les expositions cumulées d'origine alimentaire (OMS, 1997). À partir des consommations alimentaires propres à chaque enquêté et du vecteur de contamination des différents aliments, on obtient l'exposition de chaque personne pour chaque aliment. Pour estimer cette exposition par kilogramme de poids corporel (kg p.c.), cette valeur est divisée par le poids de chaque consommateur. Cette méthode peut être décrite par la formule suivante pour chaque individu :

$$E_i = \frac{\sum_j C_{ij} T_j}{P_i}$$

Où :

P_i est le poids de l'individu i .

C_{ij} est la consommation de l'aliment j par l'individu i .

T_j est la contamination moyenne en PCDD/F ou PCB-DL de l'aliment j .

RÉSULTATS

Données de contamination

Les moyennes de contamination par groupes d'aliments sont présentées dans le tableau 1. Sont indiqués à la fois les moyennes basses (lowerbound) c'est-à-dire pour lesquelles les valeurs inférieures à la limite de détection ont été remplacées par des valeurs nulles, et les moyennes hautes (upperbound) où ces valeurs sont remplacées par la valeur de la limite de détection.

Ces données ne montrant pas de différence significative entre valeurs hautes et valeurs basses, ce sont les valeurs basses qui ont servi aux calculs d'exposition. Les valeurs sont exprimées en pg TEQ/g de poids brut (PB) pour les produits de la mer et les végétaux ou en pg TEQ/g de matière grasse (MG) pour la viande, les produits laitiers et les œufs.

En ce qui concerne la viande, les produits laitiers ou les œufs, la concentration moyenne en PCDD/F + PCB-DL se situe autour de 1 pg TEQ/g MG, à l'exception du foie (2,5 pg TEQ/g MG). La viande ovine a le niveau le plus élevé avec 1,5-1,75 pg TEQ/g MG et la viande de porc le plus faible (0,4-0,6 pg TEQ/g MG), les PCB-DL représentant environ 85 % du total. Dans les produits laitiers ou les œufs, les proportions PCDD/F – PCB-DL sont moins déséquilibrées (respectivement 30 %-70 % et 45 %-55 %).

Les poissons et autres produits de la mer sont les aliments les plus contaminés. La moyenne de contamination des poissons varie entre 2,7 et 2,9 pg TEQ/g PB, à l'exception des truites d'aquaculture (0,75 pg TEQ/g PB). Les PCB-DL représentent 80 à 85 % du total. Les autres produits de la mer ont une contamination moyenne qui varie entre 0,73 et 1,34 pg TEQ/g PB dont 55 à 75 % de PCB-DL.

Tableau 1 : Moyenne de contamination des 21 groupes d'aliments par les PCDD/F ou les PCB-DL ou les PCDD/F+PCB-DL exprimée en pg TEQ/g de produit brut (PB) ou de matière grasse (MG) (indiqué par * et valeur en italique)

Groupe d'aliments	Nombre d'échantillons analysés	PCDD/F	PCDD/F	PCB-DL	PCB-DL	Total	Total
		(en pg TEQ/g MG ou PB) (Écart-type)	PCDD/F+PCB-DL (en pg TEQ/g MG ou PB)	PCDD/F+PCB-DL (en pg TEQ/g MG ou PB)			
		Lowerbound (ND=0)	Upperbound (ND=LD)	Lowerbound (ND=0)	Upperbound (ND=LD)	Lowerbound (ND=0)	Upperbound (ND=LD)
Poissons sauvages mer	211	0,42 (0,79)	0,42 (0,79)	2,29 (6,51)	2,29 (6,51)	2,72	2,72
Poissons élevages mer	90	0,56 (0,33)	0,56 (0,33)	2,33 (2,40)	2,33 (2,40)	2,89	2,89
Truites aquacultures	58	0,17 (0,12)	0,17 (0,12)	0,58 (0,33)	0,58 (0,33)	0,75	0,75
Poissons eau douce autres	8	0,38 (0,51)	0,38 (0,51)	2,35 (3,05)	2,35 (3,05)	2,73	2,73
Mollusques (moules, huîtres)	55	0,39 (0,41)	0,40 (6,97)	0,94 (1,49)	0,94 (1,49)	1,34	1,34
Céphalopodes	25	0,18 (0,19)	0,18 (0,19)	0,55 (1,00)	0,55 (1,00)	0,73	0,73
Crustacés	18	0,57 (0,85)	0,57 (0,85)	0,70 (1,11)	0,70 (1,11)	1,28	1,28
Viandes*	17	0,24 (0,19)	0,36 (0,25)	0,74 (0,61)	0,74 (0,61)	0,99	1,11
• bovines*	7	0,41 (0,14)	0,42 (0,21)	0,77 (0,23)	0,77 (0,23)	1,18	1,18
• ovines*	4	0,25 (0,08)	0,50 (0,33)	1,25 (0,66)	1,25 (0,66)	1,50	1,75
• porcines*	6	0,05 (0,02)	0,21 (0,18)	0,37 (0,71)	0,37 (0,70)	0,42	0,59
Foies*	39	1,23 (1,21)	1,26 (1,21)	1,29 (2,35)	1,29 (2,35)	2,52	2,55
Volailles*	38	0,31 (0,25)	0,39 (0,28)	0,56 (0,73)	0,56 (0,73)	0,87	0,95
Œufs*	91	0,48 (0,61)	0,51 (0,62)	0,58 (1,98)	0,58 (1,98)	1,05	1,08
Beurre*	7	0,29 (0,03)	0,29 (0,03)	0,52 (0,13)	0,52 (0,13)	0,82	0,82
Lait*	95	0,36 (0,13)	0,38 (0,13)	0,74 (0,28)	0,74 (0,28)	1,10	1,12
Fruits	9	0,01 (0,00)	0,01 (0,01)	0,01 (0,01)	0,01 (0,01)	0,01	0,02
Légumes	7	0,01 (0,00)	0,01 (0,01)	0,01 (0,00)	0,01 (0,00)	0,01	0,02
Pains	10	0,01 (0,01)	0,01 (0,01)	0,00 (0,00)	0,00 (0,00)	0,01	0,01
Riz	5	0,00 (0,00)	0,00 (0,00)	0,01 (0,01)	0,01 (0,01)	0,01	0,01
Pâtes	4	0,00 (0,00)	0,00 (0,00)	0,00 (0,00)	0,00 (0,00)	0,00	0,00
Céréales	2	0,01 (0,00)	0,01 (0,00)	0,00 (0,00)	0,00 (0,00)	0,01	0,01
Huiles végétales*	6	0,07 (0,01)	0,17 (0,03)	0,18 (0,04)	0,18 (0,04)	0,25	0,36
Huiles de poissons*	2	0,57 (0,16)	0,74 (0,11)	0,35 (0,46)	0,35 (0,46)	0,92	1,09

Pour les produits végétaux, la concentration en PCDD/F+PCB-DL n'excède pas les 0,01 pg TEQ/g PB.

Les aliments non analysés (eaux, boissons alcoolisées ou non, produits sucrés, condiments...) sont considérés, d'après la littérature, sans teneur significative en PCDD/F ou PCB-DL.

Comparés aux valeurs utilisées en 1999 pour l'estimation précédente, les niveaux de contamination des poissons ont peu évolué. En revanche, la baisse est assez importante pour les produits laitiers et carnés : de 2 à 3 fois moins pour les abats ou le porc, ainsi que pour les œufs, le lait ou le beurre.

Estimation de l'exposition aux PCDD/F : comparaison des résultats des études 2000 et 2005

En 2000, l'exposition totale aux dioxines et furanes était estimée à 1,31 pg TEQ/kg p.c./jour. En 2005, la même exposition est estimée à 0,53 pg TEQ/kg p.c./jour, soit une diminution d'environ 60 % [tableau 2].

Cette réduction de l'exposition peut être mise en relation avec la forte baisse des émissions de dioxines dans la même période (CITEPA, 2005).

De plus, de part la réévaluation des facteurs de toxicité (en TEQ_{OTAN} en 2000 et en TEQ_{OMS 98}⁽¹⁾ en 2005) et l'utilisation de données de consommation alimentaire plus récente (enquête ASPCC en 2000, enquête INCA en 2005),

on peut estimer que l'ampleur de cette baisse est plutôt sous-évaluée.

La diminution de l'exposition totale est due à une baisse de l'exposition pour chaque groupe de produits [figure 1].

En 2000, les deux plus forts contributeurs étaient les produits laitiers (40,5 % de l'exposition totale) et les produits de la mer (24,4 %). En 2005, les produits animaux sont toujours les contributeurs majeurs (85 % du total) mais les poissons sont maintenant prédominants (presque 45 % de l'ingestion totale). En général, les produits terrestres ont enregistré une plus forte baisse. La réduction des émissions au début des années 2000 a donc eu davantage d'impact sur ces produits. La source de dioxines pour les produits marins réside sans doute dans des réservoirs intermédiaires (sédiments) qui apportent une inertie importante aux évolutions.

Estimation de l'exposition aux PCDD/F et aux PCB-DL

Le même calcul a été effectué pour estimer l'exposition totale aux dioxines, furanes et PCB de type dioxines [tableau 3].

L'exposition moyenne chez les adultes est estimée à 1,8 pg TEQ/kg p.c./jour (médiane à 1,5 pg TEQ/kg p.c./j) et à 2,8 pg TEQ/kg p.c./jour (médiane à 2,4 pg TEQ/kg p.c./j) chez les enfants. Ce niveau nettement plus important pour les 3-14 ans est à relier à leur niveau de consommation alimentaire plus élevé

Tableau 2 : Comparaison des niveaux d'expositions aux PCDD/F entre l'étude CSHPF/Afssa 2000 et l'étude Afssa 2005

Classe d'aliments	Enquête de consommation ASPCC			Enquête de consommation INCA		
	CSHPF/Afssa 2000			Afssa 2005		
	Exposition moyenne aux dioxines		% contribution	Exposition moyenne aux dioxines		% contribution
(pg TEQ _{OTAN} /pers/jour)	(pg TEQ _{OTAN} /kg p.c./jour)	(pg TEQ _{OMS} /pers/jour)		(pg TEQ _{OMS} /kg p.c./jour)		
Produits de la mer	17,22	0,32	24,4	13,97	0,24	44,7
Produits laitiers	25,81	0,53	40,5	8,87	0,15	29,1
Produits carnés	9,83	0,20	15,3	3,24	0,06	10,5
Œufs	4,04	0,08	6,1	0,77	0,01	2,5
Matières grasses	0,52	0,01	0,8	0,36	0,01	1,1
Produits céréaliers	2,21	0,05	3,8	1,94	0,03	6,4
Fruits et légumes	6,12	0,12	9,2	1,78	0,03	5,7
Total général	65,73	1,31	100,0	30,93	0,53	100,0

⁽¹⁾ Une ré-évaluation des TEQ-OMS a été effectuée en 2005 (Van den Berg, 2006).

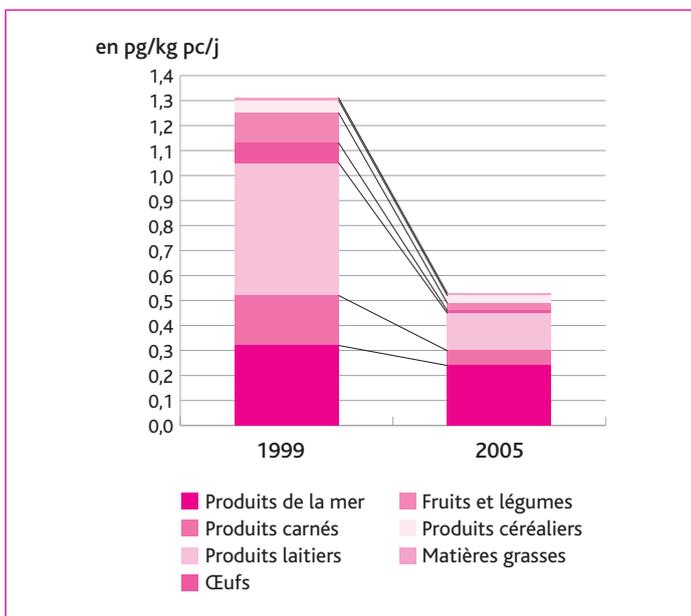


Figure 1 : Comparaison des niveaux d'exposition aux PCDD/F, estimés en 1999 et 2005 pour la population générale pour les 7 classes d'aliments

proportionnellement à leur poids. Pour l'une et l'autre des populations, la part des PCB-DL est prépondérante dans l'exposition totale : environ 70 % de l'ensemble. Les plus forts contributeurs sont les produits laitiers et les produits de la mer ; les produits laitiers chez les enfants (43 %) et les produits de la mer chez les adultes (48 %). Les produits animaux qui ont pu bio-accumuler les PCDD/F et les PCB-DL, représentent 85 à 87 % de l'apport total [figure 2]. L'estimation de l'exposition cumulée vie entière montre que 20 à 28 % de la population dépasse la dose journalière tolérable provisoire du JECFA de 2,33 pg TEQ/kg p.c./j.

DISCUSSION ET CONCLUSION

Sur les 800 analyses effectuées, très peu dépassent les teneurs maximales fixées par le règlement (CE) n°199/2006. Ceci est probablement dû au déclin des émissions atmosphériques depuis la fin des années 1990.

Il en résulte que les expositions aux dioxines ont largement diminué en 5 ans. Ainsi, l'exposition de pratiquement toute la population adulte est inférieure au seuil de 1 pg TEQ/kg pc/j fixé en 1991, l'exposition des enfants étant toujours trop importante pour les plus forts consommateurs. Par contre, en ce qui concerne l'exposition totale (PCDD/F+PCB-DL), les forts consommateurs adultes et la majorité des enfants dépassent la DJT de 2,33 µg/kg pc/j (JECFA, 2001). Considérant l'inclusion récente des PCB-DL dans la DJT et leur part dans l'exposition totale (environ 70 %), les efforts de réduction doivent aujourd'hui porter également sur les PCB-DL. Ceci implique d'établir des valeurs limites dans les aliments pour l'ensemble des PCB-DL ainsi que l'UE vient de le mettre en œuvre (Texte n°2006/88/CE du 06/02/2006).

Il faut également remarquer que les résultats présentés s'appuient sur des données datant de 2001 à 2004. Au vu de l'évolution rapide des expositions, on peut supposer que l'exposition est aujourd'hui inférieure à cette estimation. Il est relativement difficile de comparer différentes études entre elles mais les résultats français sont cohérents avec les valeurs d'exposition retrouvées dans d'autres pays européens : Pays-Bas (Baars et al., 2004), Espagne (Fernandez et al., 2004), Royaume-Uni (FSA, 2003), Finlande (Kiviranta et al., 2004), Italie (Fattore et al., 2006).

Une telle étude devra être renouvelée afin de mettre en évidence les futures évolutions de l'exposition de la population française.

Tableau 3 : Estimation de l'exposition journalière aux PCDD/F+PCB-DL, PCDD/F et PCB-DL pour les adultes et les enfants

Population	Exposition totale en pg TEQ _{OMS} /kg pc/j					% Contribution
	Moyenne	Médiane	Écart-type	p90	p95	
Adultes	1,8	1,5	1,1	3,1	3,9	
PCDD/F	0,5	0,5	0,3	0,9	1,1	30,6
PCB-DL	1,2	1,0	0,8	2,2	2,8	69,4
Enfants	2,8	2,4	1,6	4,8	6,0	
PCDD/F	0,9	0,8	0,4	1,5	1,8	31,8
PCB-DL	1,9	1,6	1,1	3,3	4,2	68,2

RÉFÉRENCES

- Afssa (2005). Rapport Dioxines, furanes et PCB de type dioxine : évaluation de l'exposition de la population française. Téléchargeable sur le site www.afssa.fr.
- Baars A.J., Bakker M.I., Baumann R.A., Boon P.E., Freijer J.I., Hoogenboom L.A.P., Hoogerbrugge R., van Klaveren J.D., Liem A.K.D., Traag W.A., de Vries J. (2004). Dioxins, dioxin-like PCBs and non-dioxin-like PCBs in foodstuffs: occurrence and dietary intake in The Netherlands. *Toxicology letters* 151, 51-61.
- Calamassi G. (2004). Présentation de RECIPE base de recettes de la nomenclature INCA. Note Afssa/OCA/GCT/2004-38.
- CIQUAL (1995). Répertoire général des aliments, table de composition. Éditions Tec&Doc, 897 pages.
- CITEPA (2005). Inventaire des émissions de polluants atmosphériques en France – format SECTEN, février 2005, téléchargeable sur www.citepa.org
- CSHPF/Afssa (2000). Dioxines : données de contamination et d'exposition de la population française. Rapport rédigé dans le cadre du groupe de travail « Contaminants et phytosanitaires » du Conseil Supérieur d'Hygiène Publique de France Section Alimentation et Nutrition. Rapport publié par l'Afssa – téléchargeable sur www.afssa.fr
- Fattore E., Fanelli R., Turrini A., di Domenico A., 2006. Current dietary exposure to polychlorodibenzo-p-dioxins, polychlorodibenzofurans, and dioxin-like polychlorobiphenyls in Italy. *Molecular Nutrition and Food Research* 50(10): 915-21.
- Fernández M.A., Gómara B., Bordajandi L.R., Herrero L., Abad E., Abalos M., (2004). Dietary intakes of polychlorinated dibenzo-p-dioxins, dibenzofurans and dioxin-like polychlorinated biphenyls in Spain. *Food Addit Contam* 21: 983-991.
- FSA (2003). Dioxins and dioxin-like PCBs in the UK diet: 2001 total diet study samples. www.food.gov.uk/science/surveillance/. Report 38/03.
- JECFA (2001). Summary of the fifty-seventh meeting of the Joint FAO/WHO Expert committee on Food additives. Rome. 5-14 June 2001.
- Kiviranta H., Ovaskainen M-L., Vartiainen T. (2004). Market basket study on dietary intake of PCDD/Fs, PCBs, and PBDEs in Finland. *Environment International*, 30, 923-932.
- OMS (1997). Report of the joint FAO/WHO consultation on food consumption and exposure assessment of chemicals. February 10-14, 1997, Geneva.
- OMS (1998). Executive summary : Assessment of the health risk of dioxins: re-evaluation of the tolerable daily intake (TDI). WHO Consultation, May 25-29, 1998, Geneva.
- Van den Berg M., Birnbaum L., Bosveld A.T., Brunstrom B., Cook P., Feeley M., Giessy J.P., Hanberg A., Hasegawa R., Kennedy S.W., Kubiak T., Larsen J.C., van Leeuwen F.X., Liem A.K., Nolt C., Peterson R.E., Poellinger L., Safe S., Schrenk D., Tillitt D., Tysklind M., Younes M., Waern F., Zacharewski T. (1998). Toxic equivalency factors (TEFs) for PCBs, PCDDs, PCDFs for humans and for wildlife. *Environ. Health Perspect.*, 106 (12), 775-792.
- Van den Berg M., Birnbaum L., Denison M., De Vito M., Farland W., Feeley M., Fiedler H., Hakansson H., Hanberg A., Haws L., Rose M., Safe S., Schrenk D., Tohyama C., Tritscher A., Tuomisto J., Tysklind L., Walker N., Peterson R. (2006). The 2005 WHO Re-evaluation of human and mammalian toxic equivalency factors for dioxins and dioxin-like compounds, *ToxSci Advance Access*, July 7, 2006.
- UE, texte n°2006/88/CE du 06/02/2006. Recommandation de la Commission du 6 février 2006 sur la réduction de la présence de dioxines, de furanes et de PCB dans les aliments pour animaux et les denrées alimentaires [notifiée sous le numéro C (2006) 235]. Paru au JOCE le 14/02/2006.
- Volatier J.L. (2000). Enquête Individuelle et Nationale sur les Consommations Alimentaires. ISBN : 2-7430-0426-6. Editions Tec&Doc, 158 pages.

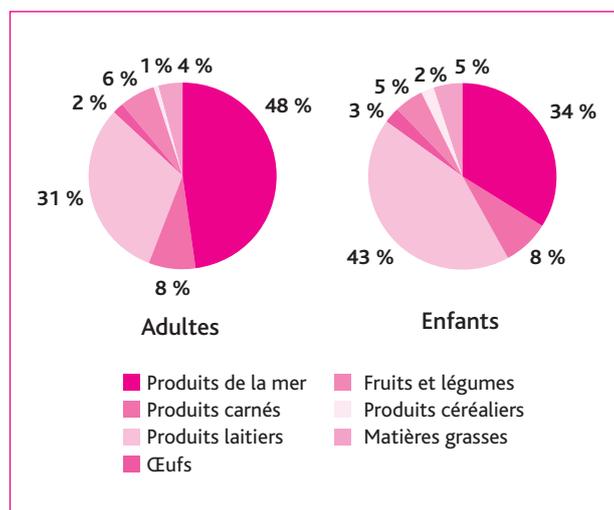


Figure 2 : Contribution relative des 7 classes d'aliments à l'exposition totale PCDD/F + PCB-DL pour les adultes et les enfants