

# ETAT DES LIEUX DE LA CONTAMINATION DES POULETS DE CHAIR PAR DES POLLUANTS ORGANIQUES PERSISTANTS, LES RETARDATEURS DE FLAMME BROMES

Adeline Huneau-Salaün<sup>1</sup>, Angélique Travel<sup>2</sup>, Ronan Cariou<sup>3</sup>, Loïc Balaine<sup>1</sup>, Christophe Souchet<sup>2</sup>, Rodolphe Thomas<sup>1</sup>, Anaïs Vénisseau<sup>3</sup>, Jenna Coton<sup>1</sup>, Philippe Marchand<sup>3</sup>, Gaud Dervilly-Pinel<sup>3</sup>, Bruno Le Bizec<sup>3</sup>, Catherine Jondreville<sup>4</sup>, Sophie Le Bouquin<sup>1</sup>

<sup>1</sup>ANSES - Laboratoire de Ploufragan-Plouzané - BP 53, 22440 Ploufragan, France ;

<sup>2</sup>ITAVI, Unité de Recherches Avicoles, Centre INRA de Tours, 37380 Nouzilly, France;

<sup>3</sup>LUNAM Université, Oniris, Laboratoire d'Etude des Résidus et Contaminants dans les Aliments (LABERCA), USC INRA 1329, 44307 Nantes, France;

<sup>4</sup>INRA, Université de Lorraine, USC340, URAFPA, Unité de Recherches Animal et Fonctionnalités des Produits Animaux, 54500 Vandoeuvre-lès-Nancy, France

[adeline.huneau@anses.fr](mailto:adeline.huneau@anses.fr)

## RÉSUMÉ

Les Retardateurs de Flamme Bromés (RFB) sont des substances chimiques ignifuges incorporées notamment dans les matériaux isolants de construction. Ces produits lipophiles sont susceptibles de s'accumuler dans les tissus animaux et d'être ingérés par les consommateurs. Bien que leur concentration dans les aliments ne soit pas réglementée, ces substances sont des polluants organiques persistants suspectés d'être des perturbateurs endocriniens. L'un des objectifs du projet Braviporc est de quantifier certains RFB dans les produits avicoles et porcins et d'en identifier les sources potentielles dans l'environnement d'élevage. Une étude a donc été menée en 2014 et 2015 dans 57 élevages français de poulets de chair (27 conventionnels, 22 biologiques et 8 plein-air) pour déterminer la concentration dans le muscle de deux familles de RFB (l'hexabromocyclododécane, HBCD et les polybromodiphényléthers, PBDE). Pour chaque troupeau, durant la dernière semaine d'élevage, 5 échantillons de muscle pectoral ont été prélevés et poolés. Les concentrations de 8 congénères de PBDE et 3 stéréoisomères d'HBCD dans la matière grasse du muscle ont été déterminées respectivement par chromatographie en phase gazeuse couplée à la spectrométrie de masse haute résolution (GC-HRMS) et par chromatographie liquide couplée à la spectrométrie de masse en tandem (LC-MS/MS). Les résultats montrent que 54% des échantillons de muscle ne présentent aucune trace d'HBCD et 28% aucune trace de PBDE. Une fréquence significativement plus élevée d'isolement de RFB est notée dans les échantillons provenant d'élevages alternatifs que de conventionnels. Il est difficile de déterminer si cet écart est lié à l'âge des animaux plus élevé en système alternatif, à une différence de génétique ou à l'accès à un parcours extérieur. La conception des poulaillers est aussi différente entre conventionnels et alternatifs mais pas pour les matériaux d'isolation qui sont les plus susceptibles de contenir des RFB. Lorsque des RFB sont détectés, ils le sont à des concentrations faibles, quel que soit le système d'élevage, et comparables aux résultats observés depuis 2011 dans les plans de surveillance français. Ce travail vient confirmer que la viande de poulet est un faible contributeur à l'exposition humaine aux RFB via l'alimentation en France.

## ABSTRACT : Brominated Flame Retardants in broilers

Brominated Flame Retardants (BFR) are primarily used as additive flame retardants in insulating materials. These lipophilic compounds may bioaccumulate in animal tissues leading to human exposition via food consumption. Although their concentration in food is not yet regulated, these persistent organic pollutants are suspected to act as endocrine disruptors. The present study aimed at quantifying two families of RFB (hexabromocyclododecane, HBCDD and polybrominated diphenyl ethers, PBDE) in chicken meat and to identify potential sources of RFB in broilers' environment. In 2014 and 2015, an epidemiological study was carried out in 57 broiler farms (27 conventional, 22 organic and 8 free-range farms) in France. During the last week of rearing, 5 samples of pectoral muscle were pooled in a single sample. Eight PBDE-congeners and 3 HBCDD-stereoisomers were quantified in muscle fat using Gas Chromatography – High Resolution Mass Spectrometry (GC-HRMS) and High-Performance Liquid Chromatography – tandem Mass Spectrometry (HPLC-MS/MS) respectively. Respectively 54% and 28% of the muscle samples did not show a trace of HBCD and PBDE. BFR were more frequently detected in samples from free-range and organic farms than from conventional ones. The difference observed between alternative and conventional systems may be linked to the older age of free-range broilers, to a difference in the genetic strains used in the both types of farms or to the access at an open-air range. Poultry house construction was also different in alternative and conventional systems but not for insulating materials that are the most likely to contain BFR. When BFR were detected the concentration was low whatever the type of farm considered and similar as those reported in the French surveillance program. This work confirms that chicken meat is a low contributor to the food-born exposition of human to BFR in France.

## INTRODUCTION

Les retardateurs de flamme bromés (RFB) sont des substances chimiques incorporées dans certains matériaux de construction pour leur conférer une propriété ignifuge. Certains sont listés parmi les Polluants Organiques Persistants (POP) (Convention de Stockholm, 2014) en raison de leur persistance dans l'environnement, leur bioaccumulation dans les tissus lipidiques des organismes vivants et leur toxicité pour l'homme et la faune. A faible dose, ces composés sont considérés comme des neurotoxiques et des perturbateurs endocriniens. La consommation d'aliments contaminés serait la principale voie d'exposition humaine à ces produits, avec l'ingestion de poussières dans l'environnement intérieur (EFSA 2011a, b). De ce fait, la présence de plusieurs RFB (hexabromocyclododécane, HBCD ; polybromodiphényléthers PBDE et polybromobiphényles, PBB) est recherchée dans les produits animaux depuis 2008 dans le cadre de plans de surveillance européens. Les plans français en 2008 et 2009 ont révélé l'existence, très rare, d'œufs et de viandes de volailles contaminés par les HBCD à des niveaux plus de 1000 fois supérieurs au bruit de fond habituel. Bien qu'il n'y ait actuellement aucune valeur maximale réglementaire pour les RFB dans les aliments, l'existence de produits avec d'aussi fortes concentrations pose un problème réel pour la sécurité sanitaire des consommateurs (Anses, 2011 et 2012). Le projet BrAviPorc a été développé afin de mieux comprendre les modalités de transfert des RFB de l'environnement vers les produits animaux pour prévenir les contaminations. Dans ce cadre, une étude a été menée en 2014 et 2015 en élevages de poudeuses, de poulets de chair et de porcs afin de mesurer les concentrations en HBCD et PBDE dans les œufs et les muscles. Cet article présente les résultats obtenus pour les troupeaux de poulets de chair.

## 1. MATERIELS ET METHODES

### 1.1. Elevages enquêtés

L'étude a porté sur 57 élevages de poulets de chair (27 conventionnels, 22 biologiques et 8 plein-air) situés dans toute la France. L'échantillon d'élevages a été stratifié sur le mode de production (50% conventionnel, 50% alternatif). Au niveau géographique, cinq zones de production ont été définies (Bretagne, Pays de la Loire, Rhône-Alpes, Aquitaine et le reste de la France) puis le nombre d'élevages à enquêter par zone a été déterminé proportionnellement à la part de chaque région dans les productions de poulet conventionnel et alternatif en France (Figure 1). Les élevages ont été

sélectionnés aléatoirement parmi les adhérents des différents groupements de production ayant accepté de participer à ce projet. Les élevages ont été enquêtés durant la dernière semaine d'élevage, à raison d'un lot par exploitation.

### 1.2. Prélèvements et collecte des informations

Chaque élevage a été visité par un enquêteur de l'ITAVI ou de l'Anses entre septembre 2014 et avril 2015. Un questionnaire a été complété avec l'éleveur sur le poulailler (âge, type de matériaux, état et entretien) et la conduite d'élevage des animaux. Cinq poulets ont été euthanasiés pour prélever un échantillon d'un moins 25 g de muscle pectoral et un échantillon d'au moins 10 g de graisse viscérale. De plus, des échantillons d'aliment et de poussières (2 chiffonnettes sur les parois du poulailler) ont été récoltés. Les cinq échantillons de muscle ont été rassemblés en un seul échantillon conservé au froid négatif avant analyse. Les échantillons de graisse, d'aliment et de poussières ont été stockés pour être analysés en seconde intention en cas de détection d'une concentration élevée de RFB dans les muscles correspondants.

### 1.3. Méthodes d'analyse

Conformément aux recommandations de l'Anses (2012), deux familles de RFB ont été recherchées dans la matière grasse (MG) du muscle : les PBDE et l'HBCD. Après lyophilisation, la matière grasse contenant les composés d'intérêt a été extraite par un mélange de solvants organiques (toluène/acétone 70:30, v/v) sous pression (100 bars) et à chaud (120 °C). L'extrait a ensuite été purifié suivant une succession de colonnes d'extraction sur phase solide contenant de la silice acide et du Florisil®, aboutissant à la collecte de deux fractions (PBDE et HBCD). Une purification supplémentaire a eu lieu, sur colonne de charbon pour la fraction PBDE ou par partage liquide/liquide entre hexane et soude 1 N pour la fraction HBCD. Les concentrations de 8 congénères de PBDE (BDE-28, 47, 99, 100, 153, 154, 183, 209) et de 3 stéréoisomères d'HBCD ( $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\gamma$ ) ont été déterminées respectivement par chromatographie en phase gazeuse couplée à la spectrométrie de masse haute résolution (GC-HRMS) et par chromatographie liquide couplée à la spectrométrie de masse en tandem (LC-MS/MS), selon des méthodes validées et accréditées (norme ISO 17025) ; la quantification des molécules repose sur le principe de dilution isotopique. Le seuil de quantification (statistiquement significatif) a été déterminé en tenant compte du niveau de contamination analytique rencontré pour ce type de molécule (blancs d'analyses systématiquement contaminés), une attention particulière et drastique ayant été portée à la maîtrise de ce phénomène (limites reportées dans le Tableau).

## 1.4. Méthodes statistiques

Les concentrations de RFB dans les muscles ont été croisées avec les données descriptives des poulaillers pour identifier d'éventuels facteurs structurels des élevages associés à la présence de polluants. Les variables descriptives ont été testées une à une pour leur association ( $p < 0,10$ ) avec la présence et la concentration des 3 HBCD, des 8 PBDE et des sommes de ces composés aux moyens du test du  $\chi^2$ , des tests non paramétriques de Wilcoxon et de Kruskal-Wallis et du coefficient de régression sur les rangs de Spearman. Les variables significativement associées à l'un des indicateurs de RFB ont ensuite été introduites dans une Analyse Factorielle Mixte Discriminante (AFMD) complétée d'une Classification Ascendante Hiérarchique (CAH) afin de constituer des classes d'élevages homogènes dans leur structure et leurs pratiques. Les variables décrivant la présence et la teneur de RFB dans les muscles ont été introduites en variables supplémentaires dans ces analyses, afin de mettre en évidence une éventuelle association entre les classes d'élevages et la contamination en RFB du muscle.

## 2. RESULTATS ET DISCUSSION

Les poulaillers visités avaient en moyenne 15 ans sur l'ensemble de l'échantillon, sans différence entre type de productions. L'âge moyen des poulets prélevé était de 36 jours  $\pm$  1,1 en système conventionnel contre 85 jours  $\pm$  1,5 en système alternatif. La teneur en matière grasse (MG) des filets de poulet variait de 1,1% à 2,9% de la matière fraîche (moyenne 1,6  $\pm$  0,4%). Au moins un congénère de PBDE a été isolé à un niveau supérieur au bruit de fond dans 41 pools de muscles sur 57 (72%), avec jusqu'à trois congénères détectés dans sept échantillons. Le congénère le plus fréquent était le BDE-209 suivi du BDE-47 et du BDE-99 ; les cinq autres congénères recherchés n'ont jamais été détectés (Tableau). La teneur maximale observée pour la somme des huit PBDE analysés était de 2,52 ng/g MG. La valeur moyenne de 1,1 ng/g MG pour ces huit polluants est comparable à celles des derniers plans de surveillance français entre 2012 et 2014, où cette teneur variait de 1,05 à 1,73 ng/g MG (Direction Générale de l'Alimentation, 2013, 2014 et 2015). La concentration moyenne de BDE-209, lorsqu'il était détecté, était plus élevée que celles des autres congénères faisant de cette molécule la plus abondante des PBDE isolés. Les concentrations observées de PBDE étaient comparables à celles obtenues dans l'étude EAT 2 (Anses, 2011) ; ceci tend donc à prouver que la viande de volaille participerait pour moins de 7% à l'exposition alimentaire d'un adulte français aux PBDE, contribution de référence attribuée par l'étude EAT 2 aux viandes de volaille.

La présence d'au moins un stéréoisomère d'HBCD a été détectée dans 26 filets (45%), le stéréoisomère  $\alpha$  étant le plus fréquent. Les concentrations les plus élevées ont été obtenues pour la forme  $\alpha$  avec trois échantillons supérieurs à 1,5 ng/g MG. La concentration moyenne des 3 HBCD était comparable à celles reportées dans les plans de surveillance de 2012 et 2014 ; la comparaison avec les résultats de 2013 est difficile à cause de la détection d'un échantillon contenant 13,3 ng/g MG d'HBCD, venant modifier fortement la contamination moyenne. De nouveau, la contamination moyenne observée dans notre étude était inférieure à l'estimation retenue dans l'étude EAT 2, laissant donc supposer que les viandes de volailles contribueraient à moins de 7% de l'exposition alimentaire d'un français aux HBCD.

L'analyse des résultats par système d'élevage montre que la fréquence de détection d'HBCD (au moins un stéréoisomère) était plus élevée dans les élevages alternatifs (19 élevages sur 30, 63%) que dans les conventionnels (7 sur 27, 26%, test  $\chi^2$   $p < 0,01$ ). De même, les filets contenant des PBDE provenaient plus souvent de troupeaux alternatifs (25 sur 30, 80%) que de conventionnels (16 sur 27, 59%,  $p = 0,04$ ). Cependant, en ne considérant que les échantillons pour lesquels les HBCD étaient quantifiables, les teneurs moyennes étaient comparables entre types d'élevage : pour les 3 HBCD, il est alors observé une contamination moyenne de 0,47 ng/g MG IC<sub>95%</sub> [0,32-0,63] en conventionnel contre 0,65 ng/g MG IC<sub>95%</sub> [0,34-0,97] en alternatif ( $p = 0,97$ ) et pour les 8 PBDE, 1,12 ng/g MG IC<sub>95%</sub> [0,75-1,49] en conventionnel contre 1,08 ng/g MG IC<sub>95%</sub> [0,83-1,33] en alternatif ( $p = 0,96$ ).

L'AFMD et la CAH ont permis de distinguer deux classes d'élevages, les élevages conventionnels et les élevages alternatifs, qui se caractérisent par des différences de pratiques (âge à l'abattage, souche génétique employée, accès à un parcours, etc.), de qualité de produit (teneurs en matières sèches et grasses dans les muscles) mais aussi par des caractéristiques de construction du poulailler (Figure 2). Ainsi les poulaillers des élevages alternatifs sont-ils plus fréquemment construits avec du bois ou des parpaings pour les murs et soubassements. Néanmoins, les mêmes matériaux d'isolation sont utilisés dans les deux classes d'élevages ; une analyse des matériaux de construction des poulaillers a précédemment montré que seuls les isolants étaient susceptibles de contenir des RFB (Cariou et al., 2015). Deux paramètres de contamination, la présence d' $\alpha$ -HBCD et la somme des 3 HBCD supérieure au seuil de quantification, apparaissent significativement associés à la classe des élevages alternatifs. Selon Jondreville et al. (2017), les filets de poulets à croissance rapide et lente soumis à la même concentration alimentaire d' $\alpha$ -HBCD présentent des concentrations d' $\alpha$ -HBCD similaires. En revanche, les muscles des cuisses et

pilons, de même que le gras abdominal sont plus concentrés chez les poulets à croissance lente que chez les poulets à croissance rapide (+20%).

## CONCLUSION

Les résultats obtenus pour 57 élevages de poulets de chair montrent que 54% des échantillons de muscle ne présentent aucune trace d'HBCD, et 28% aucune trace de PBDE. La fréquence de détection de RFB est significativement plus élevée dans les échantillons provenant d'élevages alternatifs que de conventionnels. Il est actuellement difficile de déterminer si cet écart est lié à l'âge des animaux plus élevé en système alternatif, à une différence de génétique ou à l'accès à un parcours extérieur, le sol pouvant être une source possible d'exposition des volailles aux RFB (Covaci et al., 2009). Des différences de conception apparaissent également dans les poulaillers conventionnels et alternatifs mais elles ne portent pas sur les matériaux d'isolation, qui sont les plus susceptibles de contenir des RFB. Lorsque des RFB sont détectés, ils le sont à des concentrations faibles, quel que soit le système d'élevage, et comparables aux résultats observés depuis 2011 dans les plans de surveillance français.

Aucune contamination atypique n'a été détectée, limitant la possibilité d'investiguer les sources potentielles de ces composés dans l'environnement des poulets. Afin de mieux comprendre l'origine possible des fortes contaminations, un essai expérimental a été mis en œuvre en 2016 pour vérifier si l'exposition directe de volailles à un matériau contenant de l' $\alpha$ -HBCD pouvait entraîner une contamination des denrées produites. Les résultats sont actuellement en cours d'analyse.

Ce travail vient confirmer que la viande de poulet est un faible contributeur à l'exposition humaine aux RFB via l'alimentation en France.

Cette étude a été réalisée avec le soutien financier du Ministère de l'Agriculture, de l'Agroalimentaire et de la Forêt (CAS DAR AAP n°1256). Les auteurs remercient les structures de production et les éleveurs qui ont accepté de participer à l'enquête. Ces travaux ont été menés dans le cadre de l'Unité Mixte Technologique Sanivolt.

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Anses, 2011. Rapport d'expertise Etude de l'alimentation totale française 2.  
<https://www.anses.fr/fr/documents/PASER2006sa0361Ra1.pdf>
- Anses, 2012. Avis Saisine n°2010-SA-0225.  
<https://www.anses.fr/sites/default/files/documents/RCCP2010sa0225.pdf>
- Cariou R., et al., 2015. In : Onzièmes Journées de la Recherche Avicole et Palmipèdes à Foie Gras, Tours.
- Covaci A., et al., 2009. Sci. Total Environ., 407, 4387-4396.
- Direction Générale de l'Alimentation, 2013.  
[http://agriculture.gouv.fr/IMG/pdf/PSPC\\_Bilan\\_2012\\_20131023\\_cle8dd8bf.pdf](http://agriculture.gouv.fr/IMG/pdf/PSPC_Bilan_2012_20131023_cle8dd8bf.pdf)
- Direction Générale de l'Alimentation, 2014.  
[http://agriculture.gouv.fr/IMG/pdf/Bilan\\_PSPC\\_2013\\_cle0e1631.pdf](http://agriculture.gouv.fr/IMG/pdf/Bilan_PSPC_2013_cle0e1631.pdf)
- Direction Générale de l'Alimentation, 2015  
[http://agriculture.gouv.fr/sites/minagri/files/bilan\\_pspc\\_2014.pdf](http://agriculture.gouv.fr/sites/minagri/files/bilan_pspc_2014.pdf)
- EFSA, 2011a. EFSA Journal, 9 (7), 2296. [www.efsa.europa.eu/fr/efsajournal/doc/2296.pdf](http://www.efsa.europa.eu/fr/efsajournal/doc/2296.pdf)
- EFSA, 2011b. EFSA Journal, 9 (5), 2156. [www.efsa.europa.eu/fr/efsajournal/doc/2156.pdf](http://www.efsa.europa.eu/fr/efsajournal/doc/2156.pdf)
- Jondreville C., Travel A., Méda B., Dominguez-Romero E., Cariou R., Dervilly-Pinel G., Le Bizec B., Travel A., 2017. In : Douzièmes Journées de la Recherche Avicole et Palmipèdes à Foie Gras, Tours.
- Stockholm convention, 2014.  
<http://chm.pops.int/TheConvention/ThePOPs/ListingofPOPs/tabid/2509/Default.aspx>

**Tableau.** Concentration de polybromodiphényléthers (PBDE) et d'hexabromocyclododécane (HBCD) dans les matières grasses de muscle de poulet (57 élevages, 2014-2015, France). Les moyennes et médianes sont calculées sur les échantillons où la molécule considérée a été détectée.

|          | N <sup>1</sup> détecté | % ND <sup>2</sup> | Concentration ng/g matière grasse |         |         |                    |
|----------|------------------------|-------------------|-----------------------------------|---------|---------|--------------------|
|          |                        |                   | médiane                           | moyenne | maximum | Seuil <sup>3</sup> |
| PBDE     |                        |                   |                                   |         |         |                    |
| BDE- 28  | 0                      | 100               |                                   |         |         | 0.010              |
| BDE- 47  | 19                     | 67                | 0.066                             | 0.073   | 0.164   | 0.050              |
| BDE- 99  | 18                     | 68                | 0.040                             | 0.043   | 0.074   | 0.030              |
| BDE- 100 | 0                      | 100               |                                   |         |         | 0.020              |
| BDE- 153 | 0                      | 100               |                                   |         |         | 0.025              |
| BDE- 154 | 0                      | 100               |                                   |         |         | 0.015              |
| BDE- 183 | 0                      | 100               |                                   |         |         | 0.050              |
| BDE-209  | 31                     | 46                | 1.010                             | 1.199   | 2.446   | 0.400              |
| Σ 8 PBDE | 41                     | 28                | 0.799                             | 1.096   | 2.519   | /                  |
| HBCD     |                        |                   |                                   |         |         |                    |
| α-HBCD   | 25                     | 56                | 0.155                             | 0.390   | 2.510   | 0.100              |
| β-HBCD   | 1                      | 98                | 0.250                             | 0.250   | 0.250   | 0.100              |
| γ-HBCD   | 2                      | 96                | 0.569                             | 0.569   | 0.603   | 0.400              |
| Σ 3 HBCD | 26                     | 54                | 0.392                             | 0.604   | 2.569   | /                  |

<sup>1</sup>Nombre d'élevage où la molécule est détectée

<sup>2</sup>Non détecté

<sup>3</sup>Seuil de quantification pour la molécule

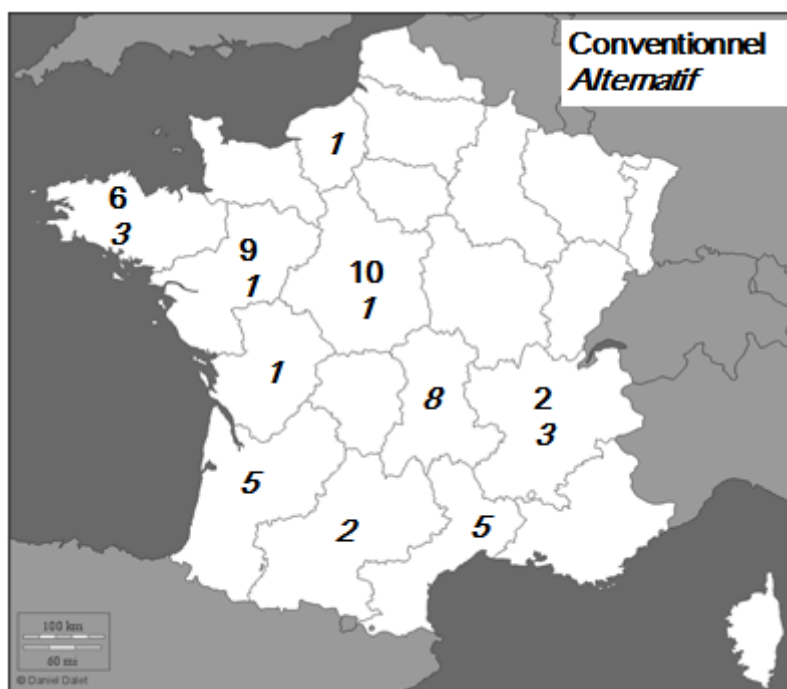


**Figure 1.** Répartition géographique par système de production des élevages de poulets de chair enquêtés (57 élevages, 2014-2015, France).

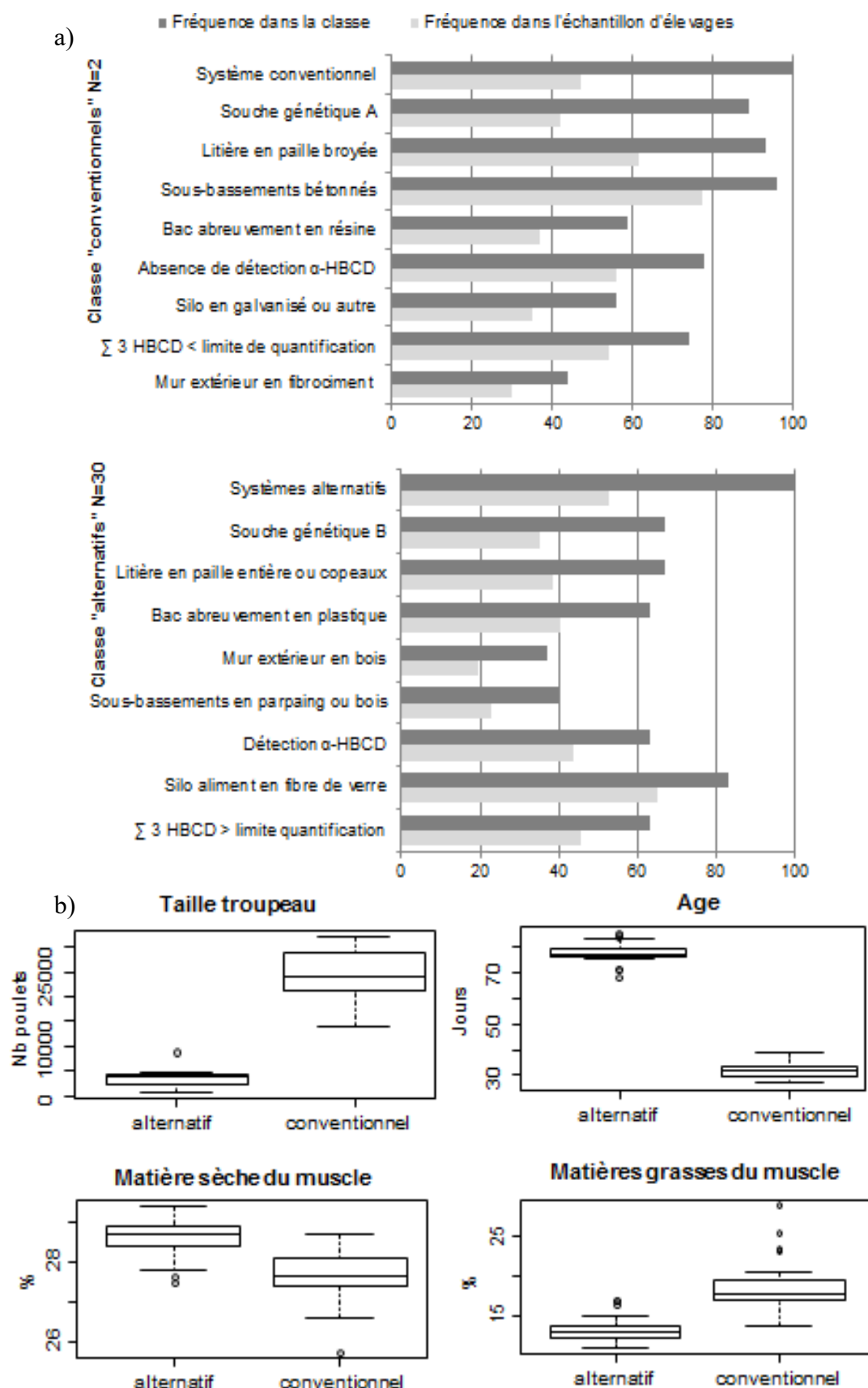


**Figure 2.** Caractéristiques significativement discriminantes des deux classes d'élevages constituées par AFCM et CAH, a) Fréquences des caractéristiques qualitatives, b) Distributions des caractéristiques quantifiées (57 élevages de poulets de chair, 2014-2015, France).