

La contamination des fourrages

par les polluants d'origine routière (HAP et PGE) :

Etat des lieux et risques pour la chaîne alimentaire fourrage - lait

C. Ducoulombier, G. Rychen

URAFPA, Ensaia Nancy-Université - Inra, 2, avenue de la Forêt de Haye, BP 165, F-54505 Vandoeuvre-lès-Nancy cedex ; Cecile.Ducoulombier-Crepineau@ensaia.inpl-nancy.fr

Résumé

Le trafic routier est à l'origine d'émissions polluantes tant par la combustion de carburants fossiles engendrant des Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP) que par l'utilisation de métaux pour la réduction des émissions de gaz, Eléments du groupe des Platinoïdes (PGE) comme catalyseurs. Ces contaminants sont susceptibles de se déposer par retombées atmosphériques sur les parcelles agricoles. Leur contamination sera fonction de la proximité des sources d'émissions, des propriétés physico-chimiques des polluants, des caractéristiques du végétal et de l'environnement du site d'étude. Les fourrages présentent des teneurs en polluants significativement supérieures en PGE et HAP lorsqu'ils sont situés en bordure de route par comparaison avec des zones isolées de toute source d'émission. La valeur de la concentration décroît avec l'augmentation de la distance à la route. Plusieurs études montrent que l'exposition maximale se fait entre 0 et 150 m depuis le bord de la route. Les données actuelles restent encore à approfondir concernant les risques pour les produits agricoles, notamment sur les conséquences de la métabolisation des HAP ainsi que sur les formes du platine et du palladium émises dans l'environnement, qui sont susceptibles de faire varier le taux de transfert du fourrage vers le produit agricole (lait) par des caractéristiques physico-chimiques très variées. Il reste toutefois avéré que les parcelles agricoles présentent des teneurs en Pd, Pt et HAP significativement élevées lorsqu'il y a proximité d'une voie routière.

Introduction

Depuis les trente dernières années, le trafic routier n'a cessé d'augmenter tout en faisant évoluer les sources d'énergie et les performances des moteurs. Cette augmentation a engendré une hausse des émissions dues au fonctionnement des moteurs et est souvent citée comme une source de pollution atmosphérique majeure de notre environnement. Le trafic routier est présent sur l'ensemble des territoires, utilisant un réseau d'autoroutes et de routes de fréquentation variables selon le lieu géographique. Les émissions issues des véhicules routiers sont donc susceptibles d'être détectées dans tous types d'environnement, qu'ils soient urbain ou rural. Les parcelles agricoles ne sont donc pas toutes exclues des risques de contamination par des polluants d'origine routière puisque le trafic routier n'est absent d'aucun secteur de notre territoire. L'objectif de nos études est bien de montrer si oui ou non les fourrages peuvent être contaminés par ces types de polluants et, si oui, quels sont les facteurs de variation de la contamination et les conséquences pour la sécurité alimentaire ?

1. Les polluants

– Origines et sources d'émissions

Les activités humaines sont une source majeure d'émissions de molécules engendrant dans certains milieux naturels et/ou agricoles des dysfonctionnements et des déséquilibres. Parmi les activités humaines, les transports par des véhicules à moteur ont augmenté régulièrement au cours des dernières années. Aujourd'hui, il est de plus en plus évident que ces retombées atmosphériques n'affectent pas que les zones urbaines mais également tout type de substrat à la surface de la terre. Lorsque ce substrat est agricole, il devient utile de se poser la question de la présence ou non de ces retombées polluantes et de leurs conséquences dans la chaîne alimentaire. Le trafic routier est à l'origine de plusieurs types de polluants issus du fonctionnement des moteurs à explosion, de la dégradation des chaussées, des pneumatiques, de l'usure des freins et embrayages et des pertes liquides des véhicules. Plusieurs polluants sont ainsi déterminés (GARREC et VAN HALUWYN, 2004) : les polluants gazeux (CO, CO₂, NO_x, O₃, Composés Organiques Volatils), les polluants particulaires métalliques (Pb, Cd, Zn, Cu, Ni, Mg, Eléments du Groupe des Platines ou PGE) et organiques (Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques ou HAP) et les particules minérales (poussières, sels). Nous réduirons notre étude aux polluants particulaires et plus précisément aux PGE (platine et palladium) et HAP, considérant que ce sont des contaminants encore peu étudiés.

– Les PGE

Les PGE constituent un groupe de métaux précieux aux propriétés chimiques et physiques similaires, notamment une résistance à la corrosion et à l'oxydation. Les métaux les plus utilisés dans ce groupe sont le platine (Pt), le palladium (Pd) et le Rhodium (Rh). Leur utilisation principale aujourd'hui est liée au développement du secteur automobile puisque ce sont des catalyseurs permettant la réduction des émissions gazeuses des moteurs à combustion. L'accroissement des exigences des réglementations concernant la limitation des émissions polluantes des véhicules a eu un effet direct sur l'accroissement de la demande mondiale en Pt et Pd.

Dans les convertisseurs catalytiques des véhicules, le Pt transforme les hydrocarbures totaux et le monoxyde de carbone en dioxyde de carbone et vapeur d'eau. Le Pd est un catalyseur efficace sur l'ensemble des gaz. Pour répondre à la demande de réduction des émissions gazeuses, les pays producteurs de véhicules ont donc augmenté leur importation en PGE. Par exemple, entre 1992 et 2002, la demande annuelle en Pt pour l'Europe a doublé, passant de 24 à 48 tonnes, tandis que celle de Pd a triplé passant de 20 à 66 tonnes.

Les réactions chimiques produites dans les catalyseurs automobiles sont responsables d'émissions dans l'environnement de PGE. La quantité et le taux de ces émissions varient selon la vitesse des véhicules, le nombre de révolutions du moteur, l'âge du pot catalytique, la température et le type de carburant (ARTELT *et al.*, 1999 ; ELY *et al.*, 2001) mais également les conditions d'allumage et de circulation pouvant affecter l'efficacité du catalyseur (SCHÄFER *et al.*, 1998). Les PGE émis dans l'environnement par les pots catalytiques sont majoritairement sous forme particulaire avec des taux atteignant dans certaines conditions 200 ng/km parcouru (MOLDOVAN *et al.*, 1999).

C'est l'augmentation de la teneur en PGE dans les matrices environnementales qui est à l'origine de l'intérêt porté à ces métaux. Naturellement présents dans la croûte terrestre mais à l'état de trace, de l'ordre de 1 ng/g (WEDEPOHL, 1995), des études récentes ont montré une augmentation de la concentration en PGE dans les sols avec des teneurs variant de 46 ng/g de Pt et 7 ng/g de Rh à 330 ng/g de Pt et 45 ng/g de Rh entre 1994 et 1996. Globalement, les valeurs de concentration peuvent être jusqu'à 70 fois plus élevés que la teneur géomorphique naturelle (ZEREINI *et al.*, 2007 ; SCHÄFER *et al.*, 1998). Il est donc avéré que l'utilisation massive des pots catalytiques composés de Pt, Pd et Rh a entraîné un accroissement non négligeable des teneurs en ces métaux dans les matrices environnementales.

Cette accumulation dans l'environnement pose la question du risque de contamination de la chaîne alimentaire par le potentiel toxique des PGE. Pendant plusieurs années ces éléments étaient considérés comme sans effet sur la biosphère mais des études ont montré qu'ils pouvaient être bioaccumulés par les organismes vivants et présenter alors une toxicité (EK *et al.*, 2004). Il faut distinguer les PGE sous forme métallique des PGE sous forme composée notamment halogénée. Ce sont ces composés solubles qui présentent un risque pour la chaîne alimentaire puisqu'ils deviennent alors biodisponibles tandis que les métaux restent inertes biologiquement. Les émissions de PGE par les pots catalytiques subissent des transformations qui peuvent conduire à leur solubilisation et à leur dispersion dans l'environnement (VAUGHAN et FLORENCE, 1992). Certains composés de platine et de palladium sont ainsi connus pour avoir des effets cytotoxiques, mutagènes et cancérigènes (IPCS, 1991 ; IPCS 1992 ; BUNGER *et al.* 1996 ; GEBEL *et al.* 1997).

- Les HAP

Ce sont des composés organiques inclus dans le groupe des Polluants Organiques Persistants caractérisés par une toxicité reconnue, une forte lipophilie, une forte volatilité, une persistance dans l'environnement, une bioaccumulation possible et des effets nocifs sur la santé et l'environnement pouvant être perçus aussi bien à proximité qu'à une grande distance de la source d'émission. Ils font partie depuis 1998 de la liste des substances établies dans le cadre du Protocole d'Aarhus et de la Convention de Stockholm de la Commission Economique des Nations Unies pour la réduction de leurs émissions. Les HAP sont des sous-produits involontaires des processus de combustion surtout lorsque celle-ci est incomplète. Les HAP peuvent donc être présents dans l'environnement par des combustions naturelles (feux de forêts, éruptions volcaniques...) ou d'origine anthropique. Les principales sources de HAP sont les chauffages résidentiels et le transport routier totalisant ensemble plus de 75% des émissions mesurées (Citepa, 2004). Entre 1990 et 2004, les émissions de HAP dans l'air ont globalement baissé de 20% mais cette baisse ne concerne pas le transport routier puisque ce secteur a vu ses émissions de HAP augmenter dans le même temps de 70% (Citepa, 2004). Les HAP émis par la combustion des carburants sont soit sous forme particulaire, adsorbés sur des particules carbonées, soit sous forme gazeuse. La forme sous laquelle les HAP sont émis varie selon le carburant utilisé : les moteurs diesel émettent davantage de HAP sous forme particulaire tandis que les moteurs à essence émettent davantage de HAP sous forme gazeuse (COURTOIS *et al.*, 1993).

Les HAP correspondent à une famille de molécules dont seuls 16 composés sont étudiés car considérés depuis 1976 comme polluants prioritaires par une étude de l'agence américaine de protection de l'environnement (US-EPA). Ils sont tous composés de carbone et d'hydrogène et de cycles benzéniques dont le nombre et l'agencement spatial (de 2 à 6) déterminent leurs propriétés physico-chimiques. Les HAP à faible nombre de cycles sont considérés comme les plus volatils et les moins toxiques tandis que les HAP à nombre élevé de cycles aromatiques sont les plus lourds et les plus toxiques. Le nombre de cycles est également à l'origine de la lipophilie de la molécule, celle-ci augmentant parallèlement à l'augmentation du nombre de cycles.

L'étude du devenir des HAP dans notre environnement se justifie par le potentiel de toxicité que représentent ces molécules. Elles sont considérées comme mutagènes, après absorption par l'organisme (MOLL, 1995) et cancérigènes. La toxicité des HAP varie avec le nombre de cycles aromatiques : à partir de 4 cycles, le pouvoir mutagène et cancérigène est beaucoup plus marqué. Les risques pour la chaîne alimentaire seront donc fonction du profil de contamination des matrices environnementales en HAP.

En définitive, les PGE et les HAP sont émis par la circulation routière et présentent des caractéristiques physico-chimiques pouvant entraîner leur dépôt sur des matrices environnementales situées aux alentours des voies de circulation. Par leur potentiel de toxicité, ces composés peuvent représenter un risque pour la chaîne alimentaire. La densité du réseau routier secondaire ou principal et sa proximité avec des parcelles agricoles nous amène à nous poser la question du risque de contamination des parcelles agricoles et notamment des parcelles servant à la récolte du fourrage, premier maillon de la chaîne alimentaire.

2. Les modalités de dépôt des PGE et HAP sur les matrices végétales

La contamination des végétaux peut s'opérer par voie atmosphérique (dépôt) ou par absorption racinaire *via* le sol. Les niveaux détectés en PGE et HAP sont donc très variables selon les conditions locales de terrain lors des prélèvements. Les teneurs connues en PGE varient pour le platine de 1,23 ng/g à 30 ng/g et pour le palladium de 0,1 ng/g à 17 ng/g (ELY *et al.*, 2001 ; DJINGOVA *et al.*, 2003 ; TANKARI DAN BADJO, 2008). Les teneurs détectées pour 16 HAP dans de l'herbe varient quant à elles de 25 ng/g à 981 ng/g (KIPOPOULOU *et al.*, 1999 ; CRÉPINEAU *et al.*, 2003).

– Une contamination variant selon les caractéristiques du végétal

La voie atmosphérique est liée directement à l'émission des polluants dans l'air et aux retombées de polluants sous forme de dépôts particulaires secs ou humides ou sous forme gazeuse sur les matrices végétales. L'état du végétal ainsi que ses caractéristiques morphologiques vont directement influencer sa contamination. Les polluants déposés peuvent soit s'adsorber à la surface des feuilles, soit pénétrer par les stomates à l'intérieur de la plante. Les HAP à faible nombre de cycles aromatiques ainsi que les PGE sont majoritairement émis sous forme gazeuse et peuvent ainsi pénétrer dans la plante par les stomates. En revanche, les HAP à nombre élevé de cycles aromatiques émis sous forme particulaire ainsi que les PGE lorsqu'ils s'associent à des particules au moment de leur émission se déposent à la surface des feuilles et sont piégés par la cuticule. Le niveau d'accumulation de ces dépôts de surface est étroitement lié au végétal. Une plante aux feuilles larges ou dentelées dont la surface serait rugueuse, gaufrée ou présentant une forte pilosité aura une capacité de rétention plus élevée qu'une plante aux feuilles lisses et de surface réduite (HOWSAM *et al.*, 2000). Sur ce premier type de plantes, les particules sont piégées et se décrochent difficilement (BAKKER *et al.*, 2001) sauf par lessivage suite aux précipitations (WILD *et al.*, 1992). C'est ainsi que le chou, *Brassica Oleacea*, est un bon bio-accumulateur des polluants d'origine routière puisqu'il présente des feuilles de large surface et de forme réticulée.

De la même manière, la composition de la cuticule va jouer un rôle dans la capacité de rétention de la plante aux polluants, essentiellement dans le cas de polluants organiques comme les HAP. La teneur en lipides est un facteur direct de variation du niveau de contamination du végétal puisqu'elle va entraîner une affinité forte aux polluants à lipophilie élevée que sont les HAP à nombre de cycles élevé (MÜLLER *et al.*, 2001). La cuticule est responsable de 70 à 90% de l'absorption (THOMAS *et al.*, 1998) et c'est la qualité des cires plutôt que l'épaisseur de la cuticule qui modifie la concentration (SMITH *et al.*, 2001). La composition lipidique est prioritaire dans les mécanismes de dépôt car il existe une diffusion passive entre l'atmosphère et la cuticule dans le cas des dépôts gazeux. Les molécules sont transférées vers les compartiments de la cuticule jusqu'à ce que l'équilibre air-plante soit atteint. Le temps de diffusion jusqu'à l'équilibre varie fortement selon les espèces végétales, de 24 à 240 secondes pour le genre *citrus* et de 58 à 580 jours pour le genre *illex* (BAKKER *et al.*, 2001). Pour certains végétaux, l'équilibre n'est jamais atteint car la durée de vie du végétal est trop faible ce qui peut avoir une incidence sur les risques de transfert dans la chaîne alimentaire (THOMAS *et al.*, 1998). Le rendement et la densité d'une pâture sont également des facteurs de variation des niveaux de concentration par une incidence sur la surface d'échanges avec la phase gazeuse (SMITH *et al.*, 2001).

– Une contamination variant selon les caractéristiques de l'environnement

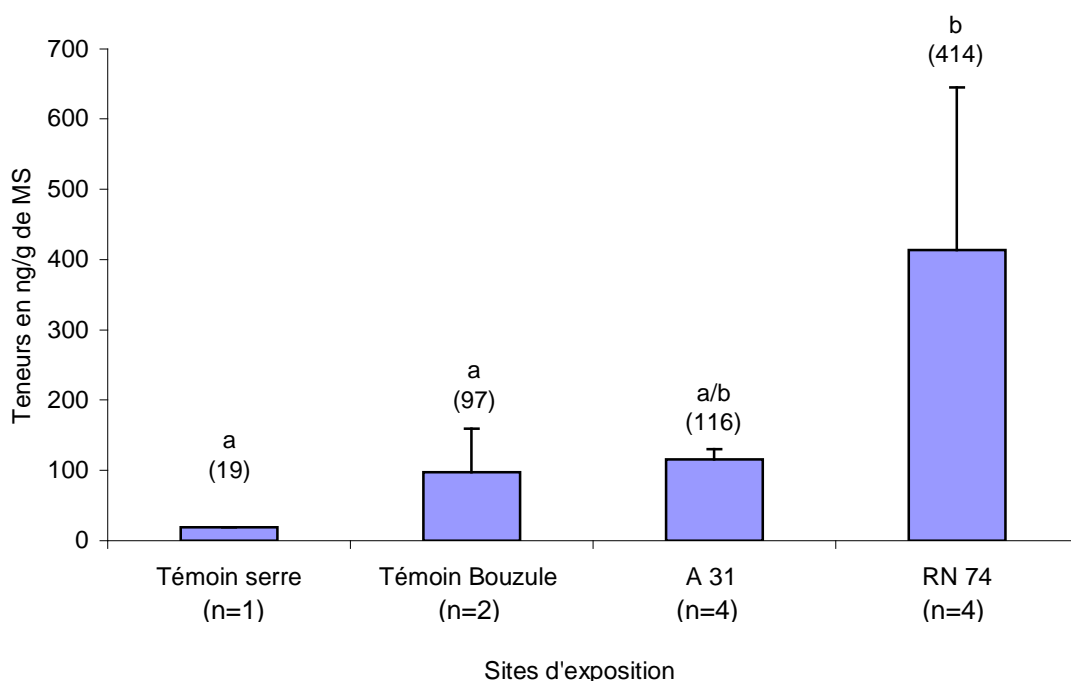
La variation des paramètres de l'environnement a également une influence sur les niveaux de contamination des végétaux. La température modifie la forme sous laquelle les polluants sont émis, gazeuse ou particulaire, entraînant des modalités de dépôt et d'adsorption différentes sur les plantes.

Elle entraîne également une augmentation de la concentration d'un facteur 30 à 2 000 en passant de 5° à 50°C pour les polluants HAP (BAKKER *et al.*, 2001). Le vent et plus précisément sa force et sa direction va affecter directement la concentration sur les plantes en modifiant la répartition des composés dans l'atmosphère (TEIL *et al.*, 2004). Enfin, la pluie en agissant par lessivage et modification de la forme des dépôts est également un facteur de variation. Son rôle dépend toutefois de la nature du polluant et des caractéristiques du végétal : une laitue lavée à l'eau entraîne l'extraction d'une part importante des HAP à haut poids moléculaire tandis que le même rinçage sur du maïs n'entraîne l'extraction que d'une faible part des molécules (BAKKER *et al.*, 2001). Les polluants métalliques sont moins affectés par les précipitations pour les retombées directes mais subissent également un lessivage après dépôt sur les feuilles des végétaux. Il faut ajouter qu'en période humide les végétaux sont plus sensibles aux dépôts de polluants : l'humidité favorisant la dissolution des dépôts de surface et l'ouverture des stomates permettant l'entrée des polluants dans l'organisme végétal (GARREC et RENARD, 1996). La lumière est également un facteur de variation de la contamination des fourrages. Son rôle est connu pour les HAP mais aucune donnée n'existe aujourd'hui pour les PGE. La photo-oxydation des HAP est un processus important de dégradation des molécules. Les UV sont responsables de la dégradation très rapide des composés : il suffit d'une exposition de 20 secondes pour entraîner une perte de 50% de la concentration en benzo(a)pyrène, d'une exposition de 1 mn pour le même taux de dégradation du chrysène et d'une exposition de 7 mn pour le fluoranthène (MILLER et OLEJNIK, 2001).

- Une contamination variant selon les caractéristiques des sites de prélèvement

Les connaissances dont nous disposons aujourd'hui sont issues de prélèvements réalisés dans de nombreux lieux différant les uns des autres par : l'intensité de l'émission polluante, la topographie locale, les distances à la source ou encore la durée d'exposition du végétal. Chacun de ces caractères est à l'origine d'un niveau de contamination différent. L'intensité du trafic routier agit directement sur la dispersion et le dépôt des polluants : plusieurs études mettent en évidence des relations significatives entre teneurs en PGE et en HAP des matrices végétales et intensité du trafic (MÜLLER *et al.*, 2001). Il est également connu qu'au-delà de l'intensité, c'est la vitesse et le type de conduite qui affectent plus précisément les niveaux de dépôts des HAP. Les teneurs en polluants sont significativement plus élevées à proximité d'une route nationale qu'à proximité d'une autoroute ou d'un aéroport (CRÉPINEAU-DUCOULOMBIER *et al.*, 2004) (Figure 1).

FIGURE 1 – Concentrations dans le ray-grass exposé en bordure de voies routières et dans des sites témoins (CRÉPINEAU-DUCOULOMBIER *et al.*, 2004).



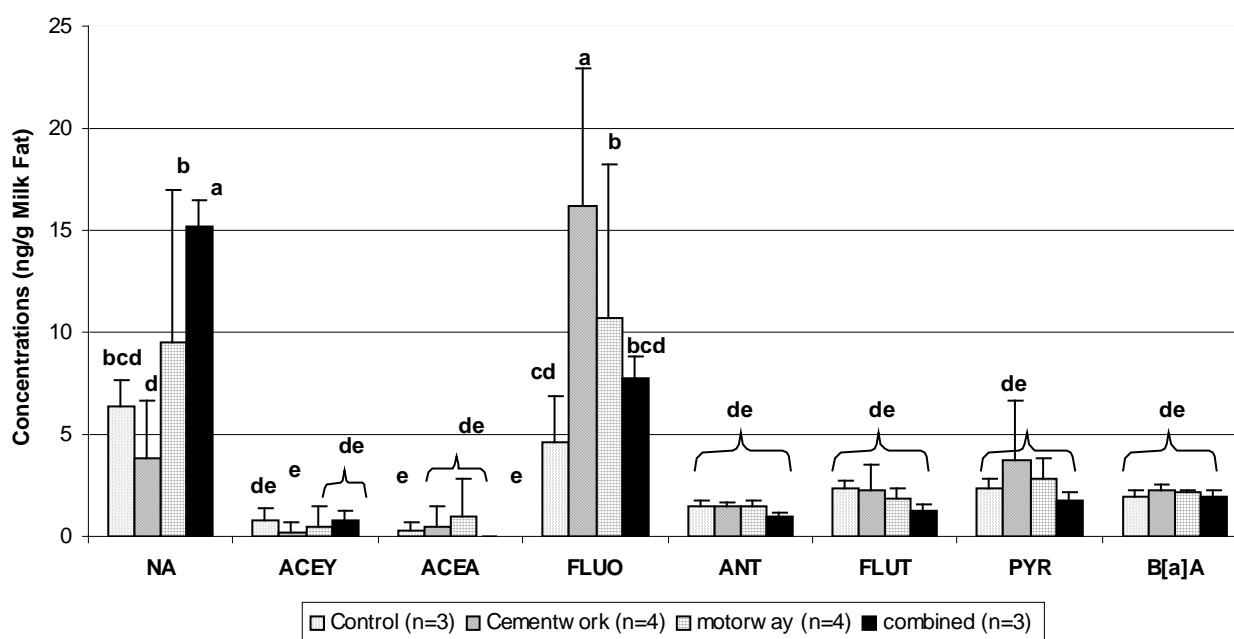
Le relief du site exposé engendre également une variation de l'importance des risques de contamination. Une route en remblai favorise la dispersion des polluants sur une distance plus grande de part et d'autre de la voie par comparaison avec une route à niveau. Une route en déblai agira à l'inverse en limitant la dispersion (GARREC et RENARD, 1996). Le risque de contamination des végétaux reste également fortement lié à la distance entre le végétal et la route, source de l'émission. De nombreuses études ont montré que la concentration en polluants diminuait avec l'augmentation de la distance à la route (HAUTELA *et al.*, 1994 ; BAKKER *et al.*, 2000 ; CRÉPINEAU *et al.*, 2003). Il n'est toutefois pas possible aujourd'hui de déterminer une zone de risque au-delà de laquelle le niveau de contamination serait réduit car les facteurs de variation sont trop nombreux et les résultats montrent que, selon les situations de terrain, la concentration est toujours supérieure à une valeur témoin pour des distances allant de 20 à 150 m (ELY *et al.*, 2001 ; CRÉPINEAU *et al.*, 2003 ; TANKARI DAN BADJO *et al.*, 2008 ; PETIT *et al.*, 2008). La durée d'exposition du végétal affecte également les niveaux de concentration détectés puisque la plante pourra accumuler le polluant jusqu'à l'obtention d'un équilibre air - plante, cet équilibre étant atteint au bout d'un délai variable selon le type de végétal.

L'ensemble de ces résultats montrent que les végétaux sont soumis à des dépôts de polluants par la voie atmosphérique et que les parcelles agricoles peuvent donc également être touchées par cette contamination. Toutefois, la variété des facteurs de variation ne nous permet pas de déterminer avec précision des zones à risques ; la pollution est toutefois avérée pour des surfaces importantes de part et d'autre des voies routières.

3. Les conséquences de la contamination pour les élevages

Les données actuelles nous permettent de connaître les caractéristiques des polluants émis par la circulation routière et les modalités de dépôt de ces polluants sur les zones situées à proximité de des routes. Les conséquences de ce risque réel de contamination sont à évaluer pour la chaîne alimentaire (produits agricoles) et à resituer à l'échelle des parcelles agricoles en situation de terrain pour mieux mesurer le niveau de risque. Toutefois, les données connues aujourd'hui sur les transferts de ces molécules vers les produits agricoles (et en particulier les produits laitiers) sont issues d'études menées en conditions de laboratoire à partir d'une ingestion directe de polluants.

FIGURE 2 – Concentrations en HAP dans des laits de tanks collectés sur des exploitations situées à proximité de sources d'émissions (GROVA *et al.*, 2002a).



- Le transfert des HAP et PGE dans la chaîne alimentaire fourrage - lait

La présence de HAP dans des laits a été démontrée quelle que soit l'origine géographique du lait analysé : il n'y a pas de différence significative de concentrations entre des laits provenant d'exploitations potentiellement exposées aux polluants et des exploitations considérées comme isolées de toute source d'émission (GROVA *et al.*, 2002a). Toutefois, toutes les molécules de HAP ne sont pas détectées dans tous les laits et les concentrations restent de l'ordre de quelques nanogrammes (de 1 à 15 ng/g de matière grasse) (Figure 2).

Par ailleurs, il a été récemment montré que les HAP ingérés par un ruminant laitier sont fortement métabolisés expliquant les faibles concentrations en molécules mères mesurées dans le lait (GROVA *et al.*, 2002b). Une étude récente a montré pour la première fois que la teneur en HAP natif (pyrène, phénanthrène et benzo(a)pyrène) dans le lait ou les urines d'un ruminant laitier était inférieure à la quantité de métabolites de ces mêmes molécules (3-OH phénanthrène, 1-OH pyrène et 3-OH benzo(a)pyrène). De même, il est à noter que l'excrétion de métabolites dans le lait et les urines est majeure entre 0 et 4 h après l'ingestion de contaminants. Le taux de transfert des molécules mères et des métabolites reste faible (de 0,014% à 0,002%). Seul le 1-OH pyrène montre un taux de transfert significativement plus élevé (0,44%) que l'ensemble des métabolites et des composés natifs (LAPOLE *et al.*, 2007). Le 1-OH pyrène étant le métabolite majoritairement détecté dans le lait et dans les urines après l'ingestion de contaminants par un ruminant laitier, il peut être considéré aujourd'hui comme un bon marqueur de l'exposition du ruminant aux polluants (CHAHIN *et al.*, 2008). Les données actuelles ont été obtenues à partir d'une ingestion directe de polluants par les animaux et la question de la disponibilité des HAP pour l'animal lorsque les molécules sont adsorbées sur du fourrage ou du sol est posée, de même que la question de la concentration des molécules dans les matrices alimentaires déterminant le taux de polluants dans le produit d'excrétion. Il faut retenir de ces éléments que les taux de transfert connus des HAP étudiés sont très faibles limitant le risque sanitaire pour le lait et les produits laitiers. En revanche, même si les taux de transfert restent également faibles pour leurs métabolites, ceux-ci sont détectés en plus grande quantité dans le lait et le risque sanitaire est moins connu puisque leur toxicité n'est pas déterminée.

Des études récentes montrent que, pour les HAP, la matrice pouvant présenter le plus de risque de contamination vers les ruminants laitiers est la matrice sol. En effet, compte-tenu d'une concentration plus élevée en molécules dans les sols que dans les fourrages, du risque d'ingestion involontaire de sol par les ruminants laitiers au pâturage et de la biodisponibilité des HAP dans cette matrice, la question du risque de contamination de la chaîne alimentaire est posée *via* cette voie d'exposition (LUTZ *et al.*, 2006).

La connaissance du transfert des PGE vers les produits animaux est très réduite aujourd'hui. Une étude récente (DUCOULOMBIER-CRÉPINEAU *et al.*, 2007) a montré que le platine n'était pas détecté dans le lait après une ingestion directe de sel de platine (PtCl₂) par une chèvre laitière. En revanche, le palladium est détecté (après une ingestion de sel de palladium PdCl₂) avec une teneur variant entre 5 et 9 ng/g de matière sèche dans le lait, ce qui est significativement plus élevé que la teneur dans un lait non exposé. Le taux de transfert vers le lait calculé dans cette expérience est de 0,02% pour le palladium, ce qui reste faible. Les données ne sont pas aujourd'hui suffisantes pour savoir si le platine et le palladium ne présentent aucun risque pour la chaîne alimentaire puisque les valeurs de cette étude ont été obtenues après une dose élevée unique et qu'il n'existe pas de données concernant une ingestion chronique susceptible de démontrer une accumulation dans l'organisme et donc un risque sanitaire plus élevé.

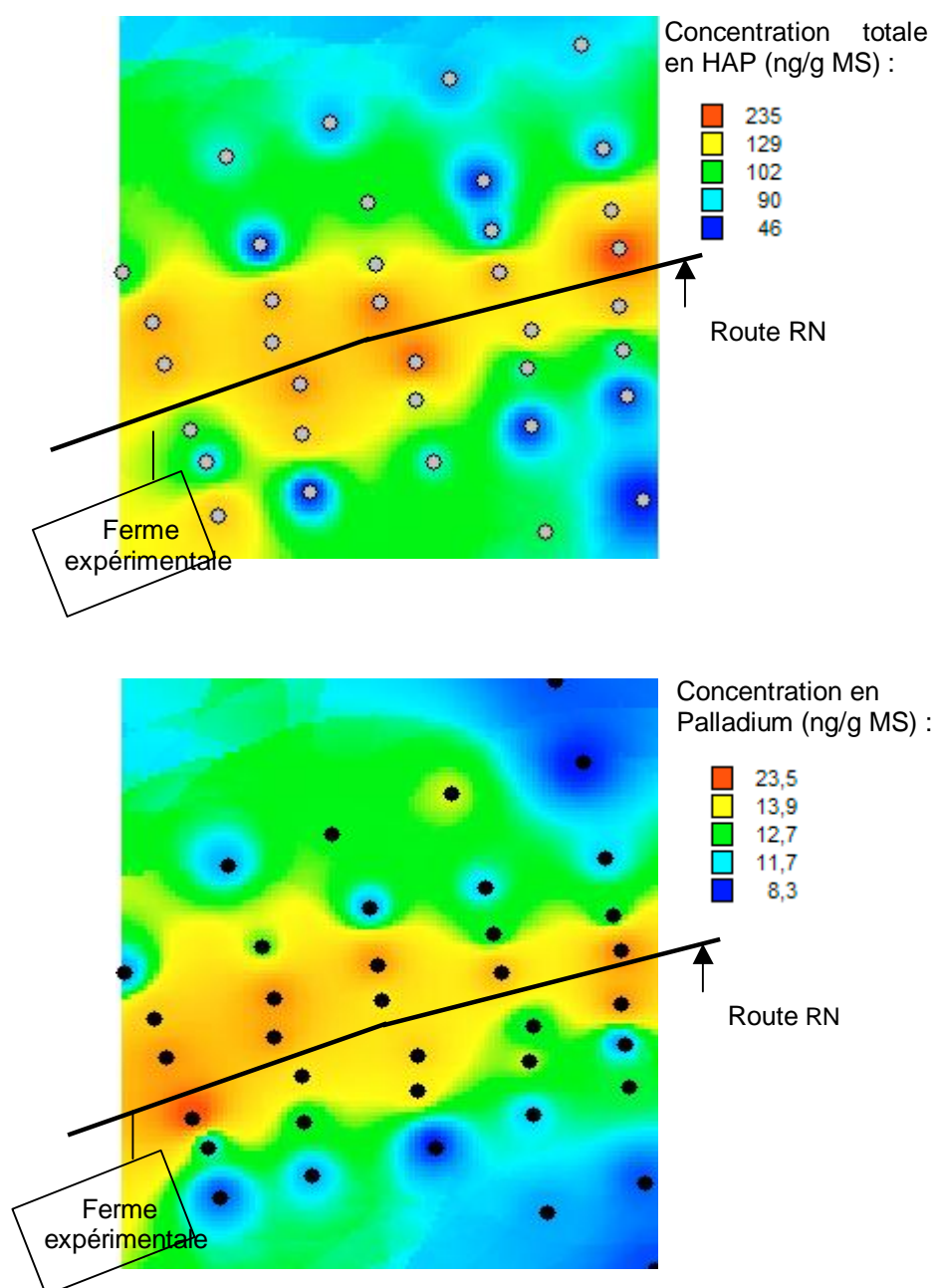
- La mesure de l'exposition aux PGE et HAP en situation réelle

Les données bibliographiques font état d'une pollution majeure à proximité des bords de route avec une décroissance de la concentration lorsque la distance à la route augmente. Il n'est cependant pas possible de déterminer où s'arrête l'espace du risque puisque les mesures sont toujours discutées sur la base d'un même transect. Il est intéressant de se poser la question de la répartition de la pollution en HAP et PGE à l'échelle d'une parcelle agricole lorsque celle-ci est située en bordure de route. Les teneurs en polluants varient significativement lorsque du fourrage (ray-grass) est prélevé à 5 m d'une route nationale et à 800 m de la même route, respectivement 12 ng/g de matière sèche et 5 ng/g de matière sèche pour le Pd, et 346 ng/g de matière sèche et 86 ng/g de matière sèche pour 16 HAP (TANKARI DAN BADJO *et al.*, 2008). La répartition plus précise des

polluants montre l'effet majeur de la route sur la présence des HAP et du palladium, le platine quant à lui ne variant pas directement avec le passage de la route (Figure 3). Il est également confirmé avec cette expérience qu'à partir de 50 m au-delà du bord de la route la concentration en HAP est réduite de 60% par rapport au bord immédiat de la route. En revanche, les PGE montrent une réduction de leur concentration beaucoup moins rapide puisqu'à la même distance de 50 m, la concentration a été diminuée seulement de 39%, laissant supposer une diffusion des polluants sur des distances plus grandes pouvant ainsi couvrir une vaste proportion des parcelles situées en bordure de route.

Ces résultats montrent qu'en l'état des connaissances le transfert des HAP et du palladium existe posant la question du risque pour la chaîne alimentaire, ces composés présentant une toxicité reconnue. Les valeurs faibles du taux de transfert permettent toutefois de penser que les teneurs retrouvées dans le lait ne présentent à l'heure actuelle qu'un risque réduit pour la sécurité sanitaire.

FIGURE 3 – Carte de pollution en HAP et Palladium sur une parcelle située en bordure de route nationale (TANKARI DAN BADJO *et al.*, 2008).



Conclusion

Les polluants d'origine routière que sont les HAP et PGE sont présents dans notre environnement à des concentrations qui ne cessent d'augmenter compte-tenu de l'intensité et de la présence du trafic routier dans nos territoires. Par dépôts atmosphériques, les fourrages sont susceptibles de présenter des teneurs en PGE et HAP élevées dans les zones d'émissions fortes. Les connaissances sur les taux de transfert et la métabolisation des composés montrent qu'il y existe un transfert, de niveau faible, avec un risque limité pour les produits alimentaires tels que le lait. La grande variabilité des situations géographiques et des modalités de dépôts pose la question de la prévention d'une telle pollution pour les parcelles agricoles sachant que, plus la teneur dans l'environnement est élevée, plus la concentration dans le produit agricole sera élevée également. Des recherches en cours tentent de déterminer la disponibilité des polluants pour l'animal à partir de matrices alimentaires et de pratiques d'élevage différentes (pâturation de fin d'été, ingestion involontaire de sol, foin contaminé...).

Références bibliographiques

- ARTELT S., KOCK H., NACHTIGALL D., HEINRICH U. (1999) : "Bioavailability of platinum emitted from automobile exhaust", *Toxicol. Lett.*, 96-97, 163-167.
- BAKKER M.I., TROLLS J., KOLLOFEL C. (2001) : "Deposition of atmospheric semi-volatile organic compounds to vegetation", *Am. Chem. Soc.*, 16, 218-236.
- BUNGER J., STORK J., STALDER K. (1996) : "Cytotoxic and genotoxic effects of coordination complexes of platinum, palladium and rhodium in vitro", *Int. Arch. Occ. Env. Health.*, 69, 33-38.
- Citepa (2004) : "Rapport sur les émissions dans l'air en France", 12p.
- COURTOIS Y., MOLINIER B., PASQUEREAU M., DEGOBERT P., FESTY B. : »Influence des conditions de fonctionnement d'un moteur diesel sur les effets mutagènes de ses effluents«, *Sc. Total Environ.*, 134 (1-3), 61-70.
- CREPINEAU C., RYCHEN G., FEIDT C., LE ROUX Y., LICHTFOUSE E., LAURENT F. (2003) : « Contamination of pastures by polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in the vicinity of a highway », *J. Agric. Food Chem.*, 51, 4841-4845.
- CREPINEAU-DUCOULOMBIER C., TANKARI-DAN-BADJO A., RYCHEN G. (2004) : "PAH contamination of the grass *Lolium perenne* exposed to vehicular traffic", *Agronomie*, 24, 503-506.
- DIINGOVA R., KOVACHEVA P., WAGNER G., MARKET B. (2003) : "Distribution of platinum group element and other traffic related elements among different plants along some highways in Germany", *Sci. Total Environ.*, 308, 235-246.
- DUCOULOMBIER-CREPINEAU C., FEIDT C., RYCHEN G. (2007) : »Platinum and palladium transfer to milk, organs and tissues after a single oral administration to lactating goats«, *Chemosphere*, 68 (4), 712-715.
- EK K., MORRISON G.M., RAUCH S. (2004) : "Environmental routes for platinum group element to biological materials – a review", *Sci Total Environ.*, 334-335, 21-38.
- ELY J.C., NEAL C., KULPA C., SCHNEEGURT M., SEIDLER J., JAIN J. (2001) : "Implications of platinum group element accumulation along US roads from catalytic converter attrition", *Environ. Sci. Technol.*, 35, 3816-3822.
- GARREC J.P., VAN HALUWYN C. (2002) : "Biosurveillance végétale de la qualité de l'air", *Tec et Doc*, Paris, 117p.
- GARREC J.P., RENARD E. (1996) : "Foliar absorption of aluminium : study of the fixation and the cuticular penetration", *Environ. Exp. Bot.*, 36, 365-375.
- GEBEL T., LANTZSCH H., PLESOW K., DUNKELBERG K. (1997) : "Genotoxicity of platinum and palladium compounds in human and bacteria cells", *Mutat. Res.*, 389, 183-190.
- GROVA N., FEIDT C., CREPINEAU C., LAURENT C., LAFARGUE P.E., HACHIMI A., RYCHEN G. (2002) : « Detection of polycyclic aromatic hydrocarbons levels in milk collected near potential contamination sources », *J. Agric. Food Chem.*, 50, 4640-4642.
- GROVA N., FEIDT C., LAURENT C., RYCHEN G. (2002b) : »C14 milk, urine and faeces excretion kinetics in lactation goats after an oral administration of C14 polycyclic aromatic hydrocarbons«, *Int. Dairy J.* 12, 1025-1031.

- HAUTELA E.L., REKILA R., TARHANEN J., RUUSKANEN J. (1994) : "Deposition of motor vehicle emissions and winter maintenance along roadside assessed by snow analysis", *Environ. Poll.*, 87, 45-49.
- HOWSAM M., JONES K.C., INESON P. (2000) : "PAHS associated with the leaves of three deciduous tree species. I. Concentrations and profiles", *Environ. Poll.*, 108, 413-424.
- IPCS (1991) : "Environmental health criteria 125 Platinum", World Health Organisation, 167p.
- IPCS (2002) : "Environmental health criteria 226 Palladium", World Health Organisation, 201p.
- LAPOLE D., RYCHEN G., GROVA N., MONTEAU F., LE BIZEC B., FEIDT C. (2007) : "Milk and urine excretion of polycyclic aromatic hydrocarbons and their hydroxylated metabolites after a single oral administration in ruminants", *J. Dairy Sci.*, vol 90, n° XXX
- LUTZ S., FEIDT C., MONTEAU F., RYCHEN G., LE BIZEC B., JURJANZ S. (2006) : »Effects of exposure to soil-bound polycyclic aromatic hydrocarbons on milk contamination of parent compounds and their monohydroxylated metabolites«, *J. Agricult. Food Chem.*, 54, 263-268.
- MILLER S., OLEJNIK D. (2001) : "Photolysis of polycyclic aromatic hydrocarbons in water", *Water Res.*, 35 (1), 233-243.
- MOLDOVAN M., GOMEZ M.M., PALACIOS M.A. (1999) : "Determination of platinum, rhodium and palladium in car exhaust fumes", *J. Anal. Atom. Spectrom.*, 14, 1163-1169.
- MOLL N. (1995) : "Evaluation de la contamination des aliments et boissons par les hydrocarbures aromatiques et les amines hétérocycliques", Moll M., Moll N. Ed, Sécurité alimentaire du consommateur, Tec et Doc Lavoisier, 264-282.
- MÜLLER J.F., HAWKER D.W., MACLACHLAN M.S., CONNELL D.W. (2001) : "PAHS, PCDD/Fs, PCBs and HCB in leaves from Brisbane, Australia", *Chemosphere*, 43, 507-515.
- SHÄFFER J., HANNKER D., ECKHARDT J., STÜBEN D. (1998) : "Uptake of traffic-related heavy metals and platinum group elements (PGE) by plants", *Sci. Total Environ.* 215, 59-67.
- SMITH K.E.C., THOMAS G.O., JONES K.C. (2001) : "Seasonal and species differences in the air-pasture transfer of PAHs", *Environ. Sci. Technol.*, 35, 2156-2165.
- TANKARI DAN BADJO A., RYCHEN G., DUCOULOMBIER C. (2008) : "Pollution maps of grass contamination by platinum group elements and polycyclic aromatic hydrocarbons from road traffic", *Agron. Sustain. Dev.*, 28, 457-464.
- TEIL M.J., BLANCHARD M., CHEVREUIL M. (2004) : "Atmospheric deposition of organo-chlorines in northern France", *Chemosphere*, 55, 501-514.
- THOMAS G.O., SMITH K.E.C., SWEETMAN A.J., JONES K.C. (1998) : »Further studies of the air-pasture transfer of polychlorobiphenyls«, *Environ. Poll.*, 102, 119-128.
- VAUGHAN G.T., FLORENCE T.M. (1992) : "Platinum in the human diet, blood, hair and excreta", *Sci. Total Environ.*, 11, 47-58.
- WEDEPOHL K.H. (1995) : »The composition of the continental crust«, *Geochem. Cosmochim. Acta*, 59, 7, 1217-1232.
- WILD S.R., JONES K.C., JOHNSTON A.E. (1992) : "The polycyclic aromatic hydrocarbon (PAH) content of herbage from a long-term grassland experiment", *Atmos. Environ.*, 26a, 1299-1307.
- ZEREINI F., SKERSTUPP B., ALT F., HELMERS E., URBAN H., (2007) : "Geochemical behaviour of platinum group elements (PGE) in particulate emissions by automobile exhaust catalysts : experimental results and environmental investigations", *Total Environ.*, 7, 37-146.