

Composition physicochimique des miels algériens. Détermination des éléments traces et des éléments potentiellement toxiques

Hafsa YAICHE ACHOUR* et Mustapha KHALI

*Université SAAD Dahlab, faculté des sciences agronomiques, vétérinaires et biologiques,
Route de Soumâa, BP 270-9000 Blida, Algérie*

* Correspondance, courriel : hafsa_yah@hotmail.fr

Résumé

La caractérisation de cinq échantillons de miel collectés de différentes régions mellifères algériennes a été effectuée sur deux aspects : 1) propriétés physicochimiques, et 2) le niveau des éléments traces et des éléments toxiques. pH, acidité libre, humidité, conductivité électrique, hydroxyméthylfurfural, sucres totaux et réducteurs, la saccharose, sont les paramètres physicochimiques analysés pour chaque échantillon de miel. Le niveau des éléments traces (Zn, Mn, Fe, Cu, Cr, Ni) et des éléments toxiques (Pb, Cd, As) ont été déterminés par spectrométrie d'émission optique couplée à un plasma inductif (ICP-OES). Les résultats obtenus ont montré une variabilité de la composition chimique des miels. Les concentrations en éléments traces ont varié de 8,02-14,51 mg/Kg, 2,50-3,49 mg/Kg, 1,95- 6,37 mg/Kg et 2,72-3,22 mg/Kg pour le Zn, Mn, Fe et Cr, respectivement. Alors que les concentrations moyennes du chrome (0,024 mg/kg) et nickel (0,32 mg/kg) sont faibles et très similaires pour les différentes variétés de miel. Les éléments toxiques (Pb, Cd, As) sont présent à l'état de trace. Le zinc est l'élément le plus abondant dans les miels algérien analysés.

Mots-clés : *miel, propriété physicochimique, éléments toxiques, éléments traces.*

Abstract

Physicochemical composition of Algerian honey. Determination of trace and potentially toxic elements

The characterization of five honey samples collected from different Algerian regions was carried out on two aspects: 1) physicochemical properties, and 2) levels of trace and toxic elements. pH, free acidity, moisture, electrical conductivity, hydroxymethylfurfural (HMF), total sugars, reducing sugars and sucrose, were the physicochemical parameters analyzed in each honey sample. The level of trace elements (Zn, Mn, Fe, Cu, Cr and Ni) and toxic elements (Pb, Cd, As) were determined by inductively coupled plasma emission spectrometry (ICP-OES). The results obtained in the present study show the variability of chemical composition of the honey samples. The contents of trace elements were in the range of 8.02 – 14.51 mg/Kg, 2.50 – 3.49 mg/Kg, 1.95 – 6.37 mg/Kg and 2.72 – 3.22 mg/Kg for Zn, Mn, Fe and Cu, respectively. While the average concentrations of chromium (0,024 mg/kg) and nickel (0.32 mg/kg) are lower and very similar in

different varieties. Toxic elements (Pb, Cd, As) are found at the trace level. Zinc was the most abundant element while cadmium was the lowest element in the Algerian honeys analyzed.

Keywords : *honey, physicochemical proprieties, toxic elements, trace elements.*

1. Introduction

Le miel est la substance naturelle sucrée produite par les abeilles *Apis mellifera* à partir du nectar de plantes ou à partir de sécrétions provenant de parties vivantes de plantes [1]. C'est l'un des aliments les plus complexes qui sont produit par la nature [2]. Il a été rapporté que le miel contient jusqu'à 200 substances, il est considéré comme une partie importante de la médecine traditionnelle [3]. La composition du miel est en fonction des espèces végétales, du climat, des conditions environnementales et de la contribution de l'apiculteur [4]. Des analyses sont réalisées afin d'évaluer la qualité des miels, celle-ci se définit par la mise en évidence de dégradations du produit, liées au processus de récolte et de conditionnement (chauffage excessif, fermentation, présence de résidus, etc...) [5].

Par conséquent, pour garantir l'authenticité, il est nécessaire d'analyser les échantillons de miel en détail [6]. En fait, de nombreuses études ont été menées sur l'analyse des miels à travers le monde [6-8]. Cependant, les étapes d'élaboration du miel sont complexes et susceptibles d'être altérées par les activités humaines, de manière volontaire ou non [9], L'abeille pour les besoins de la colonie, récolte nectars, miellats et pollens dans l'environnement qui est exposée à divers contaminants bactériologiques et chimiques tels que les éléments toxiques. Ces éléments peuvent se retrouver dans le produit fini qui est consommé par l'homme [10]. D'autre part, des éléments tels que le cadmium, le plomb et le mercure sont bien connus d'être toxiques pour l'homme [11]. En effet, les produits de la ruche servent de bio-indicateurs pour une contamination par des métaux lourds (As, Cd, Pb, Hg) dans un rayon de trois kilomètre autour de la ruche [12].

Les sources de contamination des miels par les métaux lourds peuvent être dues aux milieux extérieurs comme les émissions des usines, la métallurgie non ferreuse, l'essence plombée, l'utilisation des pesticides contenant le cadmium, le mercure organique, et les pesticides à base d'arsenic qui sont encore en usage dans certains pays [13]. Notre étude a pour objectif de faire une caractérisation de la qualité physicochimique et toxicologique de quelques variétés de miels provenant de différentes régions algériennes, la qualité toxicologique a été évaluée à travers le dosage des éléments traces et des éléments toxiques, afin de détecter une éventuelle contamination.

2. Matériel et méthodes

2-1. Echantillonnage

Notre étude a porté sur cinq échantillons de miels, récoltés durant la saison 2010-2011 de différentes régions mellifères d'Algérie. Les miels sont classés selon leurs origines florales et leurs provenances dans le **(Tableau 1)**. Les échantillons sont conditionnés dans des bocaux en verre hermétique, et conservés à 4°C jusqu'à l'analyse. Toutes les analyses ont été effectuées en trois répétitions.

Tableau 1 : Origine et année de récolte des échantillons de miels étudiés

Échantillon	Origine botanique	Localisation	L'année de production
Miel 1	Jujubier (monofloral)	Laghout	2010
Miel 2	Eucalyptus (monofloral)	Httatba	2010
Miel 3	Orange (monofloral)	Mitidja	2010
Miel 4	Eucalyptus (monofloral)	Oued mazafran	2010
Miel 5	Toutes fleurs (polyfloral)	Médea	2011

2-2. Paramètres physico-chimiques

Le pH est mesuré à l'aide d'un pH-mètre de type HANNA sur une solution de miel à 10% (v/v) dans l'eau distillée selon le journal officiel de la république française (1977) [14]. L'acidité libre est déterminée par la méthode potentiométrique. La teneur en eau est déterminée par la mesure de l'indice de réfraction à 20°C à l'aide d'un réfractomètre de type Abbé, La conductivité électrique a été mesurée en utilisant un conductimètre de type (CORNING pH/conductivity meter 442), selon Bogdanov et *al.* (2002) [15]. La quantité d'hydroxymethylfurfural (HMF) a été obtenue également avec la méthode de Bogdanov et *al.* (2002) [15], le principe est basé sur la lecture de l'absorbance de l'HMF à une longueur d'onde de 284 nm puis à 336 nm à l'aide d'un spectrophotomètre UV-Visible de type CECIL. Les sucres totaux, réducteurs et la saccharose ont été déterminés selon la méthode LuffSchoorl et Bertrand (1970) [16].

2-3. Détermination des éléments minéraux

Tous les produits chimiques utilisés lors de cette étude sont de qualité analytique. Les solutions ont été préparées par l'eau bidistillée. La solution mère utilisée est de concentration connue (100 mg/L) (Quality Control Standard21, Perkin-Elmer pure; lot: 6-175 GS). L'appareil utilisé est un spectrophotomètre d'émission optique couplé à un plasma inductif (ICP-OES) de type Perkin-Elmer Optima 7000 DV. Les conditions opératoires sont résumées dans le (**Tableau 2**).

Tableau 2 : Les conditions principales de ICP-OES

Paramètres	Valeurs
Nebuliseur	MEINHARD® Nbulizer
RF puissance (W)	1500
Fréquence du générateur (MHz)	27,12
Débit du plasma (L/min)	15
Débit du nebuliseur (L/min)	0,6
Débit du gaz auxilliaire (Ar) (L/min)	1,0
Temps d'integration max	30 s
Replicate	3

2-3-1. Préparation des échantillons pour ICP-OES

2-3-1-1. Procédure de digestion

La digestion sèche est la méthode appropriée pour cette étude. Avant la pesée, les échantillons de miel ont été homogénéisés. La méthode utilisée pour la digestion est celle de Tuzen et *al.* (2007) [17]. Trois répétitions ont été effectuées pour chaque échantillon. Un gramme de l'échantillon a été placé dans un creuset de porcelaine. La température du four a été augmentée graduellement à partir de la température ambiante à 450°C en 1h. Les échantillons ont été minéralisés pendant environ 8h jusqu'à l'obtention d'un résidu de cendres blanches ou grises. Le résidu a été dissous dans 5ml d'acide nitrique HNO₃ (25% v/v), le mélange a été chauffé lentement pour dissoudre le résidu. La solution a été transférée dans une fiole de 10 ml. Un blanc a été également préparé dans les mêmes conditions.

2-3-1-2. Analyse des échantillons par ICP-OES

Neuf métaux, à savoir Zn, Mn, Fe, Cu, Cr, Ni, Pb, Cd et As, ont été déterminés dans les solutions d'échantillon et du blanc. Les longueurs d'ondes pour la détermination des éléments sont listées dans le (**Tableau 3**). Les dosages sont effectués en réalisant un étalonnage. Les droites de calibration sont réalisées à partir de trois solutions étalons (1, 2 et 3 mg/L) qui sont préparées à partir d'une solution mère de concentration connue (100 mg/L), en utilisant l'eau bidistillée.

Tableau 3 : Les longueurs d'ondes utilisées pour le dosage avec ICP-OES

Elément	Longueur d'onde (nm)	Elément	Longueur d'onde (nm)
Zn	213,85	Ni	231,60
Mn	257,61	Pb	220,35
Fe	259,93	Cd	226,50
Cu	324,75	As	193,70
Cr	267,71		

2-3-2. Analyse statistique

Il faut noter que toutes les données représentent la moyenne de trois essais. Les résultats étant exprimés sous la forme de moyenne \pm écart type. Le traitement des résultats est effectué par le logiciel SYSTAT version 7.0.

3. Résultats et discussions

3-1. Analyses physicochimiques

Les résultats des analyses physicochimiques sont résumés dans le **Tableau 4**.

3-1-1. pH et acidité libre

Les valeurs de pH tendent vers l'acidité, ils sont comprises entre 3,66 et 4,04, par contre le pH de jujubier est de 6,33, il tend vers la neutralité. Ces valeurs sont en accord avec les recommandations du Codex Alimentarius [1], à l'exception le miel de jujubier. Un pH extrême, révèle une dégradation biochimique suite

à de mauvaises conditions de récolte ou de conservation [18]. Les valeurs de l'acidité libre varient entre 10 - 40 meq/kg, elles sont dans les limites des législations européennes (en dessous de 50 meq/kg), ce qui indique l'absence de fermentation indésirable. L'acidité des miels étudiés est inversement proportionnelle au pH.

3-1-2. Teneur en eau

La teneur en eau, est un paramètre lié au degré de maturité, il est responsable de la stabilité du miel lors de l'entreposage. Les valeurs obtenues sont comprises entre 13 et 15%, avec une valeur moyenne de 13,84%. Elles sont largement inférieures à 20% le maximum préconisé par les normes européennes [19]. Ces résultats sont révélateurs d'un bon stockage des miels étudiés. La teneur en eau du miel dépend des conditions environnementales et de la période de récolte, et il peut varier d'une année à une autre [20].

3-1-3. La conductivité électrique

La conductivité électrique des miels est étroitement liée à la concentration des sels minéraux, des acides organiques et les protéines. Les miels étudiés présentent des conductivités électriques variant entre 0,24 et 0,56 mS/cm avec une valeur moyenne de 0,40 mS/cm. Le miel d'eucalyptus de la région de Oued Mazafran possède la conductivité la plus élevée, ces valeurs se situent dans l'intervalle des valeurs trouvées en Algérie (de 0,21 à 1,61 mS/cm) [21]. Nos valeurs sont au-dessous de la limite maximale (0,8 mS/cm) préconisée par les normes européennes [19].

3-1-4. Hydroxyméthylfurfural

C'est un excellent indicateur de la qualité. Cette molécule apparaît au cours du processus de vieillissement naturel du miel. Ce processus est accéléré si les miels sont chauffés ou s'ils sont très acides. L'analyse de la quantité d'HMF est donc une excellente méthode pour apprécier la qualité d'un miel: son vieillissement et son chauffage [18]. La teneur en HMF, montre des valeurs comprises entre 1,64 et 76,34 mg/kg, les recommandations du Codex Alimentarius [1] fixent un maximum de 40 mg d'HMF/Kg de miel. Le miel d'eucalyptus provenant de la région d'Oued mazafran présente la teneur la plus élevée ce qui signifie que le miel a été chauffé.

3-1-5. Sucres totaux et réducteurs

Les teneurs obtenues pour les sucres totaux et réducteurs des miels varient de 77,93 à 82,80% et de 61,40 à 79,87%, respectivement. Ces résultats confirment que les sucres sont les constituants majoritaires du miel. Le miel de jujubier a présenté le taux de sucres réducteurs le plus faible (61,40%). Le Codex Alimentarius recommande une valeur maximale de 60% pour les sucres réducteurs, dès lors les échantillons étudiés répondent à cette dernière recommandation.

3-1-6. Saccharose

Les taux de saccharose des miels des régions étudiées varient de 2,80 à 16,91% avec une valeur moyenne de 6,62%. Tous nos échantillons répondent aux recommandations établies par le codex Alimentarius [1] qui fixe une limite maximale de 5% pour tous types de miels et de 10 % pour le miel d'eucalyptus, le miel de jujubier étudié excède la limite recommandée, cette teneur élevée peut indiquer que les abeilles ont été nourries avec un sirop de saccharose, ou une récolte précoce de miel, dans laquelle la saccharose n'a pas été entièrement transformée en glucose et fructose [4].

Tableau 4 : Résultats des analyses physicochimiques des échantillons de miel (moyenne \pm écart type)

Paramètres	Miel 1	Miel 2	Miel 3	Miel 4	Miel 5
pH	6,33 \pm 0,01	4,03 \pm 0,03	3,74 \pm 0,02	3,66 \pm 0,03	4,04 \pm 0,03
Acidité libre (meqAc/Kg)	10 \pm 0,31	29 \pm 0,22	32 \pm 0,38	36 \pm 0,22	40 \pm 0,29
Teneur en eau (%)	13 \pm 0,51	13,6 \pm 0,25	14,6 \pm 0,00	15 \pm 0,44	13 \pm 0,29
HMF(mg/Kg)	1,64 \pm 0,04	12,72 \pm 0,053	19,76 \pm 0,046	76,34 \pm 0,01	16,91 \pm 0,15
Conductivité (mS/cm)	0,47 \pm 0,01	0,44 \pm 0,5	0,24 \pm 0,01	0,56 \pm 0,09	0,33 \pm 0,03
Sucres totaux(%)	79,21 \pm 2,12	82,83 \pm 0,70	77,93 \pm 0,00	82,14 \pm 4,59	78,92 \pm 0,70
Sucresréducteurs (%)	61,40 \pm 3,06	79,87 \pm 1,76	74,98 \pm 1,06	75,78 \pm 1,53	74,15 \pm 2,94
Saccharose (%)	16,91	2,81	2,80	6,04	4,53

3.2. Composition minérale

Les résultats de la composition minérale sont représentés dans les *Tableaux 5 et 6*.

3-2-1. Zinc

Les teneurs obtenues montrent que le zinc est l'élément prédominant dans tous les variétés de miels étudiées avec une valeur moyenne de 11,04 mg/Kg. Elle est significativement plus élevée dans le miel d'oranger de la région de Mitidja (14,51 mg/Kg), la teneur la plus faible (8,02 mg/Kg) est observé pour le miel toutes fleurs provenant de Médéa. Les auteurs attribuaient ce fait à la présence aléatoire de cet élément dans l'environnement, soit en tant que polluants ou comme constituants naturels des fleurs [22]. De même, le stockage du miel dans des conteneurs galvanisés peut être considéré comme une source de contamination par le zinc [23].

3-2-2. Manganèse

Des taux en manganèse très proches variant entre 2,50 et 3,49 mg/Kg ont été décelés pour les miels étudiés, la valeur moyenne de l'ensemble est de 3,06 mg/Kg. Les concentrations de manganèse trouvées sont en accord avec la littérature [17, 24]. L'ingestion de 100 g de miels répond à 65% à la dose journalière recommandée [25].

3-2-3. Fer

Les teneurs de fer minimales et maximales observées sont de 1,95mg/kg dans le miel d'eucalyptus de la région de Httatba et 6,37mg/kg dans le miel de jujubier de la région de Laghouat, respectivement. Les miels

toutes fleurs et jujubier sont les plus riches en fer. La variabilité de la teneur en minéraux peut être attribuée à des facteurs environnementaux, botaniques, ou géographiques [26].

3-2-4. Cuivre

La valeur maximale observée pour le cuivre est de 3,22 mg/Kg concernant le miel d'eucalyptus de Httatba, la valeur minimale de 2,72 mg/Kg a été enregistrée pour le miel d'oranger. Des valeurs de cuivre faible ont été rapportées dans la littérature variant de 0,05 à 1,84 mg/Kg pour différentes variétés de miels marocains [24]. Le cuivre peut contaminer l'environnement par l'utilisation des pesticides contre les parasites qui endommagent les récoltes [27].

3-2-5. Chrome

Les teneurs en chromes sont presque égales pour l'ensemble des variétés de miels dosées avec une moyenne de 0,023 mg/Kg, ces teneurs se situent dans l'intervalle des valeurs annoncées par Chakir et al.[24] qui est de 0 à 0,262 mg/Kg pour des miels marocains. Le contact avec des surfaces en acier inoxydable au cours de la récolte, la transformation et/ou la préparation des miels peut le contaminer par le chrome, en raison de l'effet corrosif de l'acidité du miel [11].

3-2-6. Nickel

Le nickel est présent en quantité faible pour l'ensemble des variétés de miels de différentes régions avec une moyenne de 0,320 mg/Kg. En général, les concentrations de nickel dans les miels se situent entre 0,3 et 1,3 mg / kg. Ces concentrations peuvent être accidentelle ou la plupart du temps naturel [28].

Tableau 5 : Les teneurs en éléments traces (mg/Kg) dans les échantillons de miel

Elements traces	Miel 1	Miel 2	Miel 3	Miel 4	Miel 5
Zn	9,59 ± 0,10	11,76 ± 0,20	14,51 ± 0,47	11,34 ± 0,17	8,02 ± 0,08
Fe	4,94 ± 0,50	1,95 ± 1,70	2,16 ± 0,77	3,07 ± 0,16	6,37 ± 0,10
Mn	3,42 ± 0,10	3,03 ± 0,28	2,50 ± 0,12	3,49 ± 0,31	2,87 ± 0,12
Cu	3,14 ± 0,26	3,22 ± 0,09	2,72 ± 0,15	2,94 ± 0,07	2,94 ± 0,13
Cr	0,03 ± 1,00	0,02 ± 0,9	0,02 ± 2,00	0,02 ± 0,70	0,02 ± 0,30
Ni	0,35 ± 0,004	0,32 ± 0,02	0,31 ± 0,04	0,30 ± 0,03	0,30 ± 0,002

3-2-7. Plomb

La valeur moyenne du plomb contenue dans les miels analysés est de 0,22 mg/Kg. Des concentrations largement supérieures ont été trouvées par Rashed et Soltan[29] pour des miels égyptiens: 14; 15,5 et 19 mg/Kg pour le miel d'orange, sesame et trèfle, respectivement. Il n'existe pas de limites maximales

résiduelles spécifiques des éléments toxiques pour le miel, mais une valeur de 1 mg/Kg a été proposée par l'Union Européenne [26]. En effet, les teneurs en plomb trouvées pour toutes les variétés de miels étudiées sont largement inférieures à la valeur proposée par l'union Européenne.

3-2-8. Arsenic

Les teneurs trouvées pour l'arsenic sont presque égales et la différence est non significative entre les différentes variétés. Les niveaux d'arsenic obtenus sont légèrement plus élevés que ceux trouvés en Croatie pour le miel polyfloral avec une valeur moyenne de 0,0095 mg/kg [30]. Cependant, une très forte teneur en arsenic dans le miel (de 1,24 à 1,49 mg/kg) a été trouvée en Slovénie [31].

3-2-9. Cadmium

Les valeurs de cadmium sont faibles à l'état de trace dans tous les variétés de miels, ils ont varié entre 0,018 et 0,019mg/kg. Ces valeurs sont proches de celles de Chakiret *al.*[24], alors que Rashed et Soltan[29] ont détecté des valeurs de cadmium plus élevées de l'ordre de 0,5 mg/kg pour le miel égyptien. Il n'existe pas des limites maximales résiduelles spécifiques au cadmium pour le miel, mais une valeur de 0,1mg/kg a été proposée par l'Union Européenne [26]. Les teneurs en cadmium trouvées pour toutes les variétés de miels étudiées sont largement inférieures à cette valeur. Finalement, la concentration des éléments minéraux dans tous les miels étudiés est dans l'ordre suivant: 1) pour les éléments traces Zn>Fe>Mn>Cu>Ni>Cr, 2) pour les éléments toxiques Pb>As>Cd.

Tableau 6 : *Eléments toxiques (mg/Kg) dans les échantillons de miel*

Éléments toxiques	Miel 1	Miel 2	Miel 3	Miel 4	Miel 5
Pb	0,28 ± 0,10	0,25 ± 0,30	0,23 ± 1,1	0,23 ± 0,8	0,22 ± 1,7
As	0,022 ± 0,90	0,021 ± 0,26	0,024 ± 0,30	0,021 ± 0,43	0,020 ± 0,40
Cd	0,019 ± 0,02	0,018 ± 0,07	0,018 ± 0,19	0,018 ± 0,06	0,018 ± 0,07

4. Conclusion

Les résultats de cette étude indiquent que les échantillons de miel prélevés dans cinq régions différentes de l'Algérie, étaient pour la plupart de bonne qualité chimique, répondant aux normes imposées, sauf pour le miel de jujubier provenant de Laghouat et d'eucalyptus de Oued mazafran. Les éléments traces qui sont présents dans nos échantillons de miels en quantité modérée ne présentent aucun risque sur la santé tant qu'ils sont à faible doses. Par contre, ils participent au bon fonctionnement de l'organisme. Les éléments toxiques détectés dans les miels étudiés, ne présentent aucun risque du fait qu'ils sont au-dessous de la limite maximale résiduelle. Par conséquent, ces résultats indiquent que les zones de productions de ces miels sont non polluées par les éléments toxiques. Des recherches doivent être menées périodiquement sur la composition du miel pour indiquer leur origine et de suivre l'évolution des polluants dans une zone particulière. Il est important de prendre des précautions indispensables pour assurer la normalisation et la rationalisation des techniques apicoles, les procédés de fabrication et les processus de stockage pour améliorer la qualité du miel.

Références

- [1] - CODEX STAN 12, Codex norme pour le miel, Norme adoptée en 1981. Révisions en 1987 et(2001) 1-10.
- [2] - E. MENDES, E. BROJO PROENÇA, I.M.P.L.V.O. FERREIRA and M.A. FERREIRA, Quality evaluation of Portuguese honey, *Rev. Carbohydr. Polym.*, 03 (1998) 219–223.
- [3] - J.W. WHITE, “Composition of Honey”, Ed. Crane Honey: A Comprehensive Survey. Heinemann, London (1979) 157–158.
- [4] - E. ANKLAM, A review of the analytical methods to determine the geographical and botanical origin of honey, *Rev. Food Chem.*, 63(1998) 549–562.
- [5] - H. CLEMENT, “Le Traité Rustica de l’Apiculture”, Ed. Rustica/FLER, Paris (2006), 528 p.
- [6] - A. TERRAB, A.G. GONZÁLEZ, M.J. DÍEZ and F.J. HEREDIA, Characterization of Moroccan unifloral honeys using multivariate analysis, *Rev. Europ Food Resea and Techn.*, 218(2003) 88–95.
- [7] - A.S. AL-KHALIFA and I.A. AL-ARIFY, Physicochemical characteristics and pollen spectrum of some Saudi honeys, *Rev. Food Chem.*, 67 (1999) 21-25.
- [8] - P.B. ANDRADE, M. TERESA AMARAL, I. PAULO, C.M.F. JOAÃO CARVALHO, M. ROSA SEABRA and ANTÔNIO PROENÇA DA CUNHA, Physicochemical attributes and pollen spectrum of Portuguese heather honeys, *Rev. Food Chem.*, 66(1999) 503-510.
- [9] - G. FALCO, J.L. DOMINGO, J.M. LOBET, A. TEIXIDO, C. CASA and L. MULLER, Polycyclic aromatic hydrocarbons in foods: human exposure through the diet in Catalonia, *Rev. Spain Jour of Food Prot.*, 66(2003) 2325–2331.
- [10] - C. FLECHE, M.C. CLEMENT, S. ZEGGANE and J.P. FAUCON, Contamination des produits de la ruche et risques pour la santé humaine : situation en France, *Rev. Sci Tech Off Int Epiz.*, 16 (2) (1997) 609-619.
- [11] - C. FREDES and G. MONTENEGRO, Heavy metals and other trace elements contents in Chilean honey, *Rev. Ciencia e Investigacion Agraria.*, 33 (2006) 50–58.
- [12] - C. PORRINI, S. GHINI, S. GIROTTI, A.G. SABATINI, E. GATTAVECHIA and G. CELLI, “Honey bees: Estimating the Environmental Impacts of Chemicals”, ED. J. Devillers, M.H. Pham-Delegue, Taylor & Francis, London (2002) 185–247.
- [13] - A. PISANI, G. PROTANO and F. RICCOBONO, Minor and trace elements in different honey types produced in Siena County (Italy), *Rev. Food Chem.*, 107 (2008) 1553–1560.
- [14] - JOURNAL OFFICIEL FRANÇAIS Arrêté du 15/02/77 Relatif aux Méthodes Officielles d’Analyse du Miel (Journal Officiel de la République Française - N.C. du 22/04/77), (1977).
- [15] - S. BOGDANOV, C. LÜLLMANN, P. MARTIN, W. VON DER OHE, H. RUSSMANN, G. VORWOHL, L. PERSANO-ODDO, G. SABATINI A, G.L. MARCAZZAN, R. PIRO, C. FLAMINI, M. MORLOT, J. LHERETIER, R. BORNECK, P. MARIOLEAS, A. TSIGOURI, J. KERKVLIT, A. ORTIZ, T. IVANOV, B. D’ARCY, B. MOSSEL And P VIT, Honey Quality, Methods of Analysis and International Regulatory Standards: Review of the Work of the International Honey Commission, Liebefeld Switzerland, Swiss Bee Res. Center (2000).
- [16] - LUFF SCHOORL and BRTRAND, Rapporté dans le journal officiel francais du 22 avril (1977), 2250-2251.
- [17] - M. TUZEN, S. SILICI, D. MENDIL and M. SOYLAK, Trace element levels in honeys from different regions of Turkey, *Rev. Food Chem.*, 103 (2007) 325–330.
- [18] - V.C. DESCHAMPS, Production et commercialisation du miel, Thèse de doctorat vétérinaire, Université Paul Sabatier, Toulouse, (1998) 118 P.
- [19] - Journal officiel des Communautés européennes, DIRECTIVE 2001/110/CE DU CONSEIL relative au miel du 20 décembre 2001.
- [20] - C. ACQUARONE, P. BUERA and B. ELIZALDE, Pattern of pH and electrical conductivity upon honey dilution as a complementary tool for discriminating geographical origin of honeys, *Rev. Food Chem.*, 101(2007) 695–703.

- [21] - S. OUCHEMOUKH, H. LOUAILECHE and P. SCHWEITZER, Physicochemical characteristics and pollen spectrum of some Algerian honeys, *Rev. Food cont* 18(2007) 52-58.
- [22] - L. LEITA, G. MUHLBACHOVA, S. CESCO, R. BARBATTINI, BARBATTINI and R. MONDINI, Investigation of the use of honey bees and honey bee products to assess heavy metals contamination, *Rev. EnvilMoni and Asses.*, 43 (1996) 1-9.
- [23] - S. BOGDANOV, A. IMDORF, J.D. CHARRIÈRE, P. FLURI and V. KILCHENMANN, Qualité des produits apicoles et sources de contamination. Centre suisse de recherches apicoles (2003), 12 p.
- [24] - A. CHAKIR, A. ROMANE, N. BARBAGIANNI, D. BARTOLI and P. FERRAZZI, Major and Trace Elements in Different Types of Moroccan Honeys, *Rev. Australian J. of Basic and App Scien.*, 5 (2011) 223-231.
- [25] - M. GREMBECKA, E. MALINOWSKA and P. SZEFER, P, Differentiation of market coffee and its infusions in view of their mineral composition, *Rev. ci of the Total Env.*, 383 (2007) 59-69.
- [26] - S. BOGDANOV S, Contaminants of bee products. *Apidologie*, 37 (1) (2006) 1-18.
- [27] - M.R. PROVENZANO, H. EL BILALI, V. SIMEONE, N. BASER, D. MONDELLI and G. CESARI, Copper contents in grapes and wines from a Mediterranean organic vineyard, *Rev. Food Chem.*, 72 (2010) 89-95.
- [28] - S. BOGDANOV, Produits apicoles, 23A Miel, Revus par le groupe d'experts « Produits apicoles » (2004) 37 P.
- [29] - M.N. RASHED and M.E. SOLTAN, Major and trace elements in different types of Egyptian mono-floral and non-floral bee honeys, *Rev. J of Food Comp and Anal.*, 17 (2004) 725–735.
- [30] - N. BILANDZIC, MAJA DOKIC, S. MARIJA, K. BOZICA SOLOMUN, I. VARENINA, A. KONCURAT and N. RUDAN, Determination of trace elements in Croatian floral honey originating from different regions, *Rev. Food Chem.*, 128 (2011) 1160–1164.
- [31] - T. GOLOB, U. DOBERSEK, P. KUMP and M. NECEMER, Determination of trace and minor elements in Slovenian honey by total reflection X-ray fluorescence spectroscopy, *Rev. Food Chem.*, 91 (2005) 593–600.