

Les PCB dans l'environnement marin. Aspects géochimiques d'apports et de distribution. Cas du littoral français
The PCB's in the marine environment. Geochemical aspects of inputs and distribution. A case studied: the french shoreline

M. Marchand

Volume 2, Number 3, 1989

URI: <https://id.erudit.org/iderudit/705036ar>

DOI: <https://doi.org/10.7202/705036ar>

[See table of contents](#)

Publisher(s)

Université du Québec - INRS-Eau, Terre et Environnement (INRS-ETE)

ISSN

0992-7158 (print)

1718-8598 (digital)

[Explore this journal](#)

Cite this article

Marchand, M. (1989). Les PCB dans l'environnement marin. Aspects géochimiques d'apports et de distribution. Cas du littoral français. *Revue des sciences de l'eau / Journal of Water Science*, 2(3), 373–403.
<https://doi.org/10.7202/705036ar>

Article abstract

PCB's are a group of chlorinated chemicals particularly persistent in the environment. The total global production of PCB compounds is evaluated at 1 200 000 tons and about 30 % are dispersed in the environment, mainly in the oceans. Distribution of these substances in the aquatic environment depends on exchange mechanisms at seawater/atmosphere and seawater/sediment interfaces, at abiotic and biotic transformation processes and at bioconcentration processes in the biota. Twenty years of research work allow us to describe with sufficient precision the biogeochemical cycle of PCB's in the marine environment. The PCB contamination of the French coastal marine environment is investigated more closely. Total PCB production in France is evaluated at 123 000 tons and pollutant inputs to the coastal marine environment, via rivers and atmosphere, are estimated between 2.5 and 3.0 tons/years. The Least polluted zones are in the English Channel along the north coast of Brittany till Normandy (West Cotentin) and in the Mediterranean along the east coast of Corsica. The most highly polluted area is constituted by the estuary and the bay of the Seine which receive river pollutant inputs. High PCB contaminations are also observed in industrial and urban zones, and in areas which receive untreated urban sewage (ex. Marseille). Several short-term surveys let us suppose there has been a general decrease in PCB levels along the French coastal marine environment in the last decade.

Les PCB dans l'environnement marin. Aspects géochimiques d'apports et de distribution. Cas du littoral français

The PCB's in the marine environment.
Geochemical aspects of inputs and distribution.
A case studied : the french shoreline

M. MARCHAND

RÉSUMÉ

Les PCB représentent un groupe de substances chimiques chlorées particulièrement rémanentes dans l'environnement. La production mondiale cumulée est évaluée à 1 200 000 tonnes et environ 30 % de cette production sont dispersés dans l'environnement, essentiellement dans le milieu océanique. La distribution de ces substances dans l'environnement aquatique est fonction des mécanismes d'échanges aux interfaces eau/atmosphère, eau/sédiment, aux processus de transformation abiotiques et biotiques, et aux processus de bioconcentration dans les organismes vivants. Les travaux réalisés depuis une vingtaine d'années permettent de décrire assez précisément le cycle biogéochimique des PCB dans le milieu océanique. La contamination du milieu marin côtier français est examinée plus particulièrement. La production totale des PCB en France est estimée à 123 000 tonnes et les apports polluants vers le milieu marin côtier, par les fleuves et l'atmosphère, sont évalués entre 2,5 et 3,0 tonnes par an. Les zones côtières les moins touchées par la contamination des PCB sont localisées en Manche sur le littoral nord de la Bretagne jusqu'en Normandie (Ouest Contentin) et en Méditerranée sur le littoral est de la Corse. La zone la plus contaminée est l'estuaire et la baie de Seine qui reçoivent les apports contaminants fluviaux de la Seine. De fortes contaminations sont également observées dans les zones industrielles et urbaines, et dans les secteurs qui reçoivent les effluents urbains non traités (ex : Marseille).

(1) IFREMER, Centre de Brest, Département Environnement Littoral,
B.P. 70, 29263 Plouzané, France.

Plusieurs études réalisées régulièrement suggèrent une décroissance générale des niveaux de contamination le long du littoral français depuis une décennie.

Mots clés : PCB, milieu marin, France, eau de mer, sédiments, organismes marins

SUMMARY

PCB's are a group of chlorinated chemicals particularly persistent in the environment. The total global production of PCB compounds is evaluated at 1 200 000 tons and about 30 % are dispersed in the environment, mainly in the oceans. Distribution of these substances in the aquatic environment depends on exchange mechanisms at seawater/atmosphere and seawater/sediment interfaces, at abiotic and biotic transformation processes and at bioconcentration processes in the biota. Twenty years of research work allow us to describe with sufficient precision the biogeochemical cycle of PCB's in the marine environment. The PCB contamination of the French coastal marine environment is investigated more closely. Total PCB production in France is evaluated at 123 000 tons and pollutant inputs to the coastal marine environment, via rivers and atmosphere, are estimated between 2.5 and 3.0 tons/years. The least polluted zones are in the English Channel along the north coast of Brittany till Normandy (West Cotentin) and in the Mediterranean along the east coast of Corsica. The most highly polluted area is constituted by the estuary and the bay of the Seine which receive river pollutant inputs. High PCB contaminations are also observed in industrial and urban zones, and in areas which receive untreated urban sewage (ex. Marseille). Several short-term surveys let us suppose there has been a general decrease in PCB levels along the French coastal marine environment in the last decade.

Key-words : PCB, marine environment, France, seawater, sediment, biota.

1 - INTRODUCTION

La production commerciale des polychlorobiphényles (PCB) a commencé en 1929. Une large utilisation de ces produits comme liquides diélectriques, fluides hydrauliques, fluides caloporteurs, adjuvants dans les lubrifiants, peintures, vernis, adhésifs, plastiques, découle directement de leurs propriétés physiques et chimiques particulières. La présence des PCB dans l'environnement a été longtemps méconnue, et la première identification remonte à 1966 dans l'archipel de Stockholm (JENSEN, 1966). Par la suite, les études ont rapidement démontré que l'ensemble de l'environnement terrestre et marin était contaminé par les PCB.

La stabilité chimique de ces composés est à l'origine de leur très grande utilisation industrielle et explique également leur présence rémanente dans l'environnement. En raison de leur caractère liposoluble, les PCB s'accumulent dans les tissus lipidiques des organismes vivants. Les coefficients de partage des PCB entre les organismes aquatiques et l'eau sont de l'ordre de 10^4 à 10^6 . Ainsi des niveaux de contamination faibles dans les eaux naturelles peuvent donner lieu à une accumulation élevée chez les membres de communautés biotiques. Il est établi à présent que ces substances sont des contaminants que l'on retrouve systématiquement dans les écosystèmes aquatiques d'eau douce et d'eau salée. Cette étude vise à actualiser les données les plus récentes sur les apports, les mécanismes de transport et de distribution des PCB dans l'environnement marin, en mettant l'accent plus particulièrement sur l'état de contamination actuel du milieu marin côtier français.

2 - PRODUCTION, UTILISATION, RÉGLEMENTATION

Le terme polychlorobiphényles (PCB) est un nom collectif pour désigner un groupe de substances chimiques définies comme des hydrocarbures halogénés à haut poids moléculaire (fig. 1). Ils sont fabriqués par chloration progressive du radical

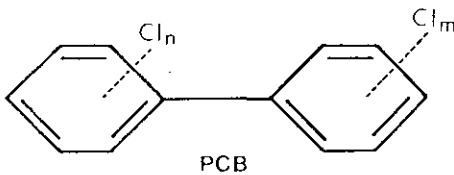


Figure 1.- Structure chimique des PCB.

Figure 1.- Chemical structure of PCB's.

biphényle en présence d'un catalyseur (limaille de fer ou chlorure ferrique).

La production industrielle des PCB a commencé aux Etats-Unis en 1930, augmentant régulièrement chaque année pour atteindre en 1970 une production maximale annuelle de 38 000 tonnes. La décennie suivante est marquée par l'effet des réglementations mises

en place pour la protection de l'environnement. De 1970 à 1980, la production totale des PCB dans les pays membres de l'OCDE a été réduite de 60 %, passant de 44 300 à 16 600 tonnes par an (OCDE, 1982). A partir de cette date, les PCB ne sont plus fabriqués aux Etats-Unis, en Grande Bretagne et au Japon.

La France et l'Allemagne paraissent être devenus les principaux producteurs de PCB avec des chiffres de production de 6 000 à 7 000 tonnes par an en 1980 (fig. 2). En estimation cumulée (tableau 1), la production totale française de 1945 à 1984 est de 123 000 tonnes (BLETCHLY, 1984), soit sensiblement 10 % de la production mondiale cumulée, évaluée à 1,2 mégatonne (TANABE, 1985).

L'usage des PCB peut se diviser en trois catégories : (i) les systèmes clos contrôlables tels que les transformateurs et grands condensateurs (> 1 kg) qui utilisent les PCB comme agents diélectriques, (ii) les systèmes clos incontrôlables où la récupération des PCB, bien que théoriquement possible, n'est guère envisageable sur un plan pratique ; c'est le cas notamment de l'utilisation des PCB dans les petits condensateurs, (iii) les utilisations dispersives lorsque les PCB sont employés comme

adjuvants dans la formulation d'huiles, dans les peintures, encres, papiers, adhésifs, plastiques.

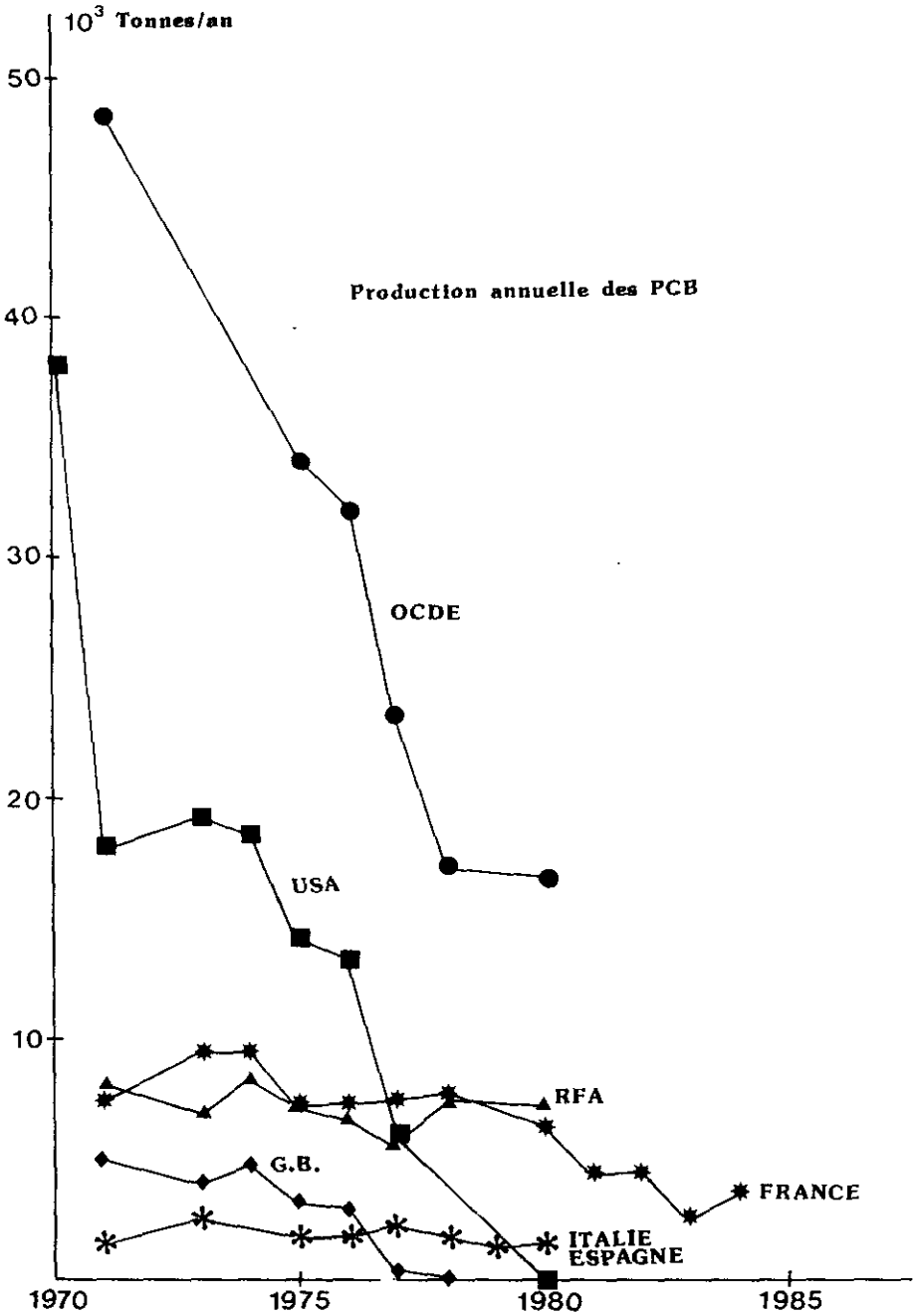


Figure 2.- Production annuelle des PCB (tonnes/an).

Figure 2.- Annual production of PCB's (tons/year).

Tableau 1.- Production française de PCB (tonnes).
(réf. : OCDE, 1982 ; BLETCHLY, 1984).

Table 1.- PCB production in France (tons).
(ref. : OCDE, 1982 ; BLETCHLY, 1984).

| | |
|---------------|--------|
| 1945 - 1949 : | 300 |
| 1950 - 1954 : | 2 540 |
| 1955 - 1969 : | 17 000 |
| 1970 - 1974 : | 45 000 |
| 1975 - 1979 : | 37 000 |
| 1980 - 1984 : | 21 500 |

Depuis la mise en place des réglementations à partir de 1972 pour limiter la dispersion des PCB dans l'environnement, les usages en systèmes ouverts, qui constituaient la source principale de contamination ont peu à peu cessé. Les transformateurs et les condensateurs électriques restent les consommateurs principaux de PCB dans la plupart des pays membres de l'OCDE. Depuis 1980, la consommation française représente 18 à 30 % de la production soit de 700 à 1 600 tonnes par an et l'essentiel de cette consommation concerne le matériel électrique. Une centaine de milliers de transformateurs sont en service dans les immeubles, écoles, hôpitaux, entreprises privées et publiques. Les quantités de PCB varient selon les transformateurs d'une centaine de kilogrammes à quelques tonnes. En moyenne, le chiffre retenu est de 500 kg par unité, soit pour le parc français, une quantité totale de 50 000 tonnes de PCB. Les petits condensateurs (systèmes clos incontrôlables) pour moteurs électriques, tubes fluorescents contiennent quelques dizaines de cm³ de PCB. Les plus grands condensateurs contiennent en moyenne 10 kg de PCB par élément, soit pour environ 300 000 unités installées sur le territoire français, une quantité totale de 3 000 tonnes. Au niveau national, la quantité totale de PCB utilisée se situe donc entre 50 000 et 60 000 tonnes, soit sensiblement la moitié de la production française.

Les mesures réglementaires concernant spécifiquement les PCB ont été prises dans la plupart des pays de l'OCDE durant la dernière décennie. En France, le décret du 26 juillet 1975 fixe les conditions d'emploi des polychlorobiphényles (essentiellement en systèmes clos contrôlables). Le dernier décret du 2 février 1987 décide de l'interdiction totale des PCB dans les nouveaux appareils à système clos mis en service, les anciens restant soumis au précédent décret de 1975.

Par ailleurs, plusieurs normes provisoires fixent les concentrations maximales permises des PCB dans les espèces comestibles pour la protection de la santé humaine. Ainsi, pour les poissons, mollusques et crustacés marins, elles sont de 2 mg kg⁻¹ (poids frais) aux Etats-Unis et en France. D'autres réglementations ont été établies, notamment au Japon qui fixe une norme d'émission des PCB dans les effluents à 3 µg.l⁻¹, et une norme environnementale d'élimination des sédiments contenant plus de 10 µg.g⁻¹ de PCB. Les critères de qualité des eaux naturelles, aussi bien pour les eaux douces que pour les eaux marines, établies par l'EPA aux Etats-Unis, pour la protection de la vie aquatique, donnent comme concentration maximale 1 ng l⁻¹ pour les PCB (BEDDING *et al.*, 1983).

3 - CYCLE BIOGÉOCHIMIQUE ET DISTRIBUTION DANS LE MILIEU MARIN

3-1 Propriétés physico-chimiques

L'environnement, pris dans son sens le plus général, peut être schématisé par ses quatre principaux compartiments : l'atmosphère, l'eau, les sédiments (ou les sols) et la matière vivante. Le cycle biogéochimique d'une substance chimique est décrit en termes, d'une part de mécanismes de transport (ou de transfert) entre les différents compartiments, d'autre part de processus de transformation (ou de dégradation biotique ou abiotique) à l'intérieur de ces compartiments. L'importance de ces différents processus biogéochimiques dépend des conditions de l'environnement lui-même, mais également de la structure chimique des substances considérées et par conséquent de leurs propriétés physico-chimiques telles que la solubilité dans l'eau, la pression de vapeur, la constante de la loi de Henry, le coefficient de partage octanol/eau. Ces propriétés conditionnent les mécanismes d'échange à l'interface eau/atmosphère, les processus d'adsorption sur les sols ou les sédiments, le transfert biologique (bioconcentration).

Pour évaluer le comportement des PCB dans l'environnement, il convient de définir au mieux leurs propriétés physiques et chimiques (tableau 2). A titre comparatif, nous avons associé d'autres substances organochlorées de structure chimique voisine (DDT) ou différente (lindane, tétrachloro-éthylène).

3-2 Echange eau/atmosphère

En 1972, HARVEY *et al.*, (1973) identifient les PCB dans les eaux océaniques de l'Atlantique nord et mesurent une concentration moyenne de 35 ng.l^{-1} . Un an plus tard, les mêmes auteurs (HARVEY *et al.*, 1974) observent que les niveaux de contamination ont fortement diminué et se situent au niveau du ng.l^{-1} . Aucune explication satisfaisante et raisonnable n'a permis de comprendre la raison de cette décroissance si rapide (cf. la discussion critique de DUCE et DUURSMA, 1977). Les PCB sont également mesurés dans les eaux du large de la Méditerranée, en moyenne à 2 ng.l^{-1} en 1975 (ELDER et VILLENEUVE, 1977) et à $0,7 \text{ ng.l}^{-1}$ de 1977 à 1979 (VILLENEUVE *et al.*, 1980). La présence des PCB dans les eaux marines hauturières montre par conséquent le rôle joué par l'atmosphère comme source d'apport et de contamination.

Les teneurs observées de PCB dans l'atmosphère varient dans une large gamme, de $0,01$ à $0,1 \text{ ng.m}^{-3}$ dans les zones océaniques à plusieurs ng.m^{-3} dans les secteurs continentaux. Dans les zones littorales, les concentrations mesurées se situent dans une gamme intermédiaire, de $0,2$ à $1,0 \text{ ng.m}^{-3}$ (ATLAS *et al.*, 1986). Ainsi, sur 36 mesures effectuées à Monaco de 1975 à 1977, la concentration moyenne était de $0,34 \pm 0,27 \text{ ng m}^{-3}$ (VILLENEUVE, 1986). Les mesures réalisées montrent que les PCB dans l'atmosphère marin sont principalement présents à l'état gazeux. En réalité, la distribution de telles substances organiques entre la phase vapeur et la phase particulaire (adsorption sur les aérosols) dépend de leur pression de vapeur (l'augmentation du taux de chloration des PCB favorise une présence à l'état particulaire), mais également de la concentration des aérosols et de la température de l'atmosphère (tableau 3).

Tableau 2.- Propriétés physico-chimiques des PCB et autres composés organochlorés.

Table 2.- Physico-chemical properties of PCB's and other organochlorine compounds.

| Composés | Poids moléculaire moyen (g) | % moyen en chlore | Température d'ébullition (°C) | Pression de vapeur (Atm) (1) | Solubilité (mole l ⁻¹) (2) | Constante de la loi de Henry H (Atm m ³ mole ⁻¹) (3) | Coefficient de partage octanol/eau log Kow (4) |
|----------------------|-----------------------------|-------------------|-------------------------------|-------------------------------|--|---|--|
| PCB Aroclor 1242 | 261 | 42 | 325 - 366 | (5,4 - 11,8) 10 ⁻⁷ | (0,8 - 2,7) 10 ⁻⁶ | 5,73.10 ⁻⁴ | 5,58 |
| Aroclor 1248 | 288 | 48 | 340 - 375 | (6,5 - 10,9) 10 ⁻⁷ | (1,8 - 3,4) 10 ⁻⁷ | 3,51.10 ⁻³ | 6,11 |
| Aroclor 1254 | 327 | 54 | 365 - 390 | (1,0 - 2,4) 10 ⁻⁷ | (0,4 - 2,1) 10 ⁻⁷ | 2,76.10 ⁻³ | 6,47 |
| Aroclor 1260 | 372 | 60 | 385 - 420 | (5,4 - 11,8) 10 ⁻⁸ | (0,8 - 6,7) 10 ⁻⁸ | 7,13.10 ⁻³ | 6,91 |
| DDT | 354 | - | 260 | 1,3.10 ⁻¹⁰ | 3,4.10 ⁻⁹ | 3,89.10 ⁻⁵ | 6,19 |
| Lindane | 291 | - | 323 | 1,24.10 ⁻² | 2,5.10 ⁻⁵ | 4,93.10 ⁻⁷ | 3,85 |
| Tétrachloro-éthylène | 166 | - | 121 | 1,84.10 ⁻² | 9,0.10 ⁻⁴ | 2,00.10 ⁻² | 2,53 |

(1) Réf. : PEARSON (1982) ;

(2) Réf. : MACKAY *et al.*, (1980) ;

(3) Réf. : MACKAY et LEINONEN (1975) ;

(4) Réf. : MACKAY (1982).

Tableau 3.- Pourcentage de PCB (Aroclor 1254) présent en phase particulaire dans l'atmosphère en fonction de la concentration de l'aérosol et de la température (ATLAS et al., 1986).

Table 3.- Variations of PCB particulate fraction (%) in the atmosphere with aerosol concentrations and temperature (ATLAS et al., 1986).

| Environnement | Milieu urbain | Milieu océanique |
|----------------------------|-------------------------|------------------------|
| Concentration de l'aérosol | 60 $\mu\text{g.m}^{-3}$ | 7 $\mu\text{g.m}^{-3}$ |
| Température : 20°C | 2,1 % | 0,3 % |
| : 0°C | 25 % | 3,7 % |

La dynamique du transfert entre l'eau et l'atmosphère recouvre en réalité trois processus distincts, d'une part dans un sens réversible les échanges gazeux à l'interface eau/atmosphère (décrits par le modèle à deux couches de LISS et SLATER, 1974), d'autre part dans un sens irréversible les apports de l'atmosphère vers l'océan constitués par les retombées des particules solides atmosphériques (voie sèche) et les apports des eaux de pluie et de neige (voie humide) (HUNTER et LISS, 1977).

Plusieurs estimations d'apports atmosphériques des PCB vers le milieu aquatique, terrestre ou marin, ont été réalisées. EISENREICH et al., (1981) résumant les gammes de valeurs couramment observées pour différents types de zones géographiques (tableau 4). Ainsi, les flux de transfert des PCB de l'atmosphère vers les eaux naturelles peuvent varier considérablement et dépasser 100 $\mu\text{g.m}^{-2} \text{an}^{-1}$ en zone urbaine et être inférieur au $\mu\text{g.m}^{-2} \text{an}^{-1}$ dans les zones océaniques du large. L'estimation réalisée par VILLENEUVE (1986) donne pour le littoral Méditerranéen à Monaco un apport moyen de 25 $\mu\text{g.m}^{-2} \text{an}^{-1}$.

Tableau 4.- Gamme de concentration des PCB dans l'air et les eaux de pluie et apports atmosphériques (réf. : EISENREICH et al., 1981).

Table 4.- Range of PCB concentrations in air and rain, and atmospheric inputs (ref. : EISENREICH et al., 1981).

| | Concentration dans l'air (ng.m^{-3}) | Concentration dans l'eau de pluie (ng.l^{-1}) | Apports atmosphériques ($\mu\text{g.m}^{-2} \text{an}^{-1}$) |
|--------------|---|--|--|
| Zone urbaine | 0,5 - 30 | 10 - 25 | 100 - 700 |
| Zone rurale | 0,1 - 2,0 | 1 - 50 | 50 - 500 |
| Zone marine | 0,05 - 2,0 | 0,5 - 10 | 0,1 - 20 |

3-3 Echange eau/matières en suspension

La dégradation abiotique des PCB par réaction de photolyse est estimée insignifiante dans le milieu naturel (BAXTER et SUTHERLAND, 1984). Les travaux récents de BROWNAWELL et FARRINGTON (1986) suggèrent que la biodégradation peut être significative mais reste limitée aux congénères les moins chlorés (di-, tri- et tétra-). Pour les composés plus lourds, le transport et la distribution dans le milieu aquatique sont essentiellement influencés par les mécanismes d'échange entre l'eau (phase dissoute) et les sédiments ou les matières en suspension (phase particulaire).

Pour les substances organiques peu solubles (ce qui est le cas des PCB), on admet que la cinétique d'adsorption est suffisamment rapide pour qu'il existe un état d'équilibre entre les formes dissoutes et les formes adsorbées (KARICKHOFF, 1980). La capacité d'adsorption peut être représentée par un coefficient de partage K_p entre les deux phases solide (S) et liquide (E).

$$K_p = \frac{C_s (\mu\text{g.g}^{-1})}{C_E (\mu\text{g.g}^{-1})}$$

Les coefficients de partage (K_p) entre les matières en suspension et l'eau de mer ont été évalués pour les PCB à 80 000 par DAWSON et RILEY (1977), et plus précisément en fonction du degré de chloration de 43 600 à 96 700 par PAVLOU et DEXTER (1979). Les PCB présentent donc une très forte capacité d'adsorption sur le matériel particulaire. Il est admis que le processus d'adsorption des substances organiques non ioniques (incluant donc les PCB) est défini en réalité par un processus de partage entre l'eau et la matière organique contenue à la périphérie du substrat solide (KARICKHOFF *et al.*, 1979 ; CHIOU *et al.*, 1983) ; ce qui suggère que la valeur de K_p est fonction également de la concentration du carbone organique particulaire. Il convient aussi de ne pas perdre de vue que le pourcentage de la fraction adsorbée dépend non seulement du coefficient de partage (K_p) mais également de la concentration de matières en suspension MES (mg.l^{-1}) dans le milieu aquatique. Le calcul montre aisément que le pourcentage de la fraction adsorbée est égal à :

$$\% (\text{ads}) = 100 \frac{K_p (\text{MES})}{10^6 + K_p (\text{MES})}$$

Le tableau 5 illustre le pourcentage théorique de la fraction des PCB et du lindane (composé plus soluble) en fonction des gammes de concentrations des MES que l'on peut rencontrer dans le milieu aquatique. Les observations dans les eaux naturelles confirment dans l'ensemble les résultats théoriques.

Dans les zones d'estuaires, généralement fortement turbides, du Rhin (DUINKER et HILLEBRAND, 1979), du Var (BURNS et VILLENEUVE, 1982), de la Loire (MARCHAND *et al.*, 1986) les PCB se retrouvent principalement adsorbés sur les matières en suspension et leur transfert vers le milieu marin côtier est contrôlé essentiellement par la dynamique sédimentaire de l'estuaire.

Dans les eaux marines, il semble que la réalité soit plus complexe que la seule application du concept de coefficient de partage. En

Méditerranée, BURNS et VILLENEUVE (1987) trouvent un pourcentage de PCB à l'état particulaire plus faible qu'en milieu estuarien mais très variable de < 1 à 65 %. TANABE et TATSUKAWA (1983) trouvent des pourcentages relativement analogues, de 7 à 58 % dans des eaux océaniques peu turbides (0,1 à 0,5 mg.l⁻¹). De tels écarts par rapport aux calculs théoriques sont vraisemblablement imputables à l'influence des cycles biologiques (accumulation/excrétion) et de l'état physico-chimique des PCB provenant des apports atmosphériques (association aux aérosols).

Tableau 5.- Pourcentage de PCB et de lindane à l'état particulaire en fonction des concentrations des matières en suspension (MES).

Table 5.- Variations of PCB and lindane particulate fractions (%) versus suspended matter concentrations.

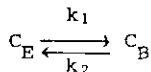
| | MES (mg.l ⁻¹) | PCB K _p : 50 000 | PCB K _p : 80 000 | Lindane K _p : 100 |
|-----------------|------------------------------|--------------------------------|--------------------------------|---------------------------------|
| Eau océanique | 0,1 | 0,5 | 0,8 | 0,001 |
| | 1,0 | 5 | 8 | 0,01 |
| Eau côtière | 5,0 | 20 | 28 | 0,05 |
| | 10,0 | 33 | 44 | 0,1 |
| Eau fluviale | 20,0 | 50 (*) | 62 (*) | 0,2 |
| Zone d'estuaire | 100 | 83 | 89 | 1,0 |
| (bouchon | 200 | 91 | 94 | 2,0 |
| vaseux) | 500 | 96 | 98 | 5,0 |

(*) Il convient de noter que les valeurs trouvées en eaux fluviales sont souvent inférieures. Ainsi dans la Seine, CHEVREUIL *et al.*, (1987) évaluent le transport des PCB à l'état particulaire à 16 % pour une eau fluviale contenant 15 mg.l⁻¹ de matières en suspension.

Plusieurs auteurs ont cherché à estimer les taux de sédimentation des PCB associés aux matières en suspension dans divers milieux aquatiques. Dans les zones éloignées de tous apports contaminants directs, exceptés ceux provenant de l'atmosphère, les taux de sédimentation ont été évalués entre 0,2 et 2,8 µg.m⁻² an⁻¹ dans l'océan Atlantique et Pacifique (ATLAS et GIAM, 1985). Dans les zones marines côtières ou lacustres, soumises à des apports telluriques et atmosphériques, les taux de sédimentation varient sensiblement entre 20 et 120 µg.m⁻² an⁻¹. Sur la côte méditerranéenne, à Monaco, les estimations de BURNS *et al.*, (1985) varient de 22 à 37 µg.m⁻² an⁻¹.

3-4 Transfert biologique

Le processus de bioconcentration est généralement décrit comme la résultante de deux cinétiques du premier ordre, celle de l'accumulation (k₁) et celle de l'épuration (k₂) (MACKAY, 1982).



Le facteur de bioconcentration K_B est défini comme le rapport à l'équilibre de la concentration d'une substance chimique dans un organisme aquatique C_B (exprimée par rapport au poids frais) sur sa concentration dans l'eau C_E :

$$K_B = \frac{C_B}{C_E} = \frac{k_1}{k_2}$$

On admet que les substances organiques lipophiles ont tendance à s'accumuler dans les lipides des organismes aquatiques. Dans ce cas K_B peut être comparé à un coefficient de partage entre une phase organique (stock lipidique) et l'eau, tel que le coefficient de partage octanol/eau (K_{ow}).

Ceci a conduit des auteurs à établir, pour des ensembles de substances chimiques, des corrélations entre K_B et K_{ow} du type : $\log K_B = n \log K_{ow} + b$ (KENAGA et GORING, 1980 ; MACKAY, 1982 ; DAVIES et DOBBS, 1984). De telles équations permettent d'évaluer les facteurs de bioconcentration pour les PCB (tableau 6). Expérimentalement, le facteur de bioconcentration augmente avec le degré de chloration des PCB, sensiblement de 10^3 pour les congénères dichloro- à 10^5 pour les hexachloro-. Pour les mélanges techniques de PCB, les valeurs expérimentales de K_B varient de 15 000 à 100 000, représentant sensiblement la gamme des valeurs théoriques présentées dans le tableau précédent.

Tableau 6.- Facteurs de bioconcentration (K_B) pour les PCB et les composés chlorés, déterminés selon les équations de corrélation entre K_B et K_{ow} .

Table 6.- Bioconcentration factors (K_B) of PCB's and other chlorinated compounds, calculated using correlation equations between K_B and K_{ow} .

| Composé | log K_{ow} | K_B |
|---------------------|--------------|------------------|
| PCB Aroclor 1248 | 6,11 | 16 600 - 61 000 |
| Aroclor 1254 | 6,47 | 35 000 - 141 000 |
| Aroclor 1260 | 6,91 | 93 000 - 389 000 |
| DDT | 6,19 | 19 000 - 74 100 |
| Lindane | 3,85 | 126 - 339 |
| Tétrachloroéthylène | 2,88 | 16 - 36 |

Si la relation entre K_B et K_{ow} est bien vérifiée expérimentalement, elle confirme la thèse de SCHNEIDER (1980) qui montre que le partage des composés organochlorés entre l'eau et les organismes aquatiques, correspond plutôt à un partage entre l'eau et les lipides (fraction phospholipidique) des organismes. A l'appui de cette thèse, les travaux de DUURSMAN *et al.*, (1986) montrent que les coefficients de partage entre divers organismes aquatiques sur la base des lipides extraits et l'eau

(tableau 7), sont sensiblement du même ordre de grandeur que les coefficients de partage octanol/eau (K_{ow}).

Tableau 7.- Coefficients de partage entre l'eau et les organismes aquatiques sur la base des lipides extraits (réf. : DUURSMA *et al.*, 1986).

Table 7.- Partition coefficients between water and biota, on the basis of extractable lipids (ref. : DUURSMA *et al.*, 1986).

| | |
|----------------------|----------------------------|
| Eau/vers marins | $(0,4 - 23) \times 10^6$ |
| Eau/moules | $(0,06 - 0,8) \times 10^6$ |
| Eau/chair de poisson | $(1,2 - 28) \times 10^6$ |
| Eau/foie de poisson | $(0,6 - 24) \times 10^6$ |

3-5 Bilan de la distribution des PCB dans l'environnement

A notre connaissance, trois tentatives de bilan de la distribution du PCB dans l'environnement ont été réalisées (PORTMANN, 1981 ; TANABE, 1985 ; HARDING, 1986). Celui de TANABE est sans conteste le plus complet, intégrant la répartition des PCB à l'échelle mondiale, d'une part dans l'environnement terrestre, d'autre part dans l'environnement océanique (tableau 8). La quantité totale de PCB dispersée dans l'environnement, évaluée à 374 000 tonnes représente donc 31 % de la production mondiale cumulée (estimée à 1 200 000 tonnes). L'essentiel des PCB dispersés se retrouve dans le milieu océanique (98 %), principalement dans la masse d'eau océanique (61 %), - niveau de référence pris par l'auteur à $0,1 \text{ ng.l}^{-1}$ -, et dans les sédiments marins côtiers (35 %).

3-6 Tendances de l'évolution de la contamination du milieu marin

Les premières mesures réglementaires pour limiter la dispersion des PCB dans l'environnement remontent au début des années soixante dix. Par ailleurs les temps de résidence des PCB dans la couche euphotique varient de 0,8 à 3,1 mois selon les zones eutrophes, mésotrophe ou oligotrophe (TANABE et TATSUKAWA, 1983). Ces temps de résidence sont suffisamment courts pour permettre l'observer des tendances, du moins à l'échelle de la décennie.

Les travaux répétés en Méditerranée occidentale de 1974 à 1982, permettent à BURNS *et al.*, (1985) d'observer une diminution des niveaux de contamination dans l'eau, le plancton, le matériel détritique planctonique et les matières en suspension d'un facteur 3 à 14 (en moyenne : 6). Des tendances analogues sont relevées en Suède de 1970 à 1984 dans le suivi de la contamination des PCB dans le hareng et le brochet (facteur de décroissance de 2 à 6) (OLSONN et REUTERGARDH, 1986). Aux Etats-Unis, de 1971 à 1980, le programme de surveillance du littoral californien montre également une diminution des niveaux de contamination des PCB dans les mollusques d'un facteur de 3 à 15 (STOUT, 1986).

Tableau 8.- Bilan des PCB (tonnes) dans l'environnement
(réf. : TANABE, 1985).

Table 8.- Distribution of PCB's in the environment
(ref. : TANABE, 1985).

a) Bilan dans l'environnement

| | Continent et littoral | Océan | Total |
|-----------------------------------|--------------------------|-----------|-----------|
| Atmosphère | 500 | 790 | 1 290 |
| Fleuves et lacs | 3 500 | - | 3 500 |
| Eau de mer | 2 400 | 230 000 | 232 400 |
| Sols | 2 400 | - | 2 400 |
| Sédiments | 130 000 | 110 | 130 110 |
| Biota | 4 300 | 270 | 4 570 |
| (Total) | (143 000) | (231 000) | (374 000) |
| Quantités dégradées et incinérées | | | 43 000 |
| Quantités stockées à terre (*) | | | 783 000 |
| Production mondiale cumulée | | | 1 200 000 |

b) Répartition des PCB (%) dans l'environnement
(représentent 31 % de la production mondiale cumulée)

| | | |
|----------------|--------|---|
| Atmosphère | 0,3 % | |
| Terre | 1,6 % | [eau du large (61,5 %) sédiments côtiers (34,7 %) |
| Mers et océans | 98,1 % | |

c) Bilan spécifique pour le milieu marin (PCB en tonnes)

| | Milieu côtier | Milieu océanique | Total |
|------------|---------------|---------------------|---------|
| Eau de mer | 2 400 | 230 000 | 232 400 |
| Sédiments | 130 000 | 110 | 130 000 |
| Biota | 4 300 | 270 | 4 570 |

(*) Encore en usage dans les installations électriques et autres équipements, et en dépôt dans les zones de décharges.

4 - CONTAMINATION DU LITTORAL FRANÇAIS

4-1 Sources de pollution et apports contaminants vers le milieu marin

Nous avons vu précédemment que la quantité totale de PCB utilisée sur le sol national se situe entre 50 000 et 60 000 tonnes. Si l'essentiel de ces produits se trouve dans les systèmes clos contrôlables (transformateurs et gros condensateurs électriques), les risques de pollution de type chronique proviennent essentiellement de l'utilisation de ces substances dans les systèmes clos incontrôlables du type des petits condensateurs électriques qui ne contiennent chacun que quelques dizaines de cm^3 de PCB. Ainsi les sources de pollutions ponctuelles, telles que les effluents urbains, les effluents industriels, ou diffuses comme les infiltrations à partir des lieux de décharge, contribuent à la contamination par les PCB du milieu aquatique, continental et par extension à celui du milieu marin côtier (fig. 3).

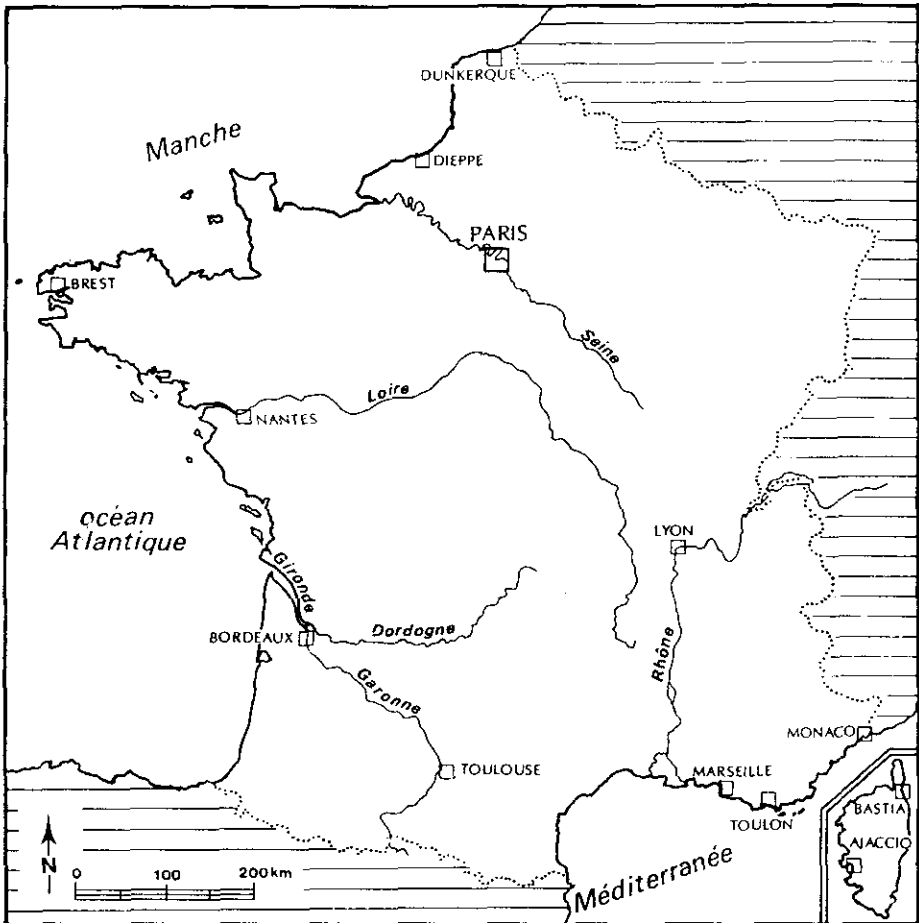


Figure 3.- Le littoral français.

Figure 3.- The French shoreline.

Le tableau 9 présente les gammes de concentrations de PCB fréquemment rencontrées dans les effluents urbains analysés en France (Nantes, Toulon, Morlaix), ainsi que les flux contaminants de PCB ramenés par équivalent habitant. Les concentrations observées se situent en moyenne entre 0,1 et 0,4 $\mu\text{g.l}^{-1}$. Des valeurs plus importantes sont relevées dans les effluents de l'agglomération parisienne, entre 0,4 et 1,3 $\mu\text{g.l}^{-1}$ et sont comparables aux niveaux relevés en Amérique du Nord, entre 0,2 et 1,5 $\mu\text{g.l}^{-1}$. En terme de flux contaminants, les valeurs se situent en France sensiblement entre 10 et 20 $\text{mg.hab}^{-1} \text{an}^{-1}$ (à l'exception de l'agglomération parisienne : 40 - 120 $\text{mg.hab}^{-1} \text{an}^{-1}$). A l'échelle nationale, le parc des stations d'épuration des collectivités, pour l'année 1979, représentait un chiffre de 7 374 unités, correspondant à une capacité totale de 47 582 000 eq. habitants (ANONYME, 1983). Sur cette base, les apports contaminants bruts représentent un chiffre de 475 à 850 kg de PCB par an, résultant de pollutions généralement diffuses et difficilement contrôlables.

Tableau 9.- PCB dans les effluents urbains.

Table 9.- PCB's in urban sewage.

| Station d'épuration | Equivalent habitants | Débit ($\text{m}^3 \cdot \text{hab.}^{-1} \text{an}^{-1}$) | Concentrations PCB ($\mu\text{g.l}^{-1}$) | Flux de PCB ($\text{mg.hab.}^{-1} \text{an}^{-1}$) | Réf. |
|--------------------------|----------------------|--|---|--|------|
| FRANCE | | | | | |
| Toulon-Est | 61 000 | 72 | 0,14 ± 0,05 | 13,5 | (1) |
| Nantes-Nord | 465 000 | 73 | 0,14 - 0,31 (max 8,8) | 10,2 - 22,6 | (1) |
| Nantes-Sud | 185 000 | 46 | 0,17 - 0,44 | 7,7 - 12,8 | (1) |
| Morlaix | 30 000 | 100 | 0,046 ± 0,034 | 4,7 | (1) |
| Achères (Paris) | 8 100 000 | 95 | 0,44 - 1,3 | 41 - 123 | (2) |
| AMERIQUE DU NORD | | | | | |
| Californie JWPCP | 3 650 000 | 140 | 0,54 - 0,67 | 78 ± 26 | (3) |
| Californie Hyperion | 3 100 000 | 166 | 0,67 - 0,76 | 91 ± 36 | (3) |
| Californie Orange County | 1 700 000 | 152 | 1,33 - 1,55 | 223 - 267 | (3) |
| New-York (n = 9) | - | - | 0,60 (0,02 - 0,90) | - | (4) |
| Canada (n = 33) | - | - | 0,60 (< 0,1 - 1,8) | - | (4) |

(1) MARCHAND *et al.*, (1989)(2) GRANIER *et al.*, 1988(3) SCHAFER, 1982 ; BROWN *et al.*, 1986

(4) WOLFE, 1986.

Les apports fluviaux intègrent l'ensemble des apports telluriques correspondant aux effluents urbains et industriels, et au ruissellement des terres et du tissu urbain. Les flux annuels bruts transportés par la Loire sont évalués entre 60 et 110 kg/an^{-1} (MARCHAND *et al.*, 1986). Sur la base des travaux de surveillance de la contamination du littoral français (aspect développé ultérieurement) les apports contaminants moyens de la Gironde sont estimés entre 25 et 45 kg/an^{-1} pour la Gironde et entre 230 et 430 kg/an^{-1} pour la Seine (MARCHAND, 1985). Les travaux réalisés par ABARNOU *et al.*, (1987) sur l'estuaire de la Seine permettent de calculer un apport contaminant en PCB de 375 kg/an^{-1} , valeur qui se situe dans la fourchette d'estimation précédente. VILLENEUVE (1986) estime un flux annuel de PCB dans le Var de 10 kg. Pour le Rhône avec un débit de 60 $\text{km}^3/\text{an}^{-1}$ et une concentration moyenne dans l'eau de

10 ng.l⁻¹ (MARCHAND *et al.*, 1988), retrouvée au cours de deux autres campagnes de mesures (résultats non publiés), l'apport contaminant moyen en PCB serait de 600 kg/an⁻¹.

L'ordre de grandeur de ces estimations se retrouve dans les travaux réalisés sur d'autres fleuves étrangers (tableau 10). Ainsi pour l'ensemble des quatre grands fleuves français, les apports telluriques de PCB vers le milieu marin se situent dans une fourchette de 900 à 1 200 kg/an⁻¹.

Tableau 10.- Estimation de flux annuels de PCB transportés par les fleuves (kg/an).

Table 10.- Estimations of PCB annual fluxes loaded by rivers (kg/year).

| Pays/fleuve | Débit (km ³ .an ⁻¹) | Flux de PCB (kg.an ⁻¹) | Référence |
|---------------|---|--|----------------------------------|
| FRANCE | | | |
| Seine | 12 | 230 - 430 | MARCHAND (1985) |
| Gironde | 31 | 25 - 45 | MARCHAND (1985) |
| Loire | 30 | 60 - 110 | MARCHAND <i>et al.</i> , (1986b) |
| Rhône | 60 | 600 | MARCHAND <i>et al.</i> , (1988) |
| Var | 2,8 | 10 | VILLENEUVE (1986) |
| USA : Niagara | 202 | 1 700 - 1 900 | OLIVER et NICOL (1984) |
| HOLLANDE | | | |
| Rhin | 60 | 7 600 | DUINKER <i>et al.</i> , (1984) |
| Scheldt | 10 | 105 | DUINKER <i>et al.</i> , (1984) |
| Yssel | 6 | 380 | DUINKER <i>et al.</i> , (1984) |
| Ems | 4 | 16 | DUINKER <i>et al.</i> , (1984) |
| Weser | 12 | 198 | DUINKER <i>et al.</i> , (1984) |
| Elbe | 24 | 564 | DUINKER <i>et al.</i> , (1984) |

Les apports atmosphériques constituent également une source de contamination du milieu marin. Les rares données existantes pour le littoral français ont été obtenues en Méditerranée par VILLENEUVE (1986) qui donne en moyenne comme dépôts atmosphériques pour les PCB par échange gazeux 9,6 µg.m⁻² an⁻¹ et par retombées sèches 14,6 µg.m⁻² an⁻¹. Les concentrations dans les eaux de pluie sont très variables de 5 à 93 ng.l⁻¹. Sur la côte Atlantique, en rade de Brest, MARCHAND *et al.*, (1983) trouvent une teneur moyenne de PCB dans les eaux de pluie de 8,3 ± 3,7 ng.l⁻¹. En prenant une concentration moyenne de 10 ng.l⁻¹ et un taux moyen de précipitations de 80 cm/an⁻¹, le transfert moyen des PCB par les eaux de pluie représenterait 8 µg.m⁻² an⁻¹. Ainsi, la somme des apports atmosphériques, sur la base de ces données fragmentaires, serait de 32 µg.m⁻² an⁻¹, chiffre comparable aux gammes de valeurs couramment observées (ATLAS *et al.*, 1986). Il est par ailleurs intéressant de noter que le taux de sédimentation des PCB dans le milieu

méditerranéen côtier, qui représente le flux net des PCB dans le milieu aquatique, est évalué par BURNS *et al.*, (1985) entre 22 et 37 $\mu\text{g.m}^{-2}\text{an}^{-1}$, soit le même ordre de grandeur que l'estimation des apports atmosphériques. En considérant (arbitrairement), une largeur de 10 km pour la zone littorale marine et une longueur totale de côte de 5 500 km, les apports atmosphériques des PCB sur le milieu marin côtier serait de 1 760 kg.an^{-1} , ce qui montre un ordre de grandeur analogue à celui estimé pour les apports fluviaux (900 - 1 200 kg.an^{-1}).

L'ensemble des apports contaminants des PCB vers le milieu marin côtier serait donc compris dans une fourchette de 2,5 à 3,0 tonnes par an, ce qui représente une très faible part de la quantité de PCB utilisée sur le sol national (50 000 à 60 000 tonnes).

4-2 Faux littorales et estuariennes

Les premiers travaux ont été réalisés au début des années soixante-dix en Méditerranée. RAYBAUD (1972) mesure en 1971 des concentrations de 100 à 200 ng.l^{-1} dans la région marseillaise. En 1975, ELDER (1976) évalue des niveaux de contamination de PCB dans les eaux littorales méditerranéennes de 1,5 à 38,0 ng.l^{-1} , soit en moyenne $13 \pm 12 \text{ ng.l}^{-1}$. Les analyses les plus récentes réalisées à Monaco en 1981-1982, par BURNS *et al.*, (1985) donnent des valeurs beaucoup plus faibles de 0,2 à 1,2 ng.l^{-1} .

Sur les autres façades maritimes, nous ne disposons pas de telles séries chronologiques pour suivre l'évolution de la contamination sur une décennie. Nous disposons toutefois de travaux réalisés à la fin des années soixante-dix et dans les années quatre-vingt qui permettent d'évaluer les niveaux de contamination des PCB dans les eaux côtières et estuariennes du littoral français (tableau 11). Sur le littoral de la Manche-Mer du Nord, les zones les plus sensibles à la contamination par les PCB sont situés au Nord entre Calais et Dunkerque, secteur caractérisé par une forte industrialisation sur le littoral et par la baie de Seine qui est directement soumise aux apports fluviaux de la Seine. La rade de Brest, zone côtière semi-fermée, soumise à l'influence d'activités industrielles et urbaines montre des niveaux de contamination faibles mais toutefois significatifs. Sur le littoral Atlantique, les deux estuaires de la Loire et de la Gironde constituent des sources de contamination du milieu marin côtier. Les niveaux de PCB les plus élevés dans les eaux du littoral méditerranéen sont relevées à l'embouchure du delta du Rhône et dans la zone de l'émissaire de Cortiou qui rejetait il y a peu de temps encore les eaux usées non épurées de la ville de Marseille.

Les différentes observations ainsi réalisées montrent que les niveaux de contamination des PCB dans les eaux littorales françaises varient de $< 1 \text{ ng.l}^{-1}$ dans les eaux marines non directement soumises à des apports contaminants telluriques, de 4 à 5 ng.l^{-1} dans des sites semi-fermés (ex. Rade de Brest, bassin d'Arcachon) ou dans les zones côtières ouvertes soumises à plus fortes activités industrielles (ex. Calais/Dunkerque). Les niveaux les plus élevés sont relevés dans les zones d'estuaires, (5 à 400 ng.l^{-1}) et dans les zones de rejets d'émissaires urbains comme celui de Cortiou en Méditerranée (5 à 73 ng.l^{-1}).

Tableau 11.- Contamination des PCB dans les eaux marines côtières et estuariennes du littoral français.

Table 11.- PCB contamination in French estuarine and marine coastal waters.

| Zone | Année | PCB (ng.l ⁻¹) | Réf. |
|---|-----------|------------------------------|------|
| MANCHE - MER DU NORD | | | |
| Zone côtière entre Dunkerque et Calais | 1983 | 3,7 ± 3,1 | (1) |
| Zone côtière entre Calais et l'estuaire de la Somme | 1983 | 1,7 ± 1,3 | (1) |
| Zone côtière entre Dieppe et Fécamp | 1983 | 3,4 ± 2,6 | (1) |
| Zone côtière au nord de la baie de Seine | 1983 | 9,8 ± 3,4 | (1) |
| Zone au large de Dieppe et Boulogne | 1983 | 1,4 ± 0,8 | (1) |
| Zone au large de la baie de Seine | 1983 | 1,6 ± 0,7 | (1) |
| Zone centrale de la baie de Seine | 1978 | 4,1 ± 1,5 | (2) |
| | 1983 | 3,2 ± 0,4 | (1) |
| | 1985/1986 | 3 - 6 | (3) |
| Estuaire de la Seine | | | |
| - Zone sub-estuarienne | 1978 | 7,6 ± 2,1 | (2) |
| | 1983 | 6,5 ± 3,7 | (1) |
| | 1985/1986 | 3 - 12 | (3) |
| - Estuaire aval | 1978 | 11,5 ± 2,6 | (2) |
| | 1983 | (Pt fixe) 29,0 ± 12,2 | (1) |
| | 1985 | (Pt fixe) 16,5 ± 15,0 | (3) |
| | 1986 | (Pt fixe) 73,3 ± 70,6 | (3) |
| - Estuaire amont | 1985 | 10 - 20 | (3) |
| | 1986 | 40 - 370 | (3) |
| - Fleuve : région parisienne en aval de Rouen | 1984 | 50 - 500 | (4) |
| | 1986 | 30 - 110 | (3) |
| ATLANTIQUE | | | |
| Rade de Brest | 1977/1978 | 4,3 ± 2,8 | (5) |
| Estuaire de la Loire | | | |
| - Estuaire externe | 1982/1984 | < 2 - 23 | (6) |
| - Estuaire interne | | 9 - 64 (Pt fixe) 10 - 235 | |
| - Fleuve | | 3 - 21 | |

| Zone | Année | PCB (ng.l ⁻¹) | Réf. |
|------------------------------------|-----------|---------------------------|------|
| Littoral vendéen | 1985 | < 2 - 5 | (7) |
| Estuaire de la Gironde | 1985 | | (7) |
| - Embouchure | | 5 | |
| - Estuaire | | Pt fixe (3-25) 10 ± 6 | |
| - Bordeaux | | 7 | |
| Bassin d'Arcachon | 1985 | 5 | (7) |
| Littoral Landais | 1985 | (22 - 9) 5 ± 3 | (7) |
| MEDITERRANEE | | | |
| Baie de Marseille | 1971 | 100 - 200 | (8) |
| Zone littorale | 1975 | (1,5 - 29) : 13 ± 12 | (9) |
| Embouchure du Rhône | 1975 | 38 | (9) |
| | 1984 | 10 - 11 | (10) |
| | 1985-1986 | 10 | (7) |
| Golfe du Licn | 1984 | < 2 - 4,5 | (10) |
| Estuaire du Var | 1980-1981 | (1,7 - 4,2) : 2,5 | (11) |
| Monaco | 1981-1982 | 0,2 - 1,2 | (12) |
| Littoral - Provence - Côte d'Azur | 1984 | < 2 | (10) |
| Littoral Corse | 1984 | < 2 | (10) |
| Cortiou : effluents urbains | | | |
| de Marseille | 1984 | 57 | (10) |
| - Zone de rejet | 1984 | 4 - 10 | (10) |
| - Zone de rejet (contrôles RNO) | 1984 | (5 - 73) 17 ± 15 | (13) |

(1) MARCHAND et CAPRAIS, 1985

(2) CNECO, 1978

(3) ABARNOU *et al.*, 1987(4) CHEVREUIL *et al.*, 1987(5) MARCHAND *et al.*, 1983(6) MARCHAND *et al.*, 1986

(7) MARCHAND. Résultats non publiés

(8) RAYBAUD, 1972

(9) ELDER, 1976

(10) MARCHAND *et al.*, 1988

(11) BURNS et VILLENEUVE, 1982

(12) BURNS *et al.*, 1985

(13) MARCHAND, 1985.

4-3 Sédiments marins côtiers

Les PCB ont tendance à s'adsorber sur les matières en suspension et de ce fait, le sédiment peut constituer un bon indicateur de la contamination du milieu aquatique. Son analyse permet généralement de situer les apports de pollution et de déterminer les taches de dispersion. La surveillance de la qualité du milieu marin dans le sédiment s'est exercée depuis 1978 sur une quarantaine de sites du littoral français (JOANNY, 1984).

Les concentrations de PCB mesurées dans les sédiments côtiers varient de $< 0,5 \text{ ng.g}^{-1}$ à $15\,000 \text{ ng.g}^{-1}$. La figure 4 illustre pour l'ensemble des sites étudiés des gradients de concentrations très marqués aux débouchés des rivières (Morlaix, Odet, Aven, ...), des estuaires (Loire, Seine), dans les zones semi-fermées (Rade de Brest, baie de Marseille, Golfe de Fos) et dans le champ de rejet des effluents urbains. On peut relever différentes gammes de concentrations des PCB dans les sédiments de surface le long du littoral :

Dans les zones qualifiées de non contaminées, les concentrations sont inférieures à $0,5 \text{ ng.g}^{-1}$. Pour les zones côtières soumises à des apports contaminants chroniques telles que les golfes, les baies et les estuaires, on peut distinguer les secteurs fortement contaminés (50 à 500 ng.g^{-1}) situés au débouché ou à proximité immédiate des sources contaminantes et les secteurs faiblement à modérément contaminés (5 à 50 ng.g^{-1}) situés plus en aval. Les zones les plus fortement contaminées ($> 1\,000 \text{ ng.g}^{-1}$) sont observées au débouché d'émissaires urbains, tel celui de Cortiou où les niveaux de contamination atteignent $15\,000 \text{ ng.g}^{-1}$.

4-4 Organismes marins

Les données existantes concernent principalement les niveaux de contamination des PCB dans la moule et dans l'huître le long du littoral français. D'autres résultats également disponibles permettent d'apprécier la contamination d'invertébrés benthiques (coques et coquilles St-Jacques), des crevettes, des poissons et de quelques mammifères marins échoués sur les côtes françaises.

4-4-1 Moules et huîtres

La gamme de concentrations de PCB relevées dans les moules (*Mytilus edulis*, *Mytilus galloprovincialis*) et les huîtres (*Ostrea edulis*, *Crassostrea gigas*) varie de 80 à plus de $5\,000 \text{ } \mu\text{g.kg}^{-1}$ (concentrations exprimées par rapport au poids sec) (tableau 12).

Les plus faibles valeurs ($< 100 \text{ } \mu\text{g.kg}^{-1}$) sont observées dans la région nord de la Bretagne, la baie du Mt-St-Michel et sur le littoral est de la Corse. Les niveaux de contamination les plus importants ($> 2\,000 \text{ } \mu\text{g.kg}^{-1}$) sont mesurés au débouché de l'estuaire de la Seine. Les concentrations importantes, de 700 à $2\,000 \text{ } \mu\text{g.kg}^{-1}$, sont relevées sur les autres grands estuaires (exception pour la Gironde), dans les zones industrielles et portuaires (golfe de Fos) et face aux grandes agglomérations urbaines (Marseille, Toulon, Cannes, Saint-Jean-de-Luz, Brest). Par rapport aux autres pays, les gammes de concentrations observées sont sensiblement analogues. Toutefois les concentrations qualifiées de "référence", correspondant à des sites non pollués de la côte est et de la côte ouest des Etats-Unis sont inférieures à $50 \text{ } \mu\text{g.kg}^{-1}$ (moyenne :

PCB dans les Sédiments

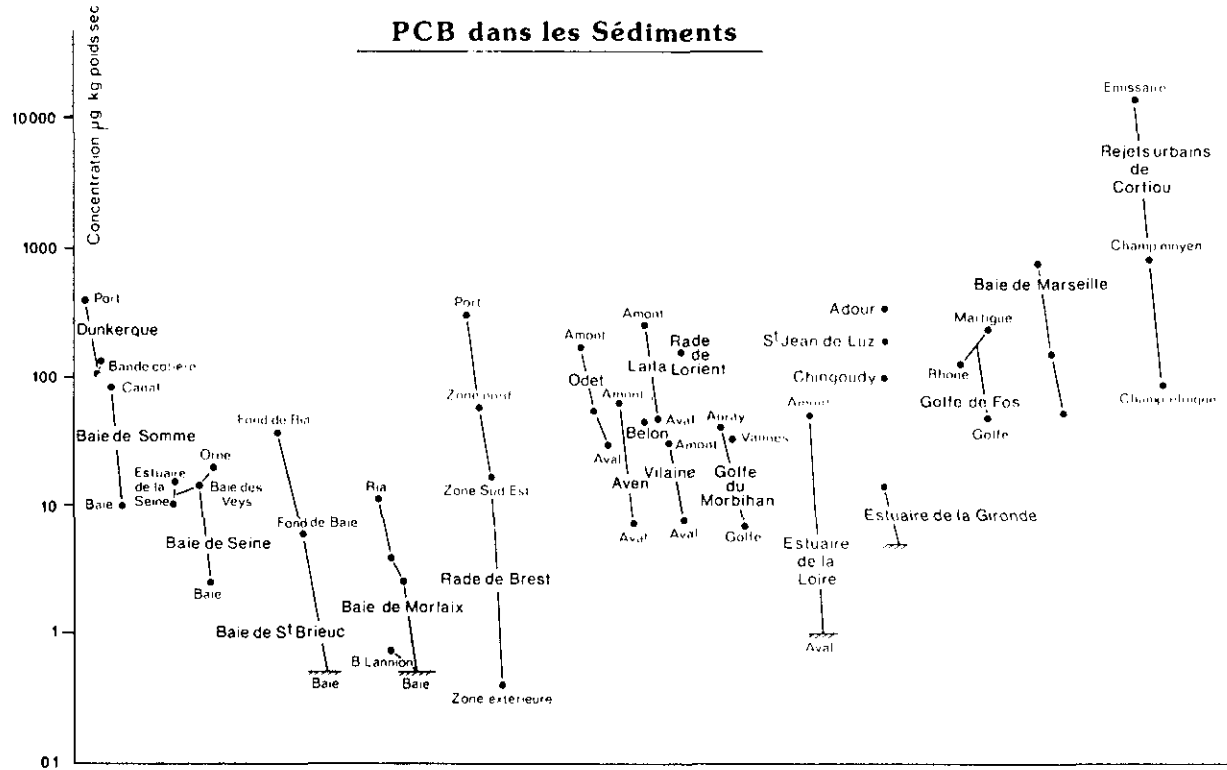


Figure 4.- Concentrations des PCB dans les sédiments littoraux (ng/g, poids sec).
La disposition de l'axe des abscisses est arbitraire et ne correspond à aucun paramètre (MARCHAND, 1985).

Figure 4.- PCB concentrations in coastal sediments (ng/g, dry weight).
The presentation of the horizontal axis is arbitrary and is not related to any parameter (MARCHAND, 1985).

Tableau 12.- Gammes de concentrations en PCB dans les moules et les huîtres ($\mu\text{g}/\text{kg}$, poids sec) observés sur le littoral. Période 1979/1982 (réf. : MARCHAND, 1985).

Table 12.- Range of PCB concentrations in mussels and oysters ($\mu\text{g}/\text{kg}$, dry weight), collected along the French shoreline between 1979 and 1982 (ref. : MARCHAND, 1985).

| | Concentration ($\mu\text{g}/\text{kg}$) | Site de surveillance |
|--------------------------------------|--|---|
| Sites de référence | 80 - 100 100 - 200 | Bretagne Nord (baie de Lannion), Corse est, Ouest Cotentin, Baie du Mont Saint-Michel, Vendée, Tech/Têt. |
| Pollutions chroniques faibles | 200 - 400 | La Rance, baie de Saint Brieuc, Morlaix, Aber Benoit, rade de Brest, estuaire de la Vilaine, golfe du Morbihan, Bassin d'Arcachon, étang de Thau, Saint-Tropez. |
| Pollutions chroniques significatives | 400 - 700 | Dunkerque, Boulogne, Est Cotentin*, Odet, Aven, Lorient, Perthis Breton, estuaire de la Gironde, Banyuls, Beaulieu. |
| Pollutions chroniques fortes | 700 - 1 000 1 000 - 2 000 | Dieppe-Fécamp*, Laita, Brest, estuaire de la Loire, Adour, Golfe de Fos, Marseille, Cannes - Villefranche. |
| Pollutions chroniques très fortes | > 2 000 | Saint-Jean-de-Luz, Chingoudy, Toulon. Estuaire de la Seine. |

* Influence de l'estuaire de la Seine.

$22 \pm 12 \mu\text{g.kg}^{-1}$) (GOLDBERG *et al.*, 1978), soit 4 fois moins par rapport aux valeurs les plus faibles enregistrées sur le littoral français.

L'évolution de la contamination à l'échelle de la décennie peut être appréciée sur le littoral méditerranéen, puisque les premiers travaux de PCB dans les mollusques, en France, ont été réalisés sur cette fraction du littoral, en 1972, par DE LAPPE *et al.*, (1972), puis en 1973 en 1974 par MARCHAND *et al.*, (1976). Le suivi sur plusieurs sites sélectionnés ont été poursuivis jusqu'en 1981 par HAX NIENCHESKI (1982). Une très forte diminution de la contamination d'un facteur 8 à 10, est observée de 1972 à 1975. Les mesures effectuées en 1980-1981 montrent par contre une reprise de la contamination du milieu aquatique par rapport aux années 1974/1975. Des tendances sur l'ensemble du littoral français de 1976 à 1982 peuvent être discernées en prenant les travaux de surveillance d'ALZIEU *et al.*, (1976). Les résultats présentés dans le tableau 13 tendent à démontrer que le degré de contamination a diminué d'environ 33 % sur les sites soumis à des apports polluants importants et d'environ 10 % dans les zones littorales soumises à des pollutions diffuses faibles à moyennes. Sur ces dernières zones on relève également une tendance à une augmentation des niveaux de contamination de 1980 à 1982.

Tableau 13.- Evolution des concentrations de PCB dans les moules et les huîtres ($\mu\text{g/kg}$, poids sec) de 1976 à 1982.

Table 13.- Evolution of PCB concentrations in mussels and oysters ($\mu\text{g/kg}$, dry weight) from 1976 to 1982.

| | 1976 | 1979 - 1980 | 1980 - 1981 | 1981 - 1982 |
|---|------------------|------------------|---------------|---------------|
| Sites faiblement à moyennement contaminés | 368 ± 96 | 344 ± 88 | 306 ± 91 | 330 ± 59 |
| Sites fortement contaminés | $1\ 241 \pm 316$ | $1\ 023 \pm 197$ | 844 ± 444 | 812 ± 370 |

4-4-2 Coques et coquilles St-Jacques

Des mesures de surveillance de la contamination des coques (*Cardium edule*) ont été réalisées sur le littoral Manche-Mer du Nord ; les concentrations moyennes varient de 85 à $200 \mu\text{g.kg}^{-1}$ (tableau 14). Les travaux d'ALZIEU (1981), réalisés en 1978, permettent d'évaluer les niveaux de contamination dans les coquilles St-Jacques (*Pecten maximus*) récoltées sur des fonds meubles du plateau continental de la Manche et de l'Atlantique (Bretagne Sud). Les PCB ne sont pas uniformément répartis dans l'organisme. En valeur moyenne, par rapport au muscle, l'organe le moins contaminé, les teneurs en PCB sont 4 fois plus élevées dans le corail, et 10 fois plus dans l'hépatopancréas. Les niveaux de contamination observés dans l'hépatopancréas varient de 100 à $1\ 400 \mu\text{g.kg}^{-1}$ (tableau 15).

Tableau 14.- PCB dans les coques (*Cardium edule*).
Surveillance RNO (1980-1981).

Table 14.- PCB concentrations in cockles (*Cardium edule*). RNO monitoring program (1980-1981).

| Sites de surveillance | PCB ($\mu\text{g.kg}^{-1}$, poids sec) |
|-----------------------------|---|
| Dunkerque | 112 \pm 35 |
| Somme | 163 \pm 37 |
| Authie | 150 \pm 50 |
| Canche | 200 \pm 168 |
| Mont Saint Michel | 85 \pm 64 |

Tableau 15.- Concentrations de PCB dans l'hépatopancréas
des coquilles Saint-Jacques prélevées en 1978 en Manche
et Atlantique (réf. : ALZIEU, 1981). (Concentrations
exprimées en $\mu\text{g/kg}$, par rapport au poids sec).

Table 15.- PCB concentrations in the hepato-pancreas
of scallops sampled in the English Channel and Atlantic
in 1978 (ref. : ALZIEU, 1981). (Concentrations
expressed as $\mu\text{g/kg}$, dry weight).

| Site | PCB |
|---|---------------|
| Manche orientale | 105 - 1 209 |
| . au sud de la ligne Barfleur - Fécamp (influence de la Seine) | 500 - 1 200 |
| . le long de la côte au nord de Fécamp | 200 - 500 |
| . au large | 100 - 200 |
| Bretagne-nord : baie de Saint-Brieuc | |
| . zone amont | 300 - 500 |
| . zone aval | 150 - 200 |
| . zone large | 100 - 130 |
| Rade de Brest | |
| . dans la rade | 1 100 - 1 400 |
| . à l'extérieur de la rade (Camaret) | 200 - 300 |
| Bretagne-sud : Belle-Ile | 350 \pm 40 |

4-4-3 Crevettes et poissons

Les contrôles de surveillance réalisés dans la crevette grise (*Cragon*) montrent des gammes de concentrations très variables, inférieures à $30 \mu\text{g.kg}^{-1}$ à Marennes-Oléron sur le littoral Atlantique pour atteindre 300 à $500 \mu\text{g.kg}^{-1}$ en baie de Seine (tableau 16). Les niveaux de

contamination des PCB des poissons plats (plie, sole, flet, limande) sont également très variables, de 20 à plus de 4 000 $\mu\text{g.kg}^{-1}$ (ABARNOU, comm. personnelle). Les concentrations moyennes les plus faibles, sensiblement de 50 à 150 $\mu\text{g.kg}^{-1}$, sont mesurées en Manche (Mont-Saint-Michel) et sur le littoral Atlantique (baie de Vilaine et bassin d'Arcachon). Les plus fortes teneurs ($> 1\ 000\ \mu\text{g.kg}^{-1}$) se retrouvent principalement en baie de Seine (tableau 16).

Tableau 16.- Niveaux moyen de contamination des PCB dans la crevette grise et dans les poissons plats (plies, soles, flets). Surveillance RNO 1979-1983. Concentrations exprimées en $\mu\text{g/kg}$, poids sec.

Table 16.- Average PCB levels in common prawn and in flat fish (plaice, sole, dab, flounder). RNO monitoring program 1979-1983. Concentrations expressed as $\mu\text{g/kg}$, dry weight.

| Zone | Poissons plats (n) | Crevette grise (n) |
|---------------------------|-----------------------|-----------------------|
| Manche Mer du Nord | | |
| Dunkerque | (45) 122 - 299 | (5) 54 \pm 22 |
| Dieppe Fécamp | (12) 368 | - |
| Baie de Seine | (15) 437 - 1923 | (5) 437 \pm 199 |
| Baie du Mont-Saint-Michel | (11) 47 - 168 | (2) 48 \pm 34 |
| Baie de St-Brieuc | (26) 240 - 316 | - |
| Atlantique | | |
| Rade de Brest | (30) 80 - 382 | (4) 191 \pm 166 |
| Golfe du Morbihan | (12) 89 - 375 | - |
| Baie de Vilaine | (15) 85 - 172 | - |
| Estuaire de la Loire | (25) 129 - 516 | (1) 358 |
| Bassin de Marennes-Oléron | (24) 60 - 864 | (2) < 27 |
| Estuaire de la Gironde | (30) 89 - 800 | (2) 46 \pm 43 |
| Bassin d'Arcachon | (40) 8 - 106 | (3) 69 \pm 35 |
| Méditerranée | | |
| Banyuls | (4) 203 | - |
| Golfe de Fos | 37 - 235 | - |

(n) : nombre de contrôles.

4-4-4 Mammifères marins

Les travaux d'ALZIEU et DUGUY (1978, 1979) permettent d'estimer les teneurs en PCB observées chez les mammifères marins, cétacés et pinnipèdes, capturés ou échoués sur des côtes françaises de 1972 à 1977. Les niveaux de contamination varient dans un grand intervalle selon les espèces et les individus. Les dauphins semblent être les espèces les plus menacées en raison des teneurs parfois très importantes rencontrées dans le foie et les graisses des animaux (tableau 17). Plusieurs indices suggèrent que les populations vivant en Méditerranée ont un niveau de contamination plus élevé que celui des populations fréquentant l'Atlantique.

Tableau 17.- Teneurs comparatives en PCB chez les dauphins (*Stenella coeruleoalba*) échoués en Atlantique et Méditerranée (réf. : ALZIEU et DUGUY, 1979).

Table 17.- Comparative PCB concentrations in dolphins (*Stenella coeruleoalba*) stranded along Atlantic and Mediterranean coasts (ref. : ALZIEU and DUGUY, 1979).

| | | Concentration de PCB (mg.kg ⁻¹ , tissu lyophilisé) | |
|---------|------|--|--------------|
| | | Atlantique | Méditerranée |
| Foie | min. | 5,4 | 6,6 |
| | max. | 9,2 | 448,8 |
| Rein | min. | 1,5 | 4,1 |
| | max. | 8,5 | 85,3 |
| Muscle | min. | 0,8 | 3,3 |
| | max. | 3,3 | 18,4 |
| Graisse | min. | - | 172,2 |
| | max. | 47,7 | 259,7 |

5 - CONCLUSION

La production industrielle des PCB a commencé en France après la seconde Guerre Mondiale et est estimée à environ 123 000 tonnes, soit environ 10 % de la production mondiale. La quantité totale utilisée sur le sol national se situe entre 50 000 et 60 000 tonnes, soit 40 à 50 % de la production.

L'usage de ces composés concerne essentiellement les transformateurs et condensateurs électriques (systèmes clos). Hormis les risques de pollution de nature accidentelle, le caractère de contamination chronique et diffus semble lié notamment à l'usage des PCB dans les petits condensateurs électriques qui constituent des systèmes clos incontrôlables. Les apports telluriques vers le milieu marin par les quatre grands fleuves se situeraient dans une fourchette de 900 à 1 200 kg.an⁻¹. Les apports atmosphériques sur une bande littorale de 10 km de large seraient du même ordre de grandeur.

La contamination de l'environnement marin côtier est très variable. Les zones les moins touchées se situent en Manche dans le Golfe normand-breton (Ouest-Cotentin, Baie du Mont-St-Michel), en Bretagne-Nord, notamment en baie de St-Brieuc et en baie de Lannion et en Méditerranée (littoral est de la Corse). La zone la plus contaminée est constituée par la baie de Seine. Si l'on compare les trois grands estuaires de la Manche et de l'Atlantique, l'estuaire de la Seine est 4 fois plus contaminé que celui de la Loire et 9 fois plus que celui de la Gironde.

D'autres secteurs côtiers, soumis à des activités industrielles ou urbaines, présentent également un caractère de contamination chronique par les PCB. En rassemblant de manière synthétique les données analyti-

Tableau 18.- Niveaux de concentrations des PCB observés sur différents secteurs du littoral français (concentrations exprimées par rapport au poids sec pour les sédiments et les organismes marins).

Table 18.- Levels of PCB concentrations reported in different zones of the French shoreline (concentrations are related to dry weight for sediment and marine biota).

| Zone | Eau (ng.l ⁻¹) | Sédiment (ng.g.l ⁻¹) | Moules et huîtres (ng.g ⁻¹) | Coquilles Saint-Jacques hépatopancréas (ng.g ⁻¹) | Crevette (ng.g ⁻¹) | Poisson plat (ng.g ⁻¹) |
|---------------------------------------|------------------------------|---------------------------------------|--|---|-----------------------------------|--|
| Zone de rejet d'un émissaire urbain | | | | | | |
| Cortiou | 5 - 73 | 300 - 21 000 | - | - | | |
| Zone d'estuaire | | | | | | |
| Seine | 40 - 370 | 15 ± 8 | 4 400 ± 2 300 | 500 - 1 200 | 437 ± 199 | 1 920 ± 1 190 |
| Loire | 10 - 235 | 51 ± 34 | 960 ± 330 | - | 358 | 410 ± 130 |
| Gironde | 3 - 25 | - | 460 ± 270 | - | 46 ± 43 | 140 ± 70 |
| Rhône | = 10 | embouchure : 250 delta : 36 ± 22 | - | - | | - |
| Zone côtière | | | | | | |
| Calais/Dunkerque | 4 ± 3 | port : 400 ± 469 côte : 134 ± 134 | 820 ± 320 | 200 - 500 | 54 ± 22 | 300 ± 150 |
| Rade de Brest | 4 ± 3 | port : 300 ± 170 z. nord : 57 ± 11 | 850 ± 260 | 1 100 - 1 400 | 191 ± 166 | 380 ± 160 |
| Bassin d'Arcachon | - | < 5 - 48 port : 247 | 240 ± 120 | - | 69 ± 35 | 120 ± 110 |
| Golfe de Fos | - | golfe : 49 ± 8 | 770 ± 230 | - | | 235 ± 15 |
| Bretagne Nord (Saint-Brieuc, Lannion) | < 2 | < 2 | 100 ± 40 | 100 - 130 | 48 ± 34 | 320 ± 340 |
| Corse - est | < 2 | < 2 | 80 ± 40 | - | | - |

ques précédemment citées, le tableau 18 résume des niveaux de contamination observés dans les différents compartiments du milieu marin.

Les diverses mesures réglementaires mises en place pour limiter la dispersion des PCB dans l'environnement ont permis d'observer à l'échelle de la décennie, entre les années soixante-dix et les années quatre-vingt, une diminution significative des niveaux de contamination des PCB dans l'environnement, en Suède, en Californie et sur le littoral français, notamment en Méditerranée.

A l'heure actuelle, la réglementation française interdit depuis février 1987 l'utilisation des PCB dans les nouveaux appareils mis en service et la loi oblige à la destruction des huiles au PCB usagées et à la décontamination des appareils contenant ces huiles. La destruction des PCB est pratiquée en France uniquement par incinération à 1 200 - 1 500 °C dans une seule usine agréée (TREDI dans le département de l'Ain) qui présente une capacité relativement faible par rapport à la demande actuelle française et étrangère, de l'ordre de 4 000 tonnes par an. De ce fait, la politique d'élimination de ces produits est prévue sur une vingtaine d'années, ce qui accroît la quantité des produits usagés stockés au fur et à mesure que les propriétaires et transformateurs renouvellent leur matériel. Par ailleurs, le coût élevé de destruction des PCB (en moyenne pour l'incinération 4 000 F/tonne et pour la décontamination 6 000 à 10 000 F/tonne) peut inciter des propriétaires peu scrupuleux à diluer les huiles de PCB usagées dans des citernes d'huiles ordinaires ou de les dissimuler clandestinement sur des lieux de décharge. De telles pratiques, relevées à plusieurs reprises dans la presse, risquent d'aboutir à une reprise de la contamination du milieu aquatique terrestre et par extension celle du milieu marin.

Ainsi, malgré une politique d'interdiction d'utilisation de ces produits et une volonté de destruction des stocks usagés, les risques de contamination de l'environnement demeurent et il convient de ne pas abandonner, pour ce type de composés, les travaux de surveillance de la qualité des eaux naturelles durant la prochaine décennie.

6 - REMERCIEMENTS

Je tiens à remercier tout particulièrement les Dr. E.K. DUURSMa et Dr. S. FOWLER pour les commentaires et critiques de ce manuscrit.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

ABARNOU A., AVOINE J., DUPONT J.P., LAFITE R. et SIMON S. (1987). Role of suspended sediments on the distribution of PCB in the Seine estuary (France). *Cont. Shelf. Res.*, 7(11/12): 1345-1350.

ALZIEU C. (1981). La coquille Saint-Jacques, témoin de la contamination des eaux littorales par les PCB. *Sciences et Pêche, Bull. Inst. Pêches maritimes*, 309: 11 p..

- ALZIEU C. et DUGUY R. (1978). Contamination du dauphin bleu et blanc de Méditerranée *Stenella coeruleoalba* par les composés organochlorés. IV^{ème} Journées Etud. Pollutions, Antalya, CIESM : 331-334.
- ALZIEU C. et DUGUY R. (1979). Teneurs en composés organochlorés chez les cétacés et pinnipèdes fréquentant les côtes françaises. *Oceanol. Acta*, 2(1): 107-120.
- ALZIEU C., MICHEL P. et THIBAUD Y. (1976). Présence de micropolluants dans les mollusques littoraux. *Sciences et Pêche, Bull. Inst. Pêches maritimes*, 264: 1-18.
- ANONYME (1983). L'état de l'équipement des collectivités en matière d'assainissement. Activité 1979. Secrétariat d'Etat à l'Environnement et à la Qualité de la Vie. DPP - Service de l'Eau, Paris : 124 p..
- ATLAS E. et GIAM C.S. (1985). Sea-air exchange of high-molecular weight synthetic organic compounds. The role of Air-Sea Exchange In : P. BUAT MENARD (ed.), *Geochemical cycling*, Dordrecht-Reidel, publ. : 295-329.
- ATLAS E., BIDLEMAN T. et GIAM C.S. (1986). Atmospheric transport of PCBs to the oceans. In : J.S. WAID (ed.), vol. I, CRC Press : 79-100.
- BAXTER R.M. et SUTHERLAND D.A. (1984). Biochemical and photochemical processes in the degradation of chlorinated biphenyls. *Environ. Sci. Technol.*, 18: 608-610.
- BEDDING N.D., Mc INTYRE A.E. et LESTER J.N. (1983). Organic contaminants in the aquatic environment. III - Public health aspects, quality standards and legislation. *Sci. Total Environ.*, 27(2 et 3): 163-200.
- BLETCHLY J.D. (1984). Polychlorinated biphenyls. Production, current use and possible rates of future disposal in OECD member countries. In : M.C. BARROS, H. HÖNEMANN et R. WISSEN (eds). Ministry of Housing, Physical Planning and Environment, The Netherlands : 343-372.
- BROWN D.A., GOSSETT R.W., HERSHELMAN G.P., WARD C.F., WESTCOTT A.M. et CROSS J.N. (1986). Municipal wastewater contamination in the Southern California Bight. Part 1 - Metal and organic contaminants in sediments and organisms. *Mar. Environ. Res.*, 18: 291-310.
- BROWNAWELL B.J. et FARRINGTON J.W. (1986). Biogeochemistry of PCBs in interstitial waters of a coastal marine sediment. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 50: 157-169.
- BURNS K. et VILLENEUVE J.P. (1982). Dissolved and particulate hydrocarbons in waters from a spring sampling of the Var river estuary (S. France). *Toxicol. Environ. Chem.*, 5: 195-203.
- BURNS K. et VILLENEUVE J.P. (1987). Chlorinated hydrocarbons in the open Mediterranean ecosystem and implication for mass balance calculations. *Mar. Chem.*, 20: 337-359.
- BURNS K., VILLENEUVE J.P. et FOWLER S. (1985). Fluxes and residence time of hydrocarbons in the coastal Mediterranean : how important are the biota ? *Est. Coast. Shelf Sci.*, 20: 313-333.
- CHEVREUIL M., CHESTERIKOFF A. et LETOLLE R. (1987). PCB pollution behaviour in the river Seine. *Wat. Res.*, 21(4): 427-434.
- CHIOU C.T., PORTER P.E. et SCHMEDDING D.W. (1983). Partition equilibria of non ionic organic compounds between soil organic matter and water. *Environ. Sci. Technol.*, 17(4): 227-231.
- CNEXO (1978). Baie de Seine. Campagne Thalia. Rapp. COB/ELGMM, Brest : 189 p..
- DAVIES R.P. et DOBBS A.J. (1984). The prediction of bioconcentration in fish. *Wat. Res.*, 18(10): 1253-1263.
- DAWSON R. et RILEY J.P. (1977). Chlorine-containing pesticides and polychlorinated biphenyls in British coastal waters. *Est. Coast. Mar. Sci.*, 4: 55-69.
- DE LAPPE B.W., RISEBROUGH R.W., MENDOLA J.T., BOWES G.W. et MONOD J.L. (1972). Distribution of polychlorinated biphenyls on the Mediterranean coast of France. Journées Etud. Poll., Athènes, CIESM: 43-45.
- DUCE R.A. et DUURSMA E.K. (1977). Inputs of organic matter to the ocean. *Mar. chem.*, 5(4-6): 319-339.
- DUINKER J.C. et HILLEBRAND M.T.J. (1979). Behaviour of PCB, pentachlorobenzene, hexachlorobenzene, -HCH, -HCH, -HCH, dieldrin, endrin and pp' DDD in the Rhine/Meuse estuary and the adjacent coastal area. *Neth. J. Sea Res.*, 13: 256-281.

- DUINKER J.C., BOON J.P. et HILLEBRAND M.T.J. (1984). Organochlorines in the Dutch Wadden Sea. *neth. J. Sea Res., Publ., Series 10* : 211-228.
- DUURSMA E.D., NIEUWENHUIZE J., VAN LIERE J.M. et HILLEBRAND M.T.J. (1986). Partitioning of organochlorines between water, particulate matter and some organisms in estuarine and marine systems of the Netherlands. *Neth. J. Sea Res., 20*(2/3) : 239-251.
- EISENREICH S.J., LOONEY B.B. et THORNTON J.D. (1981). Airborne organic contaminants in the Great Lakes ecosystem. *Environ. Sci. Technol., 15*(1) : 30-38.
- ELDER D. (1976). PCBs in N.W. Mediterranean coastal waters. *Mar. Poll. Bull., 7* : 63-64.
- ELDER D. et VILLENEUVE J.P. (1977). Polychlorinated biphenyls in the Mediterranean Sea. *Mar. Poll. Bull., 8*(1) : 19-22.
- GOLBERG E.D., BOWEN V.T., FARINGTON J.W., HARVEY G.R., MARTIN J.H., PARKER P.L., RISEBROUGH R.W., ROBERTSON W.A., SCHNEIDER E., et GAMBLE E. (1978). The mussel watch. *Environ. Cons., 5*(2) : 101-125.
- GRANIER L., CHESTERIKOFF A., CHEVREUIL M. et LETOLLE R. (1988). Essai de bilan des polychlorobiphényles (PCB) à la station d'épuration de l'agglomération parisienne (Achères). *C.R. Acad. Sci. Paris, t. 306, série II* : 1175-1178.
- HARDING G.C. (1986). Organochlorine dynamics between zooplankton and their environment. *Assessment. Marine Ecol. Progr. Series, 33* : 167-191.
- HARVEY G.R., STEINHAEUER W.G. et TEAL J.M. (1973). Polychlorobiphenyls in North Atlantic ocean water. *Science, 180* : 643-644.
- HARVEY G.R., STEINHAEUER W.G. et MIKLAS H. (1974). Decline of PCB concentrations in North Atlantic surface water. *Nature, 252* : 387-388.
- HAX NIENCHESKY L.F. (1982). *L'utilisation de Mytilus galloprovincialis comme indicateur de pollution du littoral méditerranéen français par les composés organochlorés et les métaux*. Thèse 3ème cycle, sept. 1982, Univ. Aix-Marseille II.
- HUNTER K.A. et LISS P. (1977). The inputs of organic material to the oceans : air-sea interactions and the organic chemical composition of the sea surface. *Mar. Chem., 5* : 361-379.
- JENSEN S. (1966). Report of a new chemical hazard. *New Scientist, 32* : 612.
- JOANNY M. (1984). Pollution du sédiment en zones littorales : les travaux du Réseau National d'Observation et problèmes méthodologiques associés. Société Hydraul. France, XVIII Journ. Hydraul., Marseille, 11-13 sept. 1984 : 1.9.1-1.9.5.
- KARICKHOFF S.N. (1980). Sorption kinetics of hydrophobic pollutants in natural sediments. In : R.A. BAKER (ed.), *Contamination and Sediments*, vol. 2, Ann Arbor Science, 193-205.
- KARICKHOFF S.N., BROWN D.S. et SCOTT T.A. (1979). Sorption of hydrophobic pollutants on natural sediments. *Mar. Res., 13* : 241-248.
- KENAGA E.E.D. et GORING C.A.I. (1980). Relationship between water solubility, soil sorption, octanol-water partitioning and bioconcentration in biota. In : *Aquatic Toxicology*, ASTM STP, 707 : 78-115.
- LISS P.S. et SLATER P.G. (1974). Fluxes et gases across the air-sea interface. *Nature, 247* : 181-184.
- MACKAY D. (1982). Correlation of bioconcentration factors. *Environ. Sci. Technol., 16*(5) : 274-278.
- MACKAY D. et LEINONEN P.J. (1975). Rate of evaporation of low solubility contaminants from water bodies to atmosphere. *Environ. Sci. Technol., 13*(9) : 1178-1180.
- MACKAY D., MASCARENHAS R. et SHIU W.Y. (1980). Aqueous solubility of polychlorinated biphenyls. *Chemosphere, 9* : 257-264.
- MARCHAND M. (1985). *Processus géochimiques d'apports et de distribution des polluants organiques dans l'environnement marin. Etude appliquée aux hydrocarbures et hydrocarbures halogénés*. Thèse Doct. es. Sciences, Univ. Paris VI, 22 nov. 1985 : 309 p..
- MARCHAND M. et CAPRAIS J.C. (1985). Hydrocarbons and halogenated hydrocarbons in coastal waters of the English channel and the North Sea. *Mar. Poll. Bull., 16*(2) : 78-81.
- MARCHAND M., VAS D. et DUURSMA E.K. (1976). Levels of PCBs and DDTs in mussels from the N.W. Mediterranean. *Mar. Poll. Bull., 7*(4) : 65-69.
- MARCHAND M., CAPRAIS J.C., COSSON-MANNEVY M.A. et MORINIERE P. (1983). Apports et distribution des résidus organochlorés à haut poids moléculaire dans la rade de Brest (milieu marin semi-fermé). *Oceanol. Acta, 6*(3) : 269-292.

- MARCHAND M., CAPRAIS J.C., TRONCZYNSKI J., MARTY J.C., SCRIBE P. et SALIOT A. (1986b). Processus de transport et flux des hydrocarbures et hydrocarbures halogénés dans l'estuaire de la Loire. Rapp. P.v. Réunion. Cons. Int. Explor. Mer, 186: 361-374.
- MARCHAND M., CAPRAIS J.C. et PIGNET P. (1985). Hydrocarbons and halogenated hydrocarbons in coastal waters of the Western Mediterranean (France). *Mar. Environ. Res.*, 25: 131-159.
- MARCHAND M., CAPRAIS J.C., PIGNET P. et POROT P. (1989). Les polluants organiques dans les effluents urbains et apports polluants dans le milieu marin. Cas du littoral français. *Mar. Res.* 23(4): 461-470.
- OCDE (1982). Rapport sur la mise en application par les pays membres de la décision du conseil sur la protection de l'environnement par le contrôle des diphenyles polychlorés. OCDE, Paris : 122 p..
- OLIVER B.G. et NICOL K.D. (1984). Chlorinated contaminants in the Niagara river. *The Science of the Total Environment*, 39: 57-70.
- OLSSON M. et REUTERGARDH L. (1986). DDT and PCB pollution trends in the Swedish aquatic environment. *Ambio*, 15(2): 103-109.
- PAVLOU S.P. et DEXTER R.N. (1979). Distribution of polychlorinated biphenyls (PCBs) in estuarine ecosystems. Testing the concept of equilibrium partitioning in the marine environment. *Environ. Sci. Technol.*, 13(1): 65-71.
- PEARSON C.R. (1982). Halogenated aromatics. In : HUTZINGER (ed.), *The handbook of Environmental Chemistry*, vol. 3, part B, Anthropogenic compounds. Springer Verlag : 89-116.
- PORTMAN J.E. (1981). PCBs in the marine environment. An overview. Doc. CIEM, groupe de chimie marine MCWG 1981/13.2 : 9 p..
- RAYBAUD M. (1972). *Les biocides organochlorés et les détergents anioniques dans le milieu marin*. Thèse 3ème cycle, Centre Universitaire de Luminy, Univ. Aix-Marseille II.
- SCHAFFER M. (1982). Characteristics of municipal waste waters. In : *Coastal Water Research Project*. Biennial report for the years 1981-1982. Southern California Coastal Water Research Project. Long Beach, California (USA) : 11-16.
- SCHNEIDER R. (1960). Polychlorierte Biphenyle in Dorsch untersuchungen zum primären Mechanismus der Rückstandbildung persistenter lipophiler Schadstoffe in Kiemenatmenden Tieren. Ph. D. Thesis, University Kiel : 1-57.
- STOUT V.F. (1986). What is happening to PCBs ? In : J.S. WAID, *PCBs and the Environment*, vol. I, CRC Press : 163-205.
- TANABE S. (1985). Distribution, behaviour and fate of PCBs in the marine environment. *J. Oceanogr. Soc. Jap.*, 41 : 358-370, (texte en japonais).
- TANABE S. et TATSUKAWA R. (1983). Vertical transport and residence time of chlorinated hydrocarbons in the open ocean water column. *J. Oceanogr. Soc. Jap.*, 39 : 53-62.
- VILLENEUVE J.P. (1986). *Geochimie des composés organochlorés dans l'environnement marin*. Thèse de doctorat, Université Paris VI, 27 mars 1986 : 180 p..
- VILLENEUVE J.P., ELDER D.L. et FUKAI R. (1980). Distribution of polychlorinated biphenyls in sea water and sediments from the open Mediterranean sea. *Vèmes Journées Etude Pollutions*, CIESM, Cagliari : 251-256.
- WOLFE D.A. (1986). Sources of organic contaminants in the marine environment : ocean disposal and accidental spills. In : C.S. GIAM et H.J.M. DOU (eds), *Strategies and Advanced Techniques for Marine Pollution Studies*. NATO ASI Series, vol. G9, Springer Verlag : 237-288.