

## Le 'Mussel-Watch' français: résultats acquis sur les moules et les huîtres du littoral de la France. Exploitation de ces résultats dans le cas particulier de l'estuaire de la Seine

Didier Claisse<sup>1</sup> & Serge Simon<sup>2</sup>

1. Institut Français de Recherche pour l'Exploitation de la Mer, Centre de Nantes, BP 1049, F-44037 Nantes Cedex 01, France

2. Commission chargée de contrôler l'évolution de la pollution en estuaire et en baie de Seine, Direction Régionale des Affaires Maritimes, 170 boulevard Clémenceau, F-76083 Le Havre Cedex, France

### Résumé

Depuis 1979 le Réseau National d'Observation de la Qualité du Milieu Marin (RNO) pratique une surveillance trimestrielle des teneurs en contaminants métalliques (Hg, Cd, Pb) et organiques (PAH, PCB, DDT, DDD, DDE) dans les moules et les huîtres du littoral français. Cette communication résume les méthodes et les actions d'assurances de qualité utilisées. Les résultats sont présentés de manière synthétique et les points remarquables sont mis en évidence. Une tentative de relation est faite entre les concentrations dans la Seine faisant l'objet d'un suivi régulier et les résultats du 'mussel-watch' exposés précédemment.

Mots-clés: pollution, Seine, mercure, cadmium, plomb, organochlorines, PAH.

### Résultats acquis par le Réseau National d'Observation de la Qualité du Milieu Marin

Le Réseau National d'Observation de la Qualité du Milieu Marin (RNO) est un programme du type 'mussel-watch' financé par le Secrétariat d'Etat pour l'Environnement de France. Il a pour but de connaître les niveaux et les tendances de la contamination du littoral français. La surveillance dans les moules et les huîtres est menée depuis 1979.

#### Plan d'échantillonnage

Environ cent stations réparties sur toute la côte française font l'objet de prélèvements trimestriels (février, mai, août et novembre) (Figure 1). Les espèces utilisées sont *Mytilus edulis*, *Mytilus galloprovincialis* et *Crassostrea gigas*. Pour une station donnée l'espèce prélevée est toujours la même.

#### Mode opératoire

Les coquillages sont d'abord épurés pendant 24 heures dans de l'eau de la zone de prélèvement décantée, puis mesurés, décoquillés et congelés. Ils sont ensuite acheminés en caisse isotherme vers le laboratoire de l'Institut Français de Recherche pour l'Exploitation de la Mer (IFREMER) de Nantes. Les échantillons sont alors broyés, homogénéisés et lyophilisés.

Les paramètres mesurés sont:

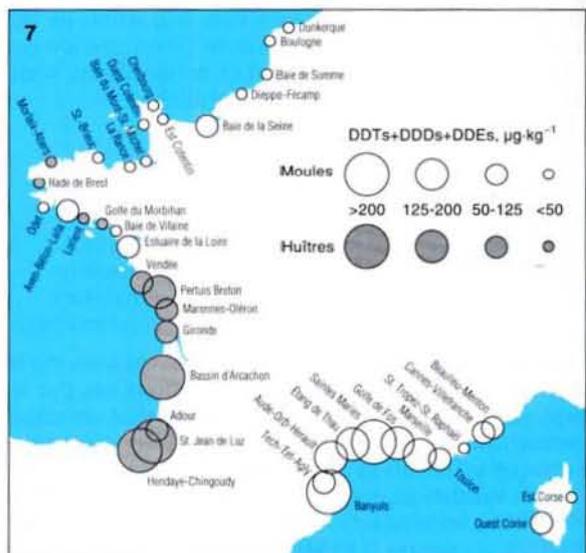
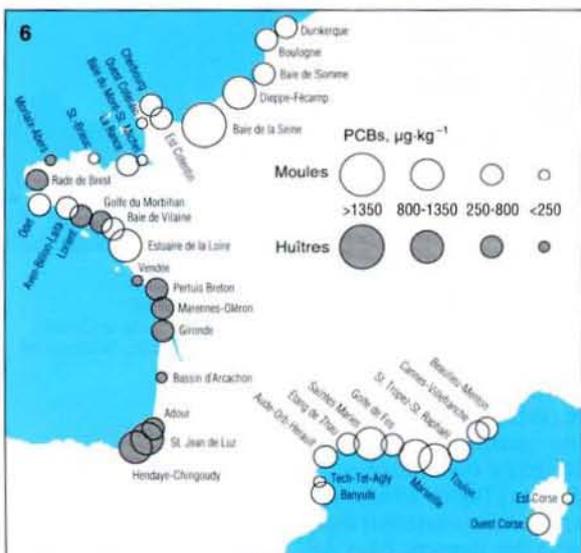
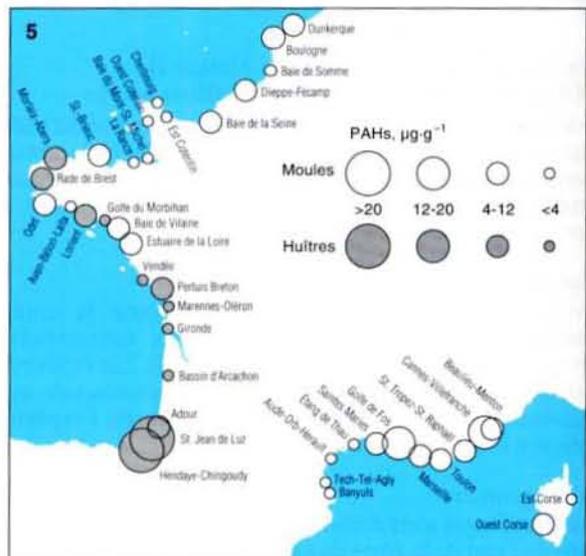
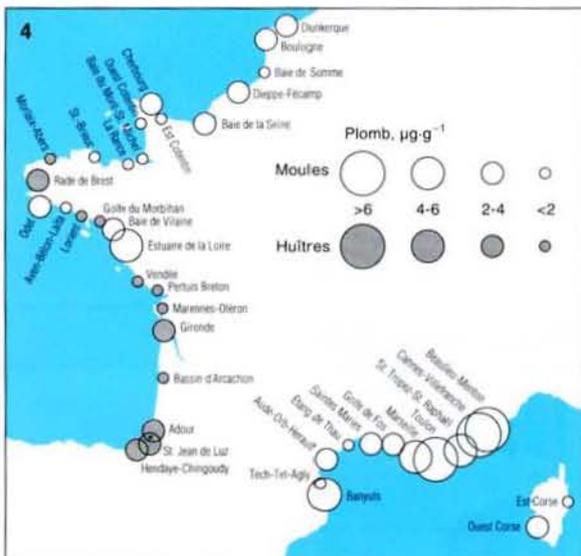
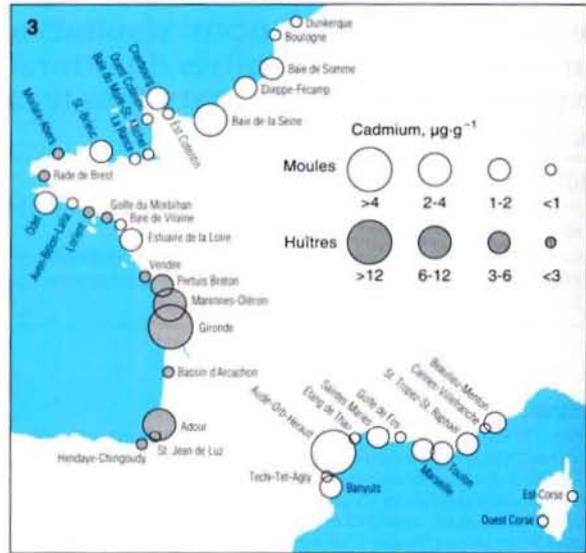
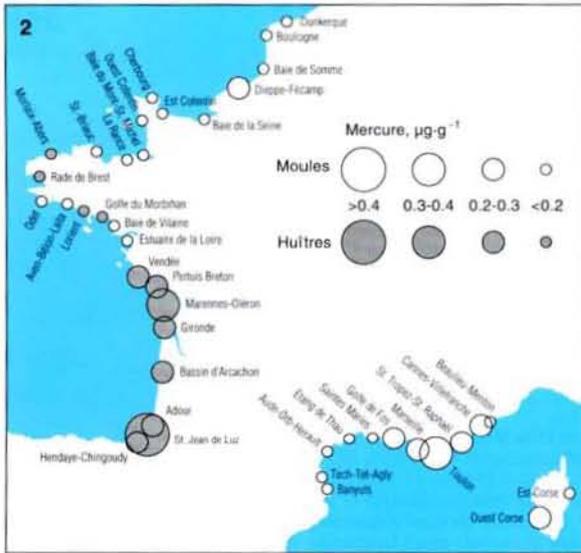
- les métaux lourds (Zn, Cu, Hg, Cd, Pb);
- les PAHs (hydrocarbures polyaromatiques);
- les PCBs (polychlorobiphényles);
- les DDTs (dichlorodiphényltrichloréthane);
- les DDDs (dichlorodiphényldichloréthane);
- les DDEs (dichlorodiphényldichloréthylène);
- l' $\alpha$ -HCH et le  $\gamma$ -HCH (hexachlorocyclohexanes).

Le laboratoire IFREMER assurant les analyses du RNO participe systématiquement aux exercices d'intercalibration proposés par le Conseil International pour l'Exploration de la Mer (CIEM). L'utilisation de standards certifiés est également systématique, plusieurs fois dans une série d'analyses. Une quantité importante de chaque échantillon est archivée à fin de vérification ultérieure éventuelle.

Après validation, selon des principes et des méthodes décrits (Taylor 1986, Natrella 1966), les résultats sont stockés dans une base de données sur ordinateur Bull DPS7000, au centre IFREMER de Brest. Cette base contient actuellement plus de 20 000 données sur les moules et les huîtres.



Figure 1. Réseau National d'Observation de la Qualité du Milieu Marin. Stations de prélèvement.



Figures 2-7. Teneurs moyennes par sites en Hg, Cd, Pb, PAH, PCB et DDT,DDD,DDE dans les moules et les huitres du littoral français (RNO, 1979-88).

## Résultats

On s'est attaché ici à représenter synthétiquement les résultats concernant le mercure, le cadmium, le plomb, les PCBs, les PAHs et la somme des DDTs, DDDs et DDEs.

Les stations de prélèvements étant regroupées en 43 grands sites, les cartes présentées montrent les moyennes pour chaque site sur une espèce donnée. Ces moyennes portent sur 9 ans d'observations (Figures 2 à 7).

Pour tous les paramètres étudiés, les teneurs les plus basses rencontrées sont de l'ordre des niveaux considérés comme naturels dans la littérature. Par contre plusieurs sites présentent des teneurs plus élevées pour un ou plusieurs paramètres. Ces différents cas sont analysés dans ce qui suit.

*Le mercure* (Figure 2): Les teneurs moyennes rencontrées ne sortent jamais de la gamme de niveaux considérés comme faibles par les Conventions d'Oslo et de Paris ( $<0.6 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ ). Cependant certains sites paraissent nettement plus contaminés que le reste du littoral, à savoir:

- la Nivelle à Saint-Jean-de-Luz;
- le bassin de Marennes-Oléron;
- la rade de Toulon.

*Le cadmium* (Figure 3): Le point le plus remarquable est situé dans la Gironde où les niveaux de présence du cadmium sont de 10 à 30 fois supérieurs aux teneurs moyennes rencontrées dans les huîtres du littoral français, le maximum mesuré étant de  $129 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ . Cette contamination exceptionnelle est due aux activités minières du bassin versant de la Garonne (Boutier & Chiffolleau 1986).

Un autre site très contaminé est l'étang de Bages dans le département de l'Aude, où les niveaux sont 15 fois plus élevés que ceux rencontrés dans les moules des côtes françaises. Aucune étude particulière n'a, jusqu'à ce jour, été menée à ce sujet.

Dans une moindre mesure, l'estuaire de la Seine, le bassin de Marennes-Oléron, et l'embouchure de l'Adour sont également contaminés par le cadmium.

*Le plomb* (Figure 4): Mis à part l'estuaire de la Loire, les plus fortes concentrations en plomb se rencontrent sur la côte méditerranéenne avec des maximums dans la rade de Toulon et sur le littoral situé entre Cannes et Menton.

*Les PAHs* (Figure 5): Les hydrocarbures polycycliques sont présents à des niveaux assez faibles sur le littoral. Les maximums sont atteints dans l'embouchure de la Nivelle à Saint-Jean-de-Luz et de la Bidassoa à Hendaye pour l'Atlantique, ainsi que dans le golfe de Fos et à Nice pour la Méditerranée.

Du fait que plusieurs stations sont moyennées pour un même site deux phénomènes sont occultés sur la carte présentée ici, à savoir: la contamination de l'estuaire de la Seine, du même ordre que celle du golfe de Fos, et, dans une moindre mesure, celle de l'aber Benoit en Bretagne nord qui s'épure lentement après le naufrage de l'*Amoco Cadiz* en 1978.

*Les PCBs* (Figure 6): Les PCBs sont présents à des concentrations non négligeables sur tout le littoral, la baie de Seine se situant au niveau des sites les plus contaminés d'Europe. L'influence de cette contamination se fait ressentir en dégradé sur les zones voisines. Sur la côte atlantique les estuaires de la Loire, de la Nivelle et de la Bidassoa présentent également des niveaux de présences élevés.

En Méditerranée, le Petit Rhône, Marseille et Toulon sont les sites les plus contaminés.

*Les DDTs+DDD+DDEs* (Figure 7): Bien qu'interdit d'emploi depuis 1970 le DDT est encore présent, ainsi que ses métabolites, sur le littoral avec une répartition très caractéristique: les teneurs les plus fortes se rencontrent au sud de la Loire et en Méditerranée avec un maximum observé dans le bassin d'Arcachon.

## Conclusions

La surveillance dans les mollusques filtreurs menée depuis dix ans dans le cadre du Réseau National d'Observation de la Qualité du Milieu Marin a permis d'acquiescer une assez bonne connaissance des niveaux de contamination du littoral de la France et de discerner les tendances temporelles les plus marquées. Des points remarquables où les teneurs en polluants sont en moyenne les plus élevées ont ainsi été mis en évidence tels les sites de Toulon pour le plomb, de la Gironde pour le cadmium, d'Arcachon pour le DDT, d'Hendaye et de Saint-Jean-de-Luz pour les hydrocarbures, de la baie de Seine pour les PCBs.

D'autre part, ce réseau a permis d'inciter et d'orienter les recherches nécessaires à la compréhension des relations entre les causes et les effets des pollutions suivies, des processus de contamination de la matière vivante, des effets nocifs à plus ou moins long terme.

La poursuite de ce programme dans les années à venir devrait permettre de mieux appréhender les tendances et de connaître ainsi l'évolution de la qualité de notre milieu marin.

### Relations entre les résultats du Mussel-Watch et les concentrations dans l'eau: Application à l'estuaire de la Seine

#### Choix des polluants et des données utilisées

Au vu des points remarquable mis en évidence par le RNO, nous avons retenu la baie de Seine pour les teneurs importantes en PCBs et cadmium qui y sont rencontrées. De plus, ces deux polluants, entre autres, sont suivis régulièrement, ainsi que des paramètres de qualité, dans l'eau du fleuve par la Cellule Antipollution de la Seine (Service de la Navigation de la Seine de Rouen pour le compte du Secrétariat d'Etat à l'Environnement). Un rapport annuel sur l'ensemble de ces mesures dans l'eau est édité.

La Cellule Antipollution de la Seine effectue 6 à 7 fois par an depuis 1976 des campagnes de prélèvements d'eau sur 22 stations, comprises entre la limite de la marée dynamique (barrage de Poses) et l'estuaire. Quatre de ces stations sont suivies, entre autres, pour les analyses de Cd et PCB. Il était intéressant de tenter la mise en relation du fichier 'eau' ainsi constitué et du fichier 'moules' du RNO. Les résultats provenant de la station Honfleur, station la plus proche des gisements de moules suivis par le RNO ont été utilisés; ces gisements sont dans une zone distante de 8 à 15 km d'Honfleur directement sous l'influence du panache de la Seine: gisements de Villerville, du Banc du Ratier, de la digue nord du Havre et du cap de La Hève (Figure 8).

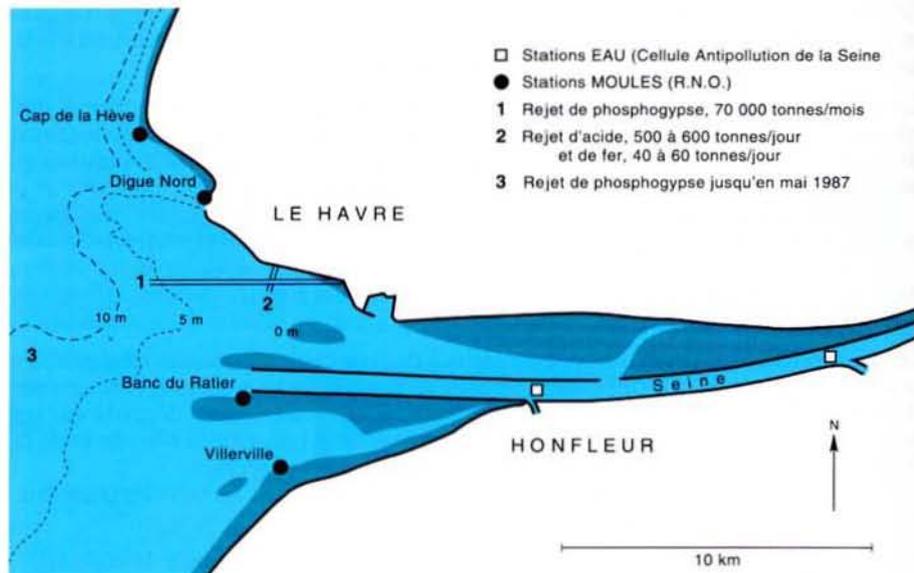


Figure 8.  
Estuaire de la Seine:  
stations de prélèvements.

#### Etude du cadmium

La mise en relation des données dans les moules et dans l'eau a présenté quelques difficultés:

en effet, l'examen des données cadmium dans les moules sur tout le littoral français montre que l'estuaire de la Seine est un des sites les plus contaminés sans toutefois atteindre les niveaux de présence observés en Gironde (Boutier & Chiffolleau 1986);

or les valeurs dans l'eau filtrée que nous utilisons, dans le cadre de cette étude, pour le fleuve Seine sont supérieures à celles mesurées dans l'eau du fleuve Gironde dans le cadre de programmes spécifiques (Boutier *et al.* 1989, Cossa 1988);

de plus, des auteurs ont proposé une relation entre les teneurs en cadmium dans les moules et les concentrations dans l'eau (Talbot 1985, Cossa 1988). L'application de ces relations à nos données dans les moules de l'estuaire de la Seine conduit à des concentrations calculées dans l'eau très inférieures à celles que nous utilisons dans le cadre de cette étude.

Ce paradoxe pourrait s'expliquer de plusieurs manières:

d'une part, la distance entre la station suivie pour l'eau et celles suivies pour les moules permettrait d'invoquer la dilution des eaux fluviales par la mer mais d'importants apports réguliers de cadmium sont connus et identifiés entre ces points, il s'agit des apports induits par les rejets de phosphogypses. Ces apports liés à la phase insoluble du phosphogypse, comme le prouve la contamination croissante des sédiments soumis au rejet, représentent en moyenne de 8 à 10 kg de cadmium par jour;

d'autre part, des auteurs ont montré que le cadmium lié à la phase particulaire est remis en solution dans une gamme de salinité de 15 à 20 ‰ puis subit la dilution physique invoquée précédemment (Boutier *et al.* 1989). Or les salinités relevées au niveau de Honfleur se situent rarement dans cette gamme, mais le plus souvent entre 0 et 10 ‰. Cependant les phénomènes de redissolution sont amplifiés par des rejets acides réguliers (Figure 8).

Une autre explication pourrait être d'ordre méthodologique. Il se pourrait que les concentrations mesurées dans l'eau de la Seine soient systématiquement surévaluées et des prélèvements suivant un nouveau protocole confirmeront ou infirmeront cette hypothèse.

Il est actuellement difficile d'évaluer la part respective de chaque hypothèse vis à vis de ce problème. Nous avons cependant essayé d'exploiter les résultats dans l'eau filtrée avec ceux des moules.

On observe dans les moules des variations saisonnières qui confirment la présence d'un maximum des teneurs en cadmium en hiver et au printemps (Amiard *et al.* 1986), ce qui semble plus en relation avec le métabolisme de l'animal qu'avec des variations du milieu.

C'est la comparaison des tendances à long terme entre l'eau et les moules qui a donné les meilleurs résultats:

On remarque que l'allure générale des tracés, pendant la période 1979-1989, présente un point commun à savoir une décroissance suivie selon les cas d'une stabilisation ou d'une légère remontée (Figures 9, 10). Les tracés des concentrations dans l'eau mesurées aux trois autres stations en amont, pendant la période considérée, montrent également une légère remontée du cadmium.

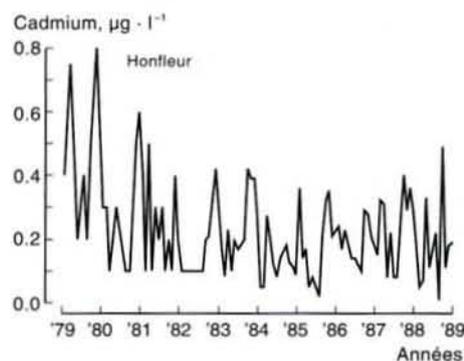


Figure 9.  
Concentrations en cadmium  
à Honfleur (eau filtrée).

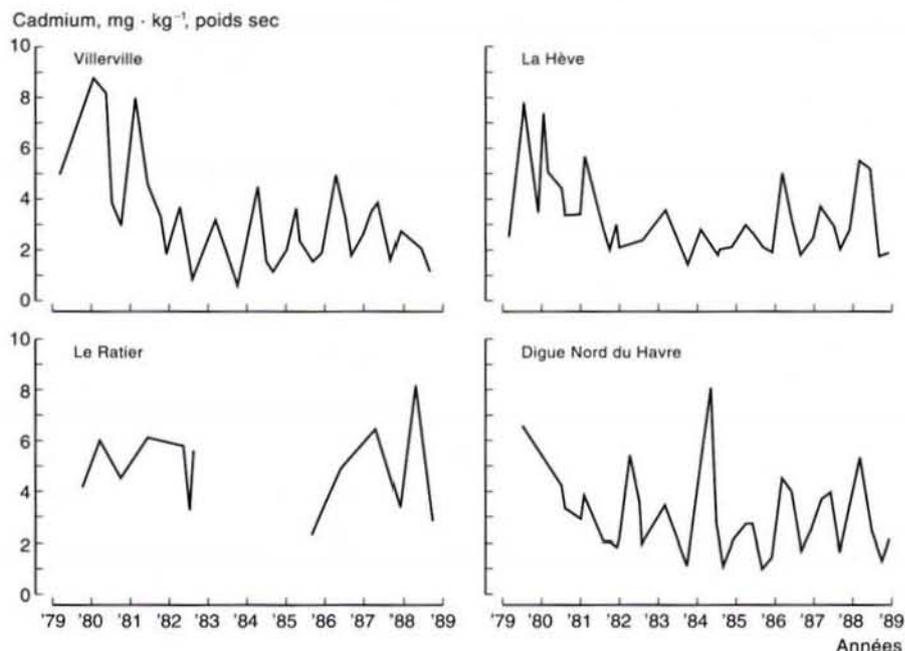
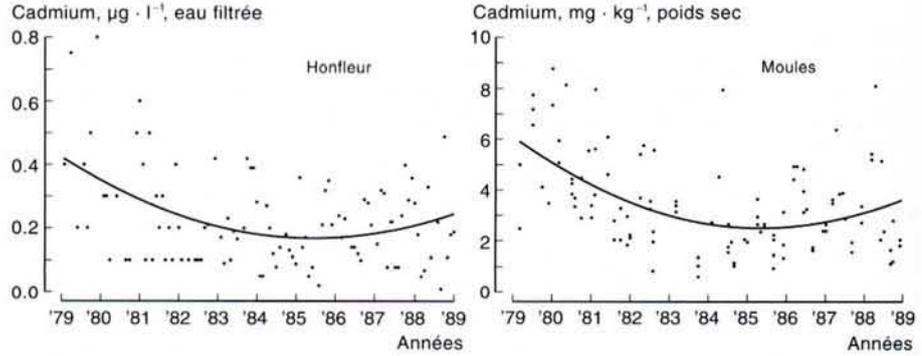


Figure 10.  
Teneurs en cadmium  
dans les moules de l'estuaire  
de la Seine (RNO).

Figure 11. (gauche)  
Régression parabolique des concentrations en cadmium à Honfleur.

Figure 12. (droite)  
Régression parabolique des teneurs en cadmium dans les moules.



Nous avons donc testé sur les données dans l'eau à Honfleur (100 données) et sur les données dans les moules regroupées (118 données) une régression de forme parabolique ce qui a permis de déterminer deux courbes de régression au mieux ajustées à nos séries de données (Figures 11, 12).

Ces deux ajustements présentent un tracé similaire et passent par leur minimum à la même période, soit le début de l'année 1985.

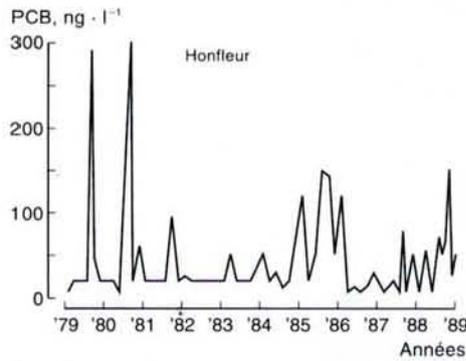


Figure 13.  
Concentrations en PCBs dans l'eau brute à Honfleur.

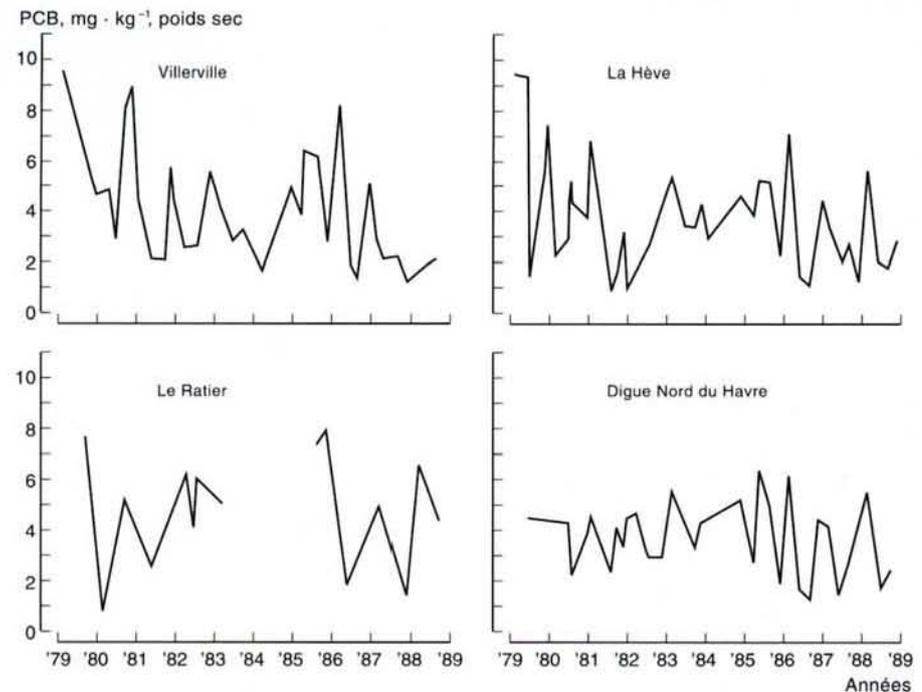
*Etude des PCBs*

Nous avons testé, comme pour le cadmium, des comparaisons de tendances dans l'eau et dans les moules (Figures 13, 14).

Il faut tout de suite remarquer que les seuils de détection de 20 ng · l<sup>-1</sup> influencent la représentation du tracé temporel des données dans l'eau (Figure 13) et que la quantité de valeurs inférieures à ce seuil rend difficile l'exploitation de ces résultats. Ce seuil est inadapté à la surveillance des PCBs dans l'eau (Marchand 1988).

Contrairement au cas du cadmium aucune tendance ne se dessine au vu de ces tracés temporels.

Figure 14.  
Teneurs en PCBs dans les moules de l'estuaire de la Seine (RNO).



## Conclusions

Dans le cas du cadmium et malgré la discordance apparente des niveaux observés dans l'eau et dans les moules, il reste que la comparaison des tendances montre une bonne cohérence entre ces deux types de surveillance.

L'absence de tendance constatée dans le cas des PCB ne permet pas d'observer de relation entre les concentrations dans l'eau et les teneurs dans les moules. On rappellera que les concentrations en PCB dans le fleuve sont très dépendantes de la quantité de matières en suspension (MES) à un instant donné et présentent donc de grandes fluctuations temporelles en fonction du régime fluvial.

## Références

- Amiard, J.C., C. Amiard-Triquet, B. Berthet & C. Métayer, 1986. Contribution to the ecotoxicological study of cadmium, lead, copper and zinc in the mussel *Mytilus edulis* L. Field study. – *Mar. Biol.* **90**: 425-432.
- Boutier, B. & J.F. Chiffolleau, 1986. La contamination par le cadmium en Gironde et son extension sur le plateau continental. – Rapport IFREMER n° DERO-86. 12-MR. 28 pp.
- Boutier, B., J.M. Jouanneau, J.F. Chiffolleau, C. Latouche & I. Philipps, 1989. La contamination de la Gironde par le cadmium. Origine, extension, importance. – Rapport Scientifique et Technique IFREMER **14**. 105 pp.
- Cossa, D., 1988. Cadmium in *Mytilus* spp.: Worldwide survey and relationship between seawater and mussel content. – *Mar. Environ. Res.* **26**: 265-284.
- Marchand, M., 1988. Surveillance dans l'eau. – Surveillance dans la matière vivante. – In M. Joanny & M. Chaussepied (eds): Dix années de surveillance 1974-1984, pp. 11-107. Réseau National d'Observation de la Qualité du Milieu Marin. Document Technique, volume III, polluants organiques. IFREMER et Secrétariat d'Etat auprès du Premier Ministre chargé de l'Environnement (208 pp).
- Natrella, M., 1966. The treatment of outliers. – In *Experimental statistics*. National Bureau of Standards Handbook **91**, US Department of Commerce, pp. 171-176. J. Wiley & Sons, New York.
- Talbot, V., 1985. Relationship between cadmium concentrations in sea water and those in the mussel *Mytilus edulis*. – *Mar. Biol.* **85**: 51-54.
- Taylor, J.K., 1986. On validation of analytical data. – *Mar. Chem.* **18**: 115-119.

## Abstract

Since 1979 a Mussel-Watch-type network, the 'Réseau National d'Observation de la Qualité du Milieu Marin' (RNO) has been carrying out a monitoring of concentration levels of Hg, Cd, Pb, PAHs, PCBs, DDTs, DDDs and DDEs in soft parts of mussels and oysters from the French shore. Methods and results are presented, and hot spots are pointed out, particularly in the Gironde Estuary for Cd and the Bay of Seine for PCB.

The paper describes a 10 year monitoring mussel-watch programme assessing the relationships between the mussel concentrations of cadmium and the PCBs, the main pollutants of the Seine Estuary, and environmental conditions.