

Organochlorés
Eau
Sédiments
Matière vivante
Rade de Brest
Organochlorine
Water
Sediments
Biota
Rade de Brest

Apports et distribution des résidus organochlorés à haut poids moléculaire dans la rade de Brest (milieu marin semi-fermé)

M. Marchand, J.-C. Caprais, M.A. Cosson-Mannevy, P. Morinière
CNEXO, Centre Océanologique de Bretagne, BP 337, 29273 Brest Cedex.

Reçu le 15/6/82, révisé le 1/3/83, accepté le 28/3/83.

RÉSUMÉ

Les processus d'apports, de transfert et de distribution des résidus organochlorés d'insecticides (lindane, DDT) et de PCB ont été étudiés dans un environnement marin côtier semi-fermé. Les analyses ont été effectuées sur l'eau de mer, l'eau de pluie et les sédiments. Les coefficients de distribution entre l'eau de mer et le sédiment ont été mesurés pour plusieurs insecticides et résidus de PCB. Les résultats obtenus montrent que l'atmosphère est une source d'apports non négligeables des résidus organochlorés. Les plus fortes concentrations résiduelles dans les sédiments sont observées à proximité des autres sources de pollution, d'origine industrielle et urbaine. Les analyses effectuées dans la moule indiquent que ce mollusque est un bon indicateur biologique de la pollution des eaux. Les facteurs de concentration sont calculés pour le lindane, les composés du DDT et les PCB. La contamination de vers marins (polychètes) est étudiée en relation avec la contamination du sédiment. Les gammes des niveaux résiduels observés dans l'eau de mer, l'eau de pluie, les sédiments, les moules et les vers marins sont résumées dans un tableau.

Oceanol. Acta, 1983, 6, 3, 269-282.

ABSTRACT

Inputs and distribution of high molecular weight chlorinated hydrocarbons in the Rade de Brest (semi-closed marine environment).

The aim of this work is to study the input, transfer and distribution processes of chlorinated insecticides (lindane, DDT) and PCB residues in a semi-closed coastal marine environment. Measurements are made in sea water, rain water and sediment samples. Distribution coefficients between sea water and sediment are determined for several organochlorine insecticide and PCB compounds. The results show an important transfer of chlorinated residues from the atmosphere to the marine environment. The highest residue levels in the sediments are observed near other urban and industrial pollution sources. Analyses of mussels show that this mollusc can be used as a biological indicator of sea water pollution. Concentration factors are determined for lindane, DDT compounds and PCBs. The contamination of marine worms (polychaetes) is studied in relation to the contamination of sediments. The ranges of organochlorine residue levels in sea water, rain, sediments, mussels and marine worms are summarized.

Oceanol. Acta, 1983, 6, 3, 269-282.

INTRODUCTION

Les résidus organochlorés d'insecticides et de polychlorobiphényles (PCB) représentent une classe de composés chimiques très largement répandus dans l'environnement

marin. Ce type de micropolluants organiques fait l'objet d'une surveillance régulière sur le littoral français, dans le cadre du Réseau National d'Observation de la qualité du milieu marin (RNO, 1982). Les données relatives à cette surveillance, sur un site semi-fermé comme la rade

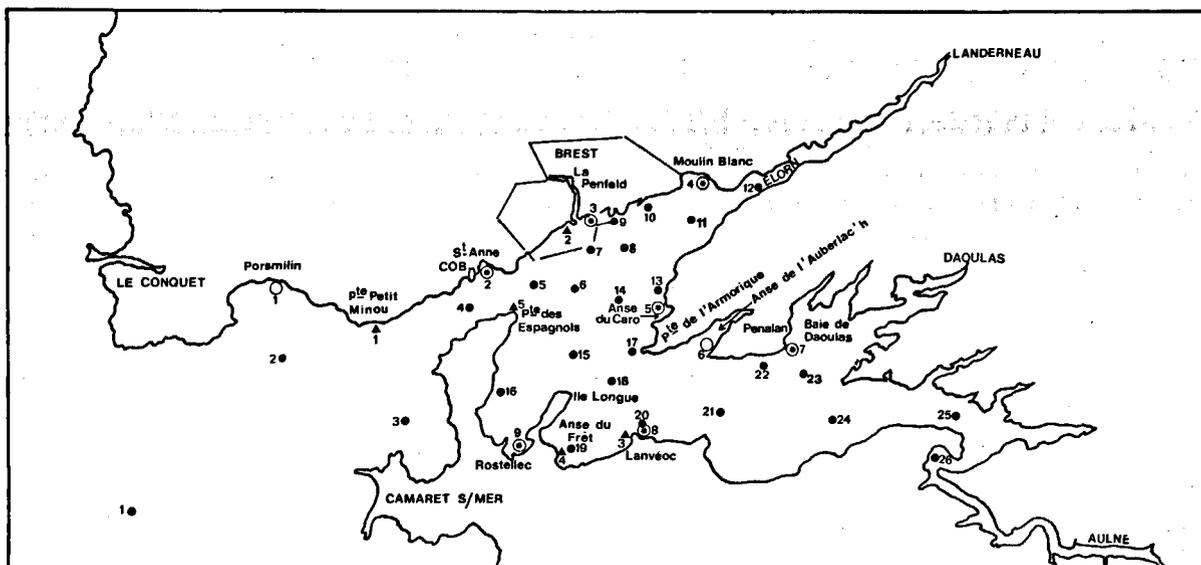


Figure
 Rade de Brest. Stations de prélèvement des échantillons : COB (Centre Océanologique de Bretagne, CNEXO) : eau de pluie. Stations : ●, 1... 26 : eau de mer; sédiment subtidal; *, S₂... S₉ : sédiment intertidal; *, P₁... P₉ : polychètes; ▲, M₁... M₅ : moules.
 Rade de Brest. Sampling stations: COB (Centre Océanologique de Bretagne, CNEXO): rain water. Stations: ●, 1... 26 : sea water; subtidal sediment; *, S₂... S₉ : intertidal sediment; *, P₁... P₉ : polychaetes; ▲, M₁... M₅ : mussels.

de Brest, ont été complétées depuis 1977 par un programme d'étude plus détaillé visant à définir les mécanismes d'apports, de transfert et de distribution de ces micropolluants organiques dans un environnement marin côtier.

Plusieurs types d'échantillons ont été analysés : l'eau de mer, l'eau de pluie et le sédiment. Un suivi de la pollution a été réalisé en utilisant la moule (*Mytilus edulis*) comme indicateur biologique de pollution (Cosson-Mannevy, 1979). Par ailleurs, l'influence de la pollution des sédiments sur la contamination de deux polychètes, animaux benthiques dépositivores, *Arenicola marina* et *Cirriformia tentaculata*, a été étudiée (Morinière, 1978).

La rade de Brest (fig.) constitue un milieu marin semi-fermé, soumis à l'influence des apports fluviaux de l'Elorn au Nord et de l'Aulne au Sud. La superficie moyenne est évaluée à environ 185 km², et le volume d'eau représente 2,3 10⁹ m³. La rade de Brest peut être schématiquement divisée en trois zones [SAUM (Schéma d'Aptitude et d'Utilisation de la Mer de la rade de Brest), 1978] :

- la zone nord est soumise à l'hydrologie de l'Elorn qui induit une circulation estuarienne;
- la zone sud-est est localisée en aval de l'Aulne et possède un caractère estuarien plus prononcé que la zone nord, du fait du débit plus important de l'Aulne;
- la zone centrale est une zone de mélange des eaux estuariennes et des eaux marines.

Compte tenu des apports fluviaux, la rade de Brest a tendance à se comporter comme une baie en été et comme un estuaire en hiver. Le taux de renouvellement des eaux de la rade est faible et évalué à 1/140^e du volume de la rade à basse mer, au cours d'un cycle de marée (Berthois, Auffret, 1968-1970). Il faut donc environ 87 jours pour renouveler entièrement toutes les eaux de la rade de Brest.

L'agriculture, l'industrie et les agglomérations rejettent dans la rade de Brest, soit directement, soit par l'intermédiaire des rivières, des quantités appréciables d'éléments minéraux et organiques. Dans cette étude, nous avons cherché à évaluer les apports des résidus organochlorés dans la rade de Brest, principalement à proximité de la ville de Brest, aux embouchures de l'Aulne et de l'Elorn, et par l'intermédiaire des eaux de pluie.

MATÉRIEL ET MÉTHODES

Eau de mer et eau de pluie

En 1977, les échantillons d'eau de mer brute étaient prélevés en surface à l'aide d'un seau métallique. Depuis 1978, nous utilisons une bouteille en verre de 2 l, logée dans un bâti en plomb et fermée par un bouchon conique en téflon dont l'ouverture et la fermeture sont commandées par le manipulateur à la profondeur d'échantillonnage (1 m). Nous n'avons pas observé de variations significatives des résultats d'analyse entre les deux procédés de prélèvement. L'eau de pluie est récupérée périodiquement dans un flacon en téflon de 1 l, par l'intermédiaire d'un entonnoir métallique. Sept séries de prélèvements ont été effectuées sur le Centre Océanologique de Bretagne, entre avril 1977 et février 1978. La durée d'échantillonnage varie de 15 jours à 1 mois. Les quantités prélevées sont de l'ordre de 1 l. L'échantillon d'eau est extrait 3 fois dans une ampoule à décanter, successivement par 100 ml, 50 ml et 50 ml d'un mélange hexane-éther éthylique (85:15, v/v). Les extraits sont récupérés et concentrés à l'aide d'un évaporateur rotatif (40°C, pression réduite) à environ 4 ml. L'extrait est ensuite déshydraté par addition de sulfate de sodium anhydre et concentré à 1 ml sous jet

d'azote. L'extrait concentré est purifié sur une micro-colonne (pipette Pasteur) de florisil (activé à 130°C et désactivé par 5% d'eau). Les organochlorés sont élués par 8 ml de benzène. L'extrait purifié est à nouveau concentré à 0,5 ml. Le rendement de la méthode utilisée, sur échantillons dopés par des quantités connues d'organochlorés (lindane, heptachlore, aldrine, DDT, DDE, DDD et PCB), varie de 82 à 87%.

Sédiments

Le sédiment est prélevé en zone subtidale à l'aide d'une benne Shipeck et transféré dans un bocal en verre couvert par une feuille d'aluminium. Les échantillons sont conservés congelés au laboratoire. Avant analyse, le sédiment est déshydraté par lyophilisation et homogénéisé. 25 à 30 g de sédiment brut séché sont extraits deux fois dans un bain à ultra-sons, pendant 30 minutes, par 50 ml d'hexane (Dawson, Riley, 1977). Le rendement d'extraction est supérieur à 80%. Les extraits combinés sont concentrés à 1 ml et la purification est réalisée sur une colonne de florisil (Φ : 0,5 cm \times 8 cm). L'éluion des organochlorés recherchés est effectuée par 10 ml d'hexane. L'extrait purifié est ramené à 2 ml. Le soufre libre présent dans l'extrait est précipité par addition de mercure métallique dans la phase d'hexane.

Matière vivante : moules et polychètes

Les échantillons de moules, de taille le plus homogène possible, sont enveloppés dans du papier d'aluminium et conservés congelés au laboratoire. Les parties molles sont séparées de la coquille, soumises à une déshydratation par lyophilisation et broyées dans un mortier. Les polychètes ramenées au laboratoire sont laissées 24 h dans l'eau de mer au réfrigérateur pour qu'elles dégorgent le sédiment contenu dans leur tube digestif. Elles sont ensuite disséquées, afin d'éliminer le sédiment restant. Les échantillons congelés sont lyophilisés et broyés au mortier avant l'analyse.

Les échantillons biologiques (1 à 2 g de poids sec) sont extraits par homogénéisation dans un appareil de type Virtis pendant 15 minutes par 50 ml d'hexane. L'extraction est renouvelée une seconde fois. Les extraits sont combinés et concentrés. La purification est réalisée

par précipitation des graisses par addition de 1 à 2 ml d'acide sulfurique. Après agitation, les deux phases sont séparées par centrifugation.

Analyse des organochlorés

L'identification et le dosage des résidus organochlorés sont réalisés par chromatographie en phase gazeuse sur un appareil Tracor 560 équipé d'un détecteur à capture d'électrons (^{63}Ni). La majorité des analyses ont été effectuées sur colonne classique (9% OV-101 sur Chromosorb W, 100/120 mesh). Les températures du four, de l'injecteur et du détecteur sont respectivement de 200, 220 et 300°C. Le gaz vecteur N_2 a un débit de 70 ml.min $^{-1}$. Depuis 1978, les analyses sont réalisées sur colonne capillaire WCOT (Φ : 0,4 mm \times 20 m), imprégnée de phase SE-30 (0,28%). La température du four est programmée de 180 à 240°C, à 2°C.min $^{-1}$ (Caprais, Marchand, 1981).

Les limites de détection sont sensiblement égales à :

- eau de mer : 0,1 à 0,5 ng.l $^{-1}$ (insecticides), 1 ng.l $^{-1}$ (PCB);
- sédiment : 0,05 à 0,1 ng.g $^{-1}$ (insecticides), 0,5 ng.g $^{-1}$ (PCB);
- organismes marins : 5 à 10 ng.g $^{-1}$ (insecticides), 50 ng.g $^{-1}$ (PCB).

EAU DE MER

Trois types d'hydrocarbures halogénés sont identifiés dans l'eau de mer : les isomères α HCH et γ HCH (lindane), le DDT et ses deux principaux métabolites (DDD, DDE) et les PCB. L'aldrine, l'heptachlore et la dieldrine ne sont pas détectés. Au total, 96 analyses ont été réalisées entre mars 1977 et septembre 1978 (Marchand *et al.*, 1979).

Les concentrations moyennes d'insecticides chlorés et de PCB dans l'eau de mer de surface (tab. 1) sont relativement homogènes sur l'ensemble de la rade de Brest, surtout en ce qui concerne les isomères α et γ de l'HCH (de 0,7 à 3,7 ng.l $^{-1}$). La plus grande dispersion des résultats est observée pour les composés du DDT (de < 0,1 à 26,1 ng.l $^{-1}$). A l'exception d'une valeur de 118 ng.l $^{-1}$, peut-être liée à une contamination accidentelle au moment de l'analyse, les concentrations de PCB

Tableau 1

Concentrations moyennes des hydrocarbures halogénés dans l'eau de mer de surface de la rade de Brest (teneurs exprimées en ng/l).

Mean concentrations of halogenated hydrocarbons in surface sea water in the Rade de Brest (ng/l).

	Nombre d'analyses	α HCH	γ HCH	Σ DDT	PCB
Concentrations moyennes sur l'ensemble de la rade de Brest (mars 1977-septembre 1978)	96	1,4 \pm 0,4 (26%)	1,5 \pm 0,5 (35%)	1,5 \pm 2,8 (193%)	4,3 \pm 2,8 (64%)
Concentrations moyennes selon les zones de la rade de Brest :					
— Zone extérieure	26	1,25 \pm 0,4	1,25 \pm 0,4	1,45 \pm 1,2	3,9 \pm 2,2
— Zone du port de Brest	23	1,4 \pm 0,4	1,8 \pm 0,8	2,5 \pm 5,4	5,3 \pm 4,1
— Zone nord (Elorn)	3	1,5 \pm 0,1	1,7 \pm 0,4	0,4	3,4 \pm 0,1
— Zone centrale	18	1,55 \pm 0,45	1,55 \pm 0,4	1,2 \pm 1,3	3,9 \pm 2,8
— Zone sud-est (Aulne)	20	1,55 \pm 0,45	1,55 \pm 0,45	1,0 \pm 1,0	3,8 \pm 1,9

Tableau 2

Concentrations de PCB, de DDT et de lindane dans l'eau de mer de surface (teneurs exprimées en ng/l).
 PCB, DDT and lindane concentrations in surface sea water (ng/l).

Lieu	Date	PCB	ΣDDT	Lindane	Références
<i>Zones océaniques</i>					
Atlantique Nord	1971	25 (5-40)	—	—	Olney et Wade (1972)
Atlantique Nord	1972	35 (< 1-150)	< 1	—	Harvey <i>et al.</i> (1973)
Atlantique Nord	1973-1975	2,9 (0,4-8)	< 0,1	—	Harvey et Steinhauer (1976 a)
Atlantique Sud	1973-1975	1,0 (0,3-3,7)	< 0,1-0,4	—	Harvey et Steinhauer (1976 a)
Atlantique, Golfe du Mexique	—	1,6 (0,1-3,1)	0,35 (0,01-0,6)	—	Giam <i>et al.</i> (1978)
Atlantique Nord	—	0,16 (0,02-0,20)	n.d.	—	Giam <i>et al.</i> (1978)
Pacifique Nord	1972	5	< 0,03	—	Williams et Robertson (1975)
<i>Mers intérieures et zones côtières</i>					
USA, baie de New-York	1971	120-270	—	—	Olney et Wade (1972)
USA, Rhode Island, Narragansett Bay	1971	50-150	—	—	Duce <i>et al.</i> (1972)
USA, Californie	1971	11-50	12-15	—	Williams et Robertson (1975)
USA, Californie	1970	—	2-6	—	Cox (1971)
USA, Californie	1973	0,36 (0,27-0,49)	0,65 (0,34-1,43)	—	Young <i>et al.</i> (1975)
USA, Californie, au large	1973	3,6	0,5	—	Pavlou <i>et al.</i> (1974)
USA, Californie, à la côte	1973	5,4	0,9	—	Pavlou <i>et al.</i> (1974)
USA Californie, Golfe de Santa Catalina	1974	6,7 (2,3-10,3)	0,8 (0,2-1,8)	—	Scura et McClure (1975)
USA, Californie, ports	1974	20 (10-36)	2,7 (0,6-6,5)	—	Scura et McClure (1975)
USA, Puget Sound	1973-1977	3 (± 22)-22 (± 13)	—	—	Pavlou et Dexter (1979)
Méditerranée, au large	1975	2,0 (< 0,2-8,6)	—	—	Elder et Villeneuve (1977)
Méditerranée, au large	1977-1979	0,7 (0,1-2,5)	—	—	Villeneuve <i>et al.</i> (1981)
Méditerranée, Marseille	1971	130 (100-210)	110 (80-180)	40-90	Raybaud (1972)
Méditerranée, côte française	1974-1975	13 (1,5-38)	—	—	Elder (1976)
La Manche	1974	0,20 (0,15-0,30)	0,01 (< 0,01-0,03)	—	Dawson et Riley (1977)
Mer d'Irlande	1974	0,50 (< 0,2-1,5)	0,10 (< 0,01-0,25)	—	Dawson et Riley (1977)
Écosse, estuaire de la Clyde	1970	< 10	—	—	Holden (1970)
Écosse, estuaire de la Clyde	1973	8	—	—	Holden (1970)
Écosse, estuaire de la Tay	1973	5-20	—	—	Holden (1973)
Écosse, estuaire de la Clyde	1974	0,36 (0,15-0,70)	0,03 (0,02-0,05)	—	Dawson et Riley (1977)
Écosse, eaux côtières et Mer du Nord	1974	0,26 (< 0,15-0,52)	0,01 (< 0,01-0,04)	—	Dawson et Riley (1977)
Hollande, Mer du Nord	1976	0,7-8,1	—	1,0-9,9	Duinker et Hillebrand (1979)
Baltique, baie de Hanô	1975	0,3-3,0	0,5-5,2	—	Osterroht (1977)
Baltique, baie allemande	1974	3,1 ± 0,9	1,9 ± 0,6	—	Stadler et Ziebarth (1975)
Baltique, baie allemande	1975	2,1 ± 0,9	0,64 ± 0,15	5,6 ± 4,7	Stadler (1977)
Baltique occidentale	1974	2,9 ± 1,2	2,6 ± 0,6	—	Stadler et Ziebarth (1976)
Baltique occidentale	1975	1,1 ± 0,8	0,4 ± 0,1	5,0 ± 1,0	Stadler (1977)
Baltique occidentale	1976	7,2 ± 4,1	—	3,4 ± 0,8	Gaul et Ziebarth (1980)
Baltique occidentale	1978	5,7 ± 2,5	—	2,9 ± 0,8	Gaul et Ziebarth (1980)
Atlantique, rade de Brest	1977-1978	4,3 ± 2,8	1,5 ± 2,8	1,4 ± 0,4	Présente étude

varient de 1,2 à 19,7 ng.l⁻¹. Seule la zone du port de Brest présente de façon significative des légers maxima pour ce qui concerne les teneurs en lindane, DDT et PCB. Ceci confirme la part généralement importante des rejets des résidus organochlorés dans le milieu marin, liés aux zones à caractère urbain et industriel. Le tableau 2 donne à titre comparatif les concentrations résiduelles de DDT, de lindane et de PCB observées sur d'autres sites géographiques. Nous avons séparé les teneurs mesurées dans les eaux océaniques de celles mesurées dans les eaux côtières. La comparaison des valeurs reportées doit être faite avec une certaine prudence, car les auteurs n'indiquent pas toujours clairement si les analyses des organochlorés concernent le total ou la fraction dissoute dans l'eau de mer. A titre d'exemple, la méthode de pré-concentration des organochlorés sur résine Amberlite XAD-2 (Harvey *et al.*, 1973; Harvey, Steinhauer, 1976 a; Elder, 1976; Elder, Villeneuve, 1977; Dawson, Riley, 1977) permet d'analyser uniquement la fraction résiduelle dissoute. En eau du large, les PCB associés à la matière en suspension représentent moins de 10% de la concentration totale, alors qu'en zones côtières et d'estuaires, généralement plus turbides, la fraction particulière adsorbée peut être supérieure à 90%.

La très nette décroissance des teneurs en PCB, tant dans les eaux du large que dans les eaux côtières, depuis

1973, est en relation directe avec les réglementations intervenues aux États-Unis depuis 1970, et au Japon et dans la plupart des pays européens depuis 1972-1973, pour limiter et contrôler les rejets de PCB dans l'environnement. En comparaison avec les données les plus récentes, il apparaît que les niveaux résiduels de PCB sont comparables à ceux observés dans les zones côtières de la Baltique (Stadler, Ziebarth, 1975; 1976; Gaul, Ziebarth, 1980), de la Californie (Pavlou *et al.*, 1974; Scura, McClure, 1975), et sont par contre plus faibles que ceux relevés dans certains estuaires d'Écosse (Holden, 1973) et sur le littoral français méditerranéen (Elder, 1976). Les teneurs en DDT et en lindane sont faibles. On peut observer que peu d'auteurs relèvent dans leurs travaux les teneurs en lindane; les seules comparaisons possibles ont été trouvées dans les études sur la Mer Baltique et sur le littoral hollandais de la Mer du Nord.

EAUX DE PLUIE

Les analyses des eaux de pluie récoltées périodiquement entre avril 1977 et février 1978 confirment l'influence des apports atmosphériques. Les trois types d'hydrocarbures halogénés observés dans l'eau de mer sont identifiés dans les eaux de pluie. Les concentrations

Tableau 3

Concentrations des résidus organochlorés observés dans les eaux de pluie (teneurs exprimées en ng/l).

Chlorinated residue concentrations in rain water (ng/l).

Lieu	Date	α HCH	γ HCH	ΣDDT	PCB	Références
Canada, New Brunswick et Québec	1967-1968			< 10-1 330		Pearce <i>et al.</i> (1978)
USA, Ohio	1965		25 (6-50)	187 (70-370)		Cohen et Pinkerton (1966)
USA, Floride	1970			1 000		Yates <i>et al.</i> (1970)
USA, Hawaï	1970-1971		5 (1-19)	3 (1-13)		Bevenue <i>et al.</i> (1972)
USA, Californie	1972				10	McClure (1976)
USA, New-York	1974			n.d.-2		Peakall (1976)
Japon, Tokyo	1968-1969	197 (45-830)	125 (29-398)			Masahiro et Takahisa (1975)
Grande-Bretagne	1964-1965		75 (12-164)	2-3 (pp'DDT)		Wheatley et Hardman (1965)
Grande-Bretagne	1966-1967	23,5 (5-35)	60 (32-121)	79 (30-115)	déTECTÉ	Tarrant et Tatton (1968)
Grande-Bretagne	1970				50-100	Anonyme (1970)
Allemagne	1970-1972			1-100		Weil <i>et al.</i> (1973)
Grande-Bretagne	1975-1976	Total HCH :	10,4 (5,7-17)	7,8 (0,3-44)	14,9 (1,8-74)	Wells et Johnstone (1978)
Canada, Grands Lacs	1976	11,7 ± 12,6	5,3 ± 3,9	3,3 ± 4,6	21 ± 30	Strachan et Huneault (1979)
France, rade de Brest	1977-1978	12,6 ± 4,6	16,6 ± 10,0	1,7 ± 0,6	8,3 ± 3,7	Présente étude

moyennes représentatives de sept séries d'analyses effectuées sont présentées dans le tableau 3, et comparées avec les teneurs mesurées sur d'autres sites géographiques. Les concentrations résiduelles relevées sur le site de la rade de Brest sont inférieures à celles mesurées sur d'autres sites, de 1964 à 1970. Cette diminution systématique depuis les années 1970, déjà observée pour l'eau de mer, reflète les effets des diverses réglementations qui interdisent ou limitent l'utilisation des insecticides chlorés et des PCB. Les concentrations résiduelles observées sur la rade de Brest sont du même ordre de grandeur que celles mesurées en Grande-Bretagne (Wells, Johnstone, 1978), en Californie (McClure, 1976) et dans la région des grands lacs canadiens (Strachan, Huneault, 1979). Le DDT est largement représenté par rapport à ses deux principaux métabolites (DDE, DDD), en moyenne 68%, ce qui impliquerait une origine « fraîche » de cet insecticide, opposée à une remise en circulation d'un résidu déjà exposé dans l'environnement et par conséquent dégradé. L'interdiction du DDT dans les pays européens semblerait indiquer l'éventualité d'un transport atmosphérique sur de grandes distances. Cette prépondérance du DDT sur ses deux produits de dégradation est également observée au Canada par Strachan et Huneault (1979) et sur la côte est de la Grande-Bretagne (76%) par Holden (1976).

Ces observations confirment l'influence de l'atmosphère comme source d'apport des résidus organochlorés vers le milieu marin. Les teneurs mesurées dans l'atmosphère de la côte vers le large dans le bassin atlantique nord-ouest varient schématiquement de 2 à 0,05 ng/m³ pour les PCB et de 0,06 à < 0,0001 ng/m³ pour les composés du DDT (Bidleman *et al.*, 1976). Dans le Golfe du Mexique et dans l'Atlantique Nord, Giam *et al.* (1978) mesurent dans l'atmosphère des teneurs moyennes de 0,4 ng/m³ pour les PCB et de 0,04 à 0,006 ng/m³ pour les composés du DDT. Dans les eaux côtières britanniques, Dawson et Riley (1977) observent des concentrations de PCB dans l'atmosphère de < 0,2 à 0,5 ng/m³.

Trois mécanismes d'apport doivent être considérés pour évaluer le transfert des hydrocarbures halogénés vers le milieu marin : l'échange gazeux direct à l'interface air-eau, les retombées atmosphériques et le lavage de

l'atmosphère par les eaux de pluie. Les retombées sèches évaluées en Islande de 1970 à 1973 par Sodergren (1972) et Bengtson et Sodergren (1974) varient de 0 à 13 µg m⁻²/an pour les PCB. Sur la côte californienne (États-Unis), où les précipitations sont faibles, de l'ordre de 30 à 50 cm par an, les apports par retombées sèches sont plus importants que les apports par les eaux de pluie, en moyenne de 511 µg m⁻²/an pour le DDT (Young *et al.*, 1976). Pour les PCB, l'apport moyen est de 180 µg m⁻²/an par retombées de poussières sèches et de 5 µg m⁻²/an par les eaux de pluie (McClure, 1976).

Sur un site tel que la rade de Brest, les précipitations atmosphériques sont plus fortes, de l'ordre de 100 cm/an, et il est vraisemblable que ce mécanisme d'apport devienne plus important. Des études complémentaires seraient nécessaires pour préciser l'importance relative de ces deux mécanismes de transfert, ainsi que celui de l'échange direct gazeux air-eau. Toutefois, un premier essai, par calculs indirects, est donné par Bidleman *et al.* (1976), et Duce et Duursma (1977) pour évaluer le transfert des PCB de l'atmosphère vers le milieu océanique du bassin atlantique nord-ouest, où le taux de précipitation de 80 cm/an est du même ordre de grandeur que celui de la rade de Brest. Pour une teneur de base de 0,1 ng/m³ de PCB dans l'atmosphère et de 1,5 ng/l dans l'eau de mer, l'apport moyen de PCB dans l'eau de mer serait environ de 12 µg m⁻²/an, par l'intermédiaire de :

- échange direct gazeux air-eau : 6 µg m⁻²/an ;
- retombées sèches : 3 µg m⁻²/an ;
- eaux de pluie : 3 µg m⁻²/an.

Si nous comparons les apports moyens de PCB par les eaux de pluie et les teneurs dans l'eau de mer pour le bassin atlantique nord-ouest et la rade de Brest (tab. 4), nous observons un rapport constant entre les deux sites géographiques, ce qui semblerait indiquer que l'atmosphère représente une source d'apports de PCB dans l'eau de mer sur l'ensemble de la rade de Brest.

Le tableau 5 compare les retombées atmosphériques par l'intermédiaire des eaux de pluie sur le site de la rade de Brest et sur les eaux côtières britanniques de la Mer du Nord (Holden, 1976; Wells, Johnstone, 1978). On observe entre les deux régions une similitude sur les composés du DDT avec une forte proportion de DDT

Tableau 4

Comparaison des apports atmosphériques par eaux de pluie et des teneurs de PCB dans l'eau de mer entre les eaux océaniques du large (bassin atlantique nord-ouest) et la rade de Brest.

Comparison of PCB inputs from the atmosphere via rain water and PCB concentrations observed in sea water samples from the North-West Atlantic and the Rade de Brest.

	Apports moyens de PCB par les eaux de pluie ($\mu\text{g m}^{-2}/\text{an}$)	Concentration moyenne de PCB dans l'eau de mer (ng/l)
Bassin atlantique nord-ouest	3,0	1,5
Rade de Brest	$8,3 \pm 3,7$	$4,3 \pm 2,8$
Rapport rade de Brest/Atlantique	2,7	2,9

Tableau 5

Comparaison des apports atmosphériques moyens en hydrocarbures halogénés par l'intermédiaire des eaux de pluie sur la rade de Brest et en Mer du Nord, Grande-Bretagne (teneurs exprimées en $\mu\text{g m}^{-2}/\text{an}$).

Comparison of average halogenated hydrocarbon inputs from the atmosphere via rain water in the Rade de Brest and the North Sea, Great Britain ($\mu\text{g m}^{-2}/\text{year}$).

	α HCH	γ HCH	Σ DDT	PCB	Références
Rade de Brest	$12,6 \pm 4,6$	$16,6 \pm 10,0$	$1,7 \pm 0,6$	$8,3 \pm 3,7$	Présente étude
Mer du Nord (Grande-Bretagne)	1,4	1,8	2,1	3,5	Holden (1976)
	Total HCH : 3,61		2,5	3,3	Wells et Johnstone (1978)

par rapport aux deux métabolites (68 et 76%). Par contre, sur la rade de Brest, les apports en PCB sont environ deux fois plus importants, et ceux en isomères α et γ HCH dix fois plus importants.

SÉDIMENTS

Si les apports atmosphériques constituent une source de contamination non négligeable sur l'ensemble de la rade de Brest, l'analyse résiduelle des sédiments permet de mettre en évidence d'autres sources de pollution et de préciser partiellement le comportement des organochlorés introduits dans un milieu estuarien. Deux types de sédiments sont analysés : ceux prélevés en zone subtidale et ceux prélevés en zone intertidale (fig.). La plupart des sédiments subtidaux prélevés sont représentés par des vases siliceuses à caractère plus ou moins sableux. Les teneurs en carbone organique varient de 0,7 à 2,4% (moyenne : $1,08 \pm 0,66$). Quelques sédiments sableux ont été également prélevés, à l'extérieur de la rade, face au port de Brest et au débouché de l'Elorn, et leur taux de carbone organique est plus faible, de 0,10 à 0,50% (moyenne : $0,29 \pm 0,15$). Les résultats obtenus (tab. 6) montrent d'une part la présence dans les sédiments des PCB et des composés du DDT, d'autre part l'absence des isomères de l'HCH.

Les teneurs observées permettent de cerner les sources d'apports polluants et de dresser une répartition zonale de la rade de Brest selon un gradient de concentration (tab. 7). Dans les sédiments subtidaux, les plus fortes concentrations de PCB (183 ppb en moyenne) et de DDT (11 ppb) sont rencontrées dans la partie nord de la rade, plus précisément sur une ceinture allant du port de commerce jusqu'à l'embouchure de l'Elorn; ceci reflète les apports liés aux rejets urbains et aux activités industrielles et portuaires, qui sont essentiellement localisés dans ce secteur. Une tache de dispersion de ces apports se localise plus au Sud et s'explique par les

courants portants des environs du port de commerce vers la pointe de l'Armorique, ainsi que par l'influence de l'Elorn; une décroissance d'un facteur 4 à 5 est observée pour les PCB (34 ppb) et pour les composés du DDT (2,6 ppb). Des teneurs non négligeables de PCB (33 ppb) sont relevées autour des installations navales de l'Île Longue. La baie de Daoulas constitue une zone d'apports pour les PCB (17 ppb) et les

Tableau 6

Concentrations des résidus organochlorés dans les sédiments bruts de la rade de Brest (teneurs exprimées en ng/g, poids sec).

Chlorinated residue concentrations in sediments in the Rade de Brest (ng/g, dry weight).

N° de station	CO (%)	DDE	DDD	DDT	Σ DDT	PCB (DP-6)
2	0,10	<0,1	<0,1	<0,1	<0,1	0,5
3	0,50	<0,1	<0,1	<0,1	<0,1	0,4
4	0,21	0,1	<0,1	0,1	0,2	4,7
6	0,73	0,2	0,2	<0,1	0,4	9,9
7	0,36	1,1	<0,1	2,1	3,2	33,6
8		3,4	0,7	2,2	6,3	45,6
9	1,16	4,5	0,5	4,7	9,7	181,0
10		9,3	0,3	8,0	17,6	184,6
11	1,17	0,5	<0,1	0,3	0,8	26,5
12	0,29	0,8	2,6	2,9	6,3	184,1
13	1,31	0,3	<0,1	0,1	0,4	30,5
14	1,89	<0,1	0,2	0,6	0,8	12,3
15	1,07	0,3	0,5	0,2	1,0	68,3
16		0,3	<0,1	<0,1	0,3	17,9
17	0,87	0,2	0,2	0,3	0,7	2,8
18	0,86	<0,1	0,2	0,2	0,4	6,4
19	1,06	0,3	<0,1	0,2	0,5	14,6
20	1,95	0,2	0,2	0,2	0,6	8,0
21		0,2	0,4	0,2	0,8	1,7
22	1,03	0,7	1,1	3,1	4,9	9,6
23		1,3	<0,1	0,4	1,7	25,2
24	1,40	1,4	1,1	0,2	2,7	6,7
25	2,37	0,4	<0,1	0,8	2,3	1,4
26	2,23	0,2	<0,1	1,5	2,4	7,3
S ₂		4,4	<0,1	4,0	8,4	10,2
S ₃		13,7	11,0	27,5	52,2	1020
S ₄						2100
S ₅		0,8	2,1	2,4	5,3	90,9
S ₇						4,3
S ₈		5,9	<0,1	3,9	9,8	3,3
S ₉		5,6	<0,1	2,4	8,0	47,1

Tableau 7

Concentrations de PCB et de DDT dans les sédiments (ng/g poids sec). Zonation de la rade de Brest.

PCB and DDT concentrations in sediments in the Rade de Brest, by zone and type of input (ng/g, dry weight).

Zones	Caractéristiques	Stations	PCB	DDT
Zone nord côtière	Apports polluants urbains et industriels (Brest-Elorn)	Intertidal : S3, S4 Subtidal : 9, 10, 12	1 020-2 100 183 ± 2	52 11 ± 6
Zone nord, Elorn-Pointe de l'Armorique	Tache de dispersion des polluants	7, 8, 11, 13	34 ± 8	2,6 ± 2,7
Zone sud-ouest, centrée sur l'Île Longue	Apports polluants (installations navales)	15, 16, 19	33 ± 30	0,6 ± 0,4
Baie de Daoulas	Zone d'apports	22, 23	17 ± 11	3,3 ± 2,2
Zone sud-est, Aulne	Apports fluviaux (Aulne)	24, 25, 26	5,1 ± 3,2	2,4 ± 0,2
Zone centrale de la rade		4, 6, 14, 17, 18, 20, 21	6,5 ± 3,8	0,5 ± 0,2
Zone extérieure		2, 3	0,45 ± 0,1	< 0,1

composés du DDT (3,3 ppb). L'influence de l'Aulne ne reflète que des apports significatifs en DDT (2,4 ppb). La zone centrale de la rade semble peu soumise aux apports polluants définis précédemment ; les teneurs en PCB (6,5 ppb) et en DDT (0,5 ppb) y sont beaucoup plus faibles. Le secteur de référence est toutefois constitué par la zone extérieure de la rade où les concentrations résiduelles sont en moyenne de 0,4 ppb pour les PCB et < 0,1 ppb pour le DDT.

Le tableau 8 permet de comparer les teneurs observées dans la rade de Brest avec celles mesurées sur d'autres sites géographiques. Les taux résiduels relevés dans les sédiments témoignent de la contamination du milieu marin. Ainsi, Duke *et al.* (1970) trouvent dans les sédiments amont de la baie d'Escambia (États-Unis) des teneurs de 486 ppm de PCB, à la suite d'un rejet accidentel de PCB à partir d'une installation industrielle. Young *et al.* (1977) montrent que les fonds marins face

Tableau 8

Résidus de PCB et de DDT dans les sédiments marins (teneurs exprimées en ng/g, poids sec).

PCB and DDT residues in sea sediments (ng/g, dry weight).

Site géographique	Profondeur	PCB	ΣDDT	Références
<i>Zones océaniques :</i>				
— Atlantique Nord	> 1 000 m	1,4 (0,0-5,0)	—	Harvey et Steinhauer (1976 b)
— Golfe de Mexico	Subtidal	0,2	0,23 (0,1-0,5)	Giam <i>et al.</i> (1978)
<i>Mers et zones côtières :</i>				
<i>Pacifique</i>				
— Santa Monica Bay (USA)	100-400 m	120-2 000	—	Young <i>et al.</i> (1975)
— Orange County (USA)	20-200 m	20-300	—	Young <i>et al.</i> (1975)
— Palos Verdes (USA)	20-135 m	380-7 420	3,9.10 ³ -129.10 ³	Young <i>et al.</i> (1977)
— Puget Sound (USA)	Subtidal	8-637	—	Pavlou et Dexter (1979)
— Osaka Bay (Japon)	Subtidal	40-2 000	—	Hiraizumi <i>et al.</i> (1975)
— Harimanada Bay (Japon)	Subtidal	50-400	—	Hiraizumi <i>et al.</i> (1975)
<i>Atlantique</i>				
— Port de New Bedford (USA)	3 m	8 400	—	Harvey et Steinhauer (1976 b)
— Escambia Bay, Floride (USA)	Subtidal	< 30-486.10 ³	—	Duke <i>et al.</i> (1970)
— New York Bight (USA)	Subtidal	0,5-2 200	—	West et Hatcher (1980)
— Golfe de Mexico (USA)	Subtidal	1,97 (0,2-6)	1,3 (0,2-4,0)	Giam <i>et al.</i> (1978)
— Delta du Mississippi (USA)	Subtidal	18,7 (0,2-35)	4,2 (0,2-9,3)	Giam <i>et al.</i> (1978)
— Haut estuaire du St-Laurent (Canada)	Subtidal	—	nd-34,4	Canonne et Mamarbachi (1975)
<i>Mer d'Irlande</i>				
— Estuaire de la Clyde	Subtidal	30-2 890	—	Halcrow <i>et al.</i> (1974)
— Zone côtière	Subtidal	< 2-16	nd-1,8	Dawson et Riley (1977)
<i>Mer du Nord</i>				
— Estuaire de Gota Alr (Suède)	Subtidal	40-160	—	Olausson (1972)
— Ile de Seiki (Finlande)	Subtidal	10 (< 10-20)	—	Linko <i>et al.</i> (1974)
— Baie de Kiel (Allemagne)	Subtidal	8,4-10,8	2,0-2,4	Osterroht et Smetacek (1980)
<i>Méditerranée</i>				
— Au large	40-4 000 m	3,5 (0,8-9,0)	—	Elder <i>et al.</i> (1976)
— Entre Toulon et la Corse	Subtidal	10 (1,5-32,5)	1,9 (0,5-4,5)	Arnoux <i>et al.</i> (1981 b)
— Golfe de Sarokinos (Grèce)	Subtidal	1,3-775	7,1-1 893	Dexter et Pavlou (1973)
<i>Littoral français</i>				
— Mer du Nord, Dunkerque	Subtidal	134 (15-325)	< 0,1	Marchand (1982)
— Manche, estuaire de la Seine	—	15 (4-26)	< 0,1-0,4	Marchand (1982)
— Manche, baie de Seine	—	2,5 (0,9-3,8)	< 0,1	Marchand (1982)
— Atlantique, estuaire de la Loire (amont)	—	20 (17-24)	< 0,5-1	Marchand (1982)
— Atlantique, estuaire de la Loire (aval)	—	< 1-7	< 0,5	Marchand (1982)
— Méditerranée, littoral	Intertidal	0,8-29	0,04-17	Marchand <i>et al.</i> (1974)
— Méditerranée, Nice	100 m	2,9-1 165	0,4-31,5	Marchand <i>et al.</i> (1974)
— Méditerranée, Golfe de Fos	Subtidal	43 (0,2-246)	16 (< 0,5-200)	Marchand (1982)
— Méditerranée, émissaire urbain de Cortiou (débouché)	Subtidal	2 500-15 000	100-1 500	Arnoux <i>et al.</i> (1981 a)
— Méditerranée, émissaire urbain de Cortiou (aval)	—	30-400	10-50	Arnoux <i>et al.</i> (1981 a)
— Atlantique, rade de Brest	Subtidal	0,4-185	< 0,1-17,6	Présente étude
— Atlantique, rade de Brest	Intertidal	3,3-2 100	8,0-52,2	Présente étude

à Los Angeles ont été gravement pollués par les rejets d'une usine productrice de DDT, sur une période de 20 ans; les teneurs observées dépassent 190 ppm de DDT. Au débouché de l'émissaire urbain de la ville de Marseille à Cortiou, Arnoux *et al.* (1981 a) relèvent des teneurs dans les sédiments de 100 à 1 500 ppb de DDT et de 2 500 à 15 000 ppb de PCB. Les concentrations mesurées dans la rade de Brest ne témoignent pas de telles formes de pollutions aiguës, accidentelles ou chroniques. Les teneurs sont assez comparables à celles observées dans d'autres zones côtières, estuaires, golfes et baies, en France et à l'étranger, soumises à des pollutions chroniques. Les PCB sont généralement plus représentés dans de telles zones et témoignent d'apports toujours existants vers le milieu. Leur distribution dans les sédiments de la rade de Brest illustre une observation générale, celle d'un gradient de concentration très marqué allant du débouché des émissaires (> 1 ppm) ou à proximité immédiate des sources d'apports polluants (50-400 ppb) vers l'aval (5-40 ppb; Marchand, 1982). La tache de dispersion des PCB et du DDT témoigne donc de la forte adsorption de ces composés sur la matière en suspension et l'importance des processus de sédimentation qui se produisent au contact des eaux marines sur la distribution de ce type de micropolluants organiques au niveau de l'environnement côtier.

Coefficients de distribution entre l'eau de mer et la matière en suspension

Pour préciser la capacité d'adsorption des résidus organochlorés sur la matière particulaire, une étude expérimentale était effectuée pour définir les coefficients de distribution entre un sédiment marin vaseux typique de la rade de Brest, tamisé à 40 µm, mis en suspension (100 mg/l), et l'eau de mer, après un temps de contact par agitation de deux jours (Poulichet, 1977). Les résultats sont donnés dans le tableau 9.

Le coefficient de distribution mesuré pour le DDT ($K = 51\,000$) est en bon accord avec celui trouvé par Pierce *et al.* (1974; $K = 48\,000$). Pavlou et Dexter (1979) calculent le coefficient de distribution des PCB entre la matière en suspension et l'eau de mer du Puget Sound (États-Unis) selon le degré de chloration des PCB (de

3 à 7); les valeurs mesurées varient entre 43 600 et 96 700. En Mer d'Irlande, Dawson et Riley (1977) trouvent pour les PCB un facteur de concentration de 80 000 entre la matière en suspension et l'eau de mer. Le coefficient de partage pour les PCB tri- et tétra-substitués est évalué à 50 000 par Pavlou et Dexter (1979). Ces données sont du même ordre de grandeur que notre estimation semi-quantitative pour le PCB (DP-5) : > 30 000.

Ces résultats expérimentaux montrent donc la forte capacité d'adsorption du DDT et des PCB, et la faible affinité du lindane vis-à-vis de la matière en suspension. Ils confirment d'une part la présence des composés du DDT et des PCB dans les sédiments, essentiellement au débouché des émissaires urbains et industriels, et à l'embouchure des rivières, et l'absence du lindane dans les sédiments; d'autre part l'influence des mécanismes de sédimentation en zones côtières sur la distribution de ce type de polluants organiques.

L'hydrodynamisme de la colonne d'eau joue également un rôle essentiel dans la distribution spatiale des résidus organochlorés, en premier lieu pour les isomères HCH faiblement adsorbés sur la matière en suspension, mais également pour les résidus de PCB et de DDT. En effet, si nous prenons un coefficient de partage moyen de 50 000 pour les PCB entre la matière en suspension et l'eau de mer (Pavlou, Dexter, 1979), une concentration moyenne en PCB dans l'eau de mer brute de 4,3 ng/l et une teneur en matière en suspension de l'ordre de 2 mg/l (calculées à partir des données RNO sur la rade de Brest), la concentration des PCB dissous dans l'eau sera de 3,9 ng/l, et adsorbés sur la matière en suspension de 0,4 ng/l (soit une concentration de 200 ppb sur le matériel particulaire). Ce calcul montre que les résidus de PCB en zones côtières peu turbides seront principalement présents dans la masse d'eau et non dans le matériel particulaire. Ce concept, développé par Pavlou et Dexter (1979), montre que la distribution spatiale des PCB et du DDT est largement influencée par le régime hydrodynamique, la charge particulaire de la masse d'eau et les mécanismes de sédimentation.

Nous ignorons les taux de sédimentation de la matière en suspension dans la rade de Brest, et il n'est donc pas possible d'évaluer quantitativement le transfert vertical des résidus de PCB et de DDT vers le milieu sédimentaire. Dans la baie de Kiel (Allemagne), Osterroht et Smetacek (1980) ont évalué un apport annuel de PCB vers la phase sédimentaire de 24 à 112 µg/m²/an, soit 1/3 à 2 fois la quantité de PCB présente dans la colonne d'eau. Un taux de sédimentation des PCB analogue, de 60 µg/m²/an, est trouvé par Eisenreich *et al.* (1980) dans le Lac Supérieur au Canada.

MOULES

La présence des hydrocarbures halogénés dans la rade de Brest a été étudiée en utilisant la moule (*Mytilus edulis*) comme indicateur biologique de pollution, selon l'idée générale du « Mussel Watch » de Goldberg (1975)

Tableau 9

Coefficients de distribution des résidus organochlorés entre un sédiment marin en suspension et l'eau de mer.

Distribution coefficients between sediment and sea water for various chlorinated residues.

Résidu organochloré	Coefficient de distribution K
Lindane (γHCH)	110
Heptachlore	620
Aldrine	280
Dieldrine	1 550
DDT	51 000
PCB (DP-4)	10 500
PCB (DP-5)	> 30 000

$$K = \frac{\text{Concentration résiduelle dans le sédiment (ng/g)}}{\text{Concentration résiduelle dans l'eau de mer (ng/ml)}}$$

[NAS (National Academy of Sciences), 1980]. Ce travail (Cosson-Mannevy, 1979) a permis non seulement d'observer les niveaux résiduels dans le mollusque, mais de préciser les facteurs d'accumulation des résidus organochlorés identifiés par rapport aux teneurs observées dans l'eau de mer.

Niveaux résiduels observés

Le tableau 10 résume les teneurs mesurées dans les moules en différents points de la rade de Brest (fig.). Les concentrations observées varient de 4 à 78 ppb en lindane, de 76 à 955 ppb en DDT et métabolites et de 230 à 4260 ppb pour les PCB identifiés sous forme DP-5. Les PCB sont donc largement plus représentés dans ce site géographique. Les concentrations les plus élevées en PCB et en DDT sont observées dans les moules prélevées dans le port de Brest, et confirment l'importance des apports résiduels liés aux rejets urbains

Tableau 10
Concentration des résidus organochlorés dans les moules (*Mytilus edulis*) de la rade de Brest (teneurs exprimées en ng/g poids sec).
Chlorinated residue concentration in mussels (Mytilus edulis) from the Rade de Brest (ng/g, dry weight).

Station	Code de station	Date (1977)	Lindane	ΣDDT	PCB
Pointe du Minou	M1	7 février	78	252	388
		7 mars	51	76	385
		23 mars	50	112	370
		4 avril	50	108	354
		18 avril	55	122	317
		23 mai	53	114	370
		3 août	7	795	270
		26 août	18	122	232
		19 sept.	17	234	288
		15 nov.	58	292	445
Arsenal de Brest	M2	24 janvier	11	793	1436
		4 mars	49	267	1288
		1 août	71	955	4260
		15 octobre	91	513	2989
Lanvéoc	M3	24 janvier	4	248	345
Le Fret	M4	1 août	18	545	515
		15 octobre	4	553	337
Pointe des Espagnols	M5	24 janvier	31	519	297
		4 mars	22	128	238
		1 août	17	283	230
		15 octobre	25	210	295

et industriels de la zone portuaire, importance déjà confirmée par les analyses d'eau de mer et de sédiments. Les teneurs les plus faibles sont mesurées à la limite ouest de la rade (pointe des Espagnols) et à la sortie (pointe du Minou).

Le tableau 11 résume quelques teneurs en organochlorés observées dans les moules, sur différents sites géographiques. Dans la rade de Brest, les teneurs les plus élevées en PCB (1 400 à 4 200 ppb) sont observées dans le port de Brest, et sont analogues à celles que signalent Marchand *et al.* (1976) en Méditerranée dans les zones portuaires de Toulon et Marseille. Goldberg *et al.* (1978) citent des valeurs aussi élevées dans les secteurs à haute activité industrielle des côtes Est et Ouest des États-Unis. Pour les autres stations de la rade de Brest, les concentrations en PCB dans la moule ne dépassent pas 400 ppb, et sont du même ordre de grandeur que celles observées par Cowan (1978) sur les côtes écossaises. Des niveaux de concentrations plus faibles sont relevés par Riley et Whaby (1977) dans la baie de Liverpool (100-240 ppb), et Goldberg *et al.* (1978) estiment que des teneurs inférieures à 50 ppb caractérisent des secteurs non pollués. Les concentrations en DDT et métabolites varient de 76 à 995 ppb et en moyenne sont similaires aux valeurs citées par Alzieu *et al.* (1979) et Marchand *et al.* (1979) sur le littoral français. Elles sont très nettement supérieures aux niveaux résiduels observés sur la côte Est des États-Unis (Goldberg *et al.*, 1978). Les plus fortes teneurs sont relevées également dans la zone portuaire de Brest. Enfin, les concentrations en lindane dans la rade de Brest (7 à 20 ppb) sont analogues à celles relevées par Cowan (1978) en Écosse. En définitive, les niveaux résiduels en PCB et en DDT observés dans la rade de Brest, principalement dans le secteur portuaire, témoignent d'apports polluants non négligeables.

Facteurs d'accumulation observés

Les facteurs d'accumulation chez *Mytilus edulis* par rapport à l'eau de mer ont pu être estimés pour chaque zone de prélèvement dans la rade de Brest (Cosson-Mannevy, Marchand, 1982). Pour les PCB, ils varient de 36 000 à 487 000, en DDT total de 22 700 à 550 500

Tableau 11
Résidus organochlorés dans la moule (*Mytilus sp.*; teneurs exprimées en ng/g poids sec).
Chlorinated residues in the mussel (Mytilus sp.; ng/g, dry weight).

Zone	Date	PCB	ΣDDT	Lindane	Références
<i>États-Unis</i>					
— Côte Ouest	1976	7-8 700	< 4-17 000	—	Goldberg <i>et al.</i> (1978)
— Côte Est	1976	15-635	4-30	—	Goldberg <i>et al.</i> (1978)
<i>Grande-Bretagne</i>					
— Écosse	1977	60-7 100	18-123	6-53	Cowan (1978)
— Baie de Liverpool	1974	100-240	10-15	—	Riley et Whaby (1977)
<i>Espagne</i>					
— Atlantique	1970	400-3 700	50-530	15-200	Franco-Soler (1972)
— Méditerranée	1970	2 000-9 000	100-3 250	20-215	Franco-Soler (1972)
<i>France</i>					
— Méditerranée	1973-1974	182-13 500	37-10 608	—	Marchand <i>et al.</i> (1976)
— Méditerranée	1976-1977	85-4 400	40-1 245	—	Alzieu <i>et al.</i> (1979)
— Manche	1976	335-5 120	35-330	—	Alzieu <i>et al.</i> (1979)
— Atlantique	1976	10-2 060	20-175	—	Alzieu <i>et al.</i> (1979)
— Rade de Brest	1977	230-4 260	76-955	4-78	Présente étude

et en lindane, plus faibles, de 2 600 à 60 000. Dans la série d'observations, nous nous trouvons en présence de quelques valeurs largement différentes de l'ensemble des autres. Ceci peut être explicable par le fait que les teneurs résiduelles dans l'eau de mer utilisées pour le calcul des facteurs d'accumulation sont des estimations moyennes relatives à la zone de prélèvement, et non des teneurs mesurées sur un échantillon d'eau prélevé exactement sur le site de prélèvement du mollusque. Nous avons utilisé le test statistique de Chauvenet qui rejette une valeur du facteur d'accumulation en PCB observée au port de Brest (487 000) et une valeur pour le DDT total (550 500) observée à la station du Fret. Les facteurs d'accumulation moyens sont donnés dans le tableau 12. Après rejets statistiques, les facteurs d'accumulation en PCB varient entre 36 000 et 133 000, la moyenne se situant à 78 000. Risebrough *et al.* (1976) enregistrent des facteurs d'accumulation très supérieurs (350 000 à 3.10^6) chez *Mytilus gallo-provincialis* (calculés sur la base du poids sec, en admettant un facteur de conversion égal à 5). En expérimentation, Vreeland (1974) étudie l'accumulation des PCB par l'huître *Crassostrea virginica* et trouve des facteurs d'accumulation (exprimés par rapport au poids sec) variant entre 6 000 et 240 000 selon le degré de chloration des PCB. Le facteur d'accumulation dans l'huître pour un mélange de PCB est évalué par l'auteur à 90 000, pour une teneur résiduelle dans l'eau de mer de 5 ng/l, chiffre sensiblement équivalent à celui que nous enregistrons en moyenne dans la rade de Brest. Pour les composés du DDT, les facteurs d'accumulation observés varient de 22 700 à 248 000, la moyenne calculée est estimée à 118 200 et est proche de celle avancée par Foehrenbach (1972) : 98 000. Risebrough *et al.* (1976) enregistrent des facteurs d'accumulation entre 200 000 et 3.10^6 , très supérieurs à nos observations dans la rade de Brest. Le bioaccumulation du lindane est plus faible dans la moule, en moyenne de 26 200, par rapport aux PCB et aux composés du DDT. Cette différence est vraisemblablement en relation avec la plus grande solubilité du lindane.

En conclusion, cette étude montre, en comparaison avec les résultats obtenus dans l'eau de mer, la qualité de « sentinelle » de la moule, comme espèce bioaccumulatrice pour la surveillance de la pollution du milieu marin côtier par les résidus organochlorés, sans toutefois négliger les variations de concentrations que l'on peut

observer dans ce mollusque en fonction de son état physiologique, plus particulièrement dans les zones soumises à de fortes pollutions.

VERS MARINS (POLYCHÈTES)

Si l'étude précédente a permis de cerner la relation existant entre la contamination de la moule, mollusque filtreur, et la contamination de l'eau de mer, il était également intéressant de rechercher les taux résiduels d'organochlorés chez des espèces benthiques en relation avec les niveaux résiduels observés dans les sédiments marins. Deux vers marins, *Arenicola marina* et *Cirriformia tentaculata*, animaux benthiques dépositivores, ont été étudiés (Morinière, 1978).

Taux résiduels observés

Les polychètes ont été prélevées entre octobre 1977 et avril 1978 sur différents sites à l'intérieur et à l'extérieur de la rade de Brest (fig.). Les niveaux résiduels mesurés sont présentés dans le tableau 13. La carte des teneurs en PCB (de 5 à 32 400 ppb) restitue les zones les plus contaminées de la rade. Les plus fortes concentrations correspondent aux sites du Moulin Blanc et du port de commerce de Brest, situés dans la zone nord de la rade, et à la plage de Rostellec proche des installations navales de l'Île Longue. La faible teneur observée à Porsmilin est en accord avec les faibles teneurs dans les sédiments extérieurs de la rade de Brest. Par contre, les concentrations mesurées dans les animaux prélevés dans l'anse du Caro ne sont pas représentatives de la contamination du sédiment. Pour apprécier les variations au niveau d'un même site, des animaux ont été prélevés sur une radiale de la plage de Sainte-Anne du Portzic (P2) à trois niveaux : haut de plage, niveau moyen et bas de plage. Les teneurs observées peuvent varier du simple au double, de 232 ppb en bas de plage à 550 ppb en haut de plage. Ceci confirme indirectement le fait que les teneurs en PCB dans les sédiments de la zone intertidale soient plus élevées que dans les sédiments prélevés en pleine eau. De même que les concentrations en DDT total dans les sédiments intertidaux varient peu, les teneurs observées dans les polychètes sont dans l'ensemble plutôt homogènes, variant de 57 à 328 ppb (moyenne : 150 ± 80 ppb). Le lindane, qui n'était pas détecté dans les sédiments, est identifié dans les arénicoles et les cirrifformes. Les concentrations mesurées varient de 0,1 à 11,4 ppb (moyenne : $3,9 \pm 3,3$ ppb).

Relations animaux-sédiments

Les teneurs en PCB mesurées dans les polychètes reflètent l'état de contamination du milieu sédimentaire. Les facteurs de concentration (calculés sur la base des poids secs des animaux et des sédiments) observés pour les PCB sont variables, de 1 à 220. Il n'a pas été possible dans le schéma de cette étude de cerner les causes de ces variations, qui peuvent être dues à la nature du substrat sédimentaire et à l'activité et à l'état physiologique des vers marins analysés. En excluant les

Tableau 12
Facteurs d'accumulation (par rapport au poids sec) observés dans la moule prélevée dans la rade de Brest.
Concentration factors (in relation to dry weight) observed in mussels from the Rade de Brest.

Facteurs d'accumulation	Lindane	Σ DDT	PCB
Minimum	2 600	22 700	36 000
Maximum	60 000	550 500	487 000
Nombre de valeurs rejetées par le test statistique de Chauvenet	0	1 (550 500)	1 (487 000)
Minimum	2 600	22 700	36 000
Maximum	60 000	248 000	133 000
Moyenne	26 200	118 200	78 000
$\pm \sigma$	$\pm 17 200$	$\pm 59 000$	$\pm 27 700$
(%)	(66%)	(50%)	(35%)

Tableau 13

Concentrations des résidus organochlorés dans les polychètes *Arenicola marina* et *Cirriformia tentaculata* (teneurs exprimées en ng/g poids sec).
Chlorinated residue concentrations in the polychaetes Arenicola marina and Cirriformia tentaculata (ng/g, dry weight).

Station	Code station	Espèce	% eau	Lindane	ΣDDT	PCB
Porsmilin	P1	<i>A. marina</i>	—	—	165	55
Ste Anne du Portzic	P2	<i>A. marina</i>	86	2,1	82	238
Ste Anne du Portzic (*)	P2					
— 1		<i>A. marina</i>	80	—	107	550
— 2		<i>A. marina</i>	80	—	57	374
— 3		<i>A. marina</i>	84	—	97	232
Port de commerce	P3	<i>C. tentaculata</i>	81	—	179	4480
Moulin Blanc	P4	<i>A. marina</i>	85	—	—	32414
Anse du Caro	P5	<i>A. marina</i>	78	5,8	187	85
		<i>C. tentaculata</i>	74	5,8	34	155
Anse de l'Auberlac'h	P6	<i>A. marina</i>	85	3,3	328	275
		<i>C. tentaculata</i>	90	2,6	212	345
Grève de Penalan	P7	<i>C. tentaculata</i>	86	1,7	166	222
Lanvéoc	P8	<i>A. marina</i>	87	2,1	103	179
		<i>C. tentaculata</i>	85	11,4	217	726
Grève de Rostellec	P9	<i>A. marina</i>	88	0,1	—	1551

(*) Prélèvement sur trois niveaux, distants l'un de l'autre de 80 m :

— 1 : haut de plage,

— 2 : niveau moyen,

— 3 : bas de plage, niveau de la basse mer.

valeurs très élevées de 220, calculées à la station de Lanvéoc (S8, P8) pour les cirriformes, le facteur de concentration moyen est de 24. Pour les composés du DDT, ce facteur de concentration varie de 3 à 35 (moyenne : 13) et les valeurs trouvées sont comparables à celles citées par Edwards (1976) pour le ver terrestre *Lumbricus terrestris*. Le lindane, qui n'est pas détecté dans le sédiment, est identifié dans les vers marins. On peut donc supposer que les polychètes sont également contaminées au contact de l'eau. Si l'on se réfère aux teneurs de lindane mesurées dans l'eau de mer de la rade de Brest ($1,5 \pm 0,5$ ng/l), on peut calculer un facteur de concentration moyen (poids sec) de 2900 par rapport à l'eau de mer. Cette observation pose le problème du mode réel de contamination des arénicoles et des cirriformes par les organochlorés. Il est vraisemblable que le sédiment ne soit pas le seul facteur de contamination. Amiard-Triquet (1975) montre que des arénicoles sont plus contaminées par le ^{60}Co et le ^{144}Ce par l'intermédiaire de l'eau que par ingestion de sédiment contaminé. Fowler *et al.* (1978) trouvent que l'accumulation des PCB chez le ver marin *Nereis diversicolor* est plus rapide à partir de l'eau qu'à partir du sédiment. Le fait que l'on observe dans nos échantillons biologiques des PCB intermédiaires aux profils DP-5 et DP-6 peut laisser supposer que l'eau (où l'on trouve essentiellement un profil PCB de type DP-5) intervient également dans la contamination des deux polychètes étudiées.

Les facteurs de concentration moyens, par rapport au sédiment, chez les arénicoles et les cirriformes, sur la base du poids frais des échantillons biologiques, sont égaux à $3,0 \pm 2,7$ pour les PCB et à $2,3 \pm 2,1$ pour les composés du DDT. La valeur moyenne pour les PCB est tout à fait analogue à celle donnée par Fowler *et al.* (1978) pour *Nereis diversicolor*, de 3 à 4, après deux mois de contamination expérimentale à partir du sédiment. Le facteur de concentration moyen par rapport à l'eau de mer pour le lindane est estimé à 500 ; il est similaire au facteur de concentration enregistré par

Fowler *et al.* (1978), et égal à 800, dans le cas d'une accumulation directe des PCB à partir de l'eau chez *Nereis diversicolor*.

CONCLUSIONS

Cette étude montre que les résidus organochlorés d'insecticides (lindane, composés du DDT) et de PCB sont présents, à des teneurs parfois non négligeables, dans des échantillons aussi divers que l'eau de pluie, l'eau de mer, les sédiments, les moules et les vers marins de la rade de Brest. L'ensemble de ces observations permet de dégager certains mécanismes d'apports, de transfert et de distribution des hydrocarbures halogénés dans un milieu marin côtier semi-fermé et d'évaluer les taux résiduels observés chez un mollusque filtreur (la moule, *Mytilus edulis*) et chez des animaux benthiques dépositivores (polychètes, *Arenicola marina* et *Cirriformia tentaculata*).

1) Les teneurs résiduelles observées dans l'eau de mer de surface non filtrée sur l'ensemble de la rade de Brest et sur 18 mois d'étude sont relativement homogènes : $1,4 \pm 0,4$ ng/l pour αHCH , $1,5 \pm 0,5$ ng/l pour γHCH (lindane), $1,5 \pm 2,8$ ng/l pour les composés du DDT et $4,3 \pm 2,8$ ng/l pour les PCB. Ceci représente un bilan massique résiduel dans l'eau de mer de la rade de Brest (volume moyen : $2,3 \cdot 10^9$ m³), en supposant une teneur uniforme dans la tranche d'eau, de 3 à 3,5 kg pour les isomères de l'HCH et les composés du DDT, et de 10 kg pour les PCB. De légers maxima sont observés pour le lindane, le DDT et les PCB face à la zone urbaine, industrielle et portuaire de la ville de Brest.

2) Les résidus organochlorés sont identifiés dans les eaux de pluie à des teneurs égales ou supérieures à celles observées dans l'eau de mer : $12,6 \pm 4,6$ ng/l pour αHCH , $16,6 \pm 10,0$ pour γHCH , $1,7 \pm 0,7$ ng/l pour les composés du DDT et $8,3 \pm 3,7$ ng/l pour les PCB. Ces observations confirment l'influence des apports atmosphériques comme source de transfert des résidus

organochlorés vers le milieu marin. Les précipitations annuelles sont de l'ordre de 100 cm/an, soit un apport moyen annuel par les eaux de pluie de 12,6 µg/m²/an pour αHCH, 16,6 µg/m²/an pour γHCH, 1,7 µg/m²/an pour les composés du DDT et 8,3 µg/m²/an pour les PCB. Ceci représente un apport massique moyen par les eaux de pluie sur l'ensemble de la rade de Brest (185 km²) de 2,3 kg pour αHCH, 3,1 kg pour γHCH, 0,3 kg pour DDT total et 1,5 kg pour les PCB. Les eaux de pluie ne représentent en fait qu'un mécanisme de transfert des organochlorés de l'atmosphère vers le milieu marin, les deux autres étant l'échange gazeux direct air/eau et les retombées de poussières atmosphériques. La comparaison que nous pouvons faire, concernant les PCB, entre les données du bassin de l'Atlantique nord-ouest et les données sur la rade de Brest, semble indiquer que l'atmosphère représente une des sources principales d'apports de PCB dans l'eau de mer sur l'ensemble de la rade. Ceci tendrait à expliquer les teneurs relativement homogènes que nous observons dans l'eau de mer.

3) L'analyse résiduelle dans les sédiments permet de mettre en évidence les autres sources de pollution et de préciser en partie le comportement des organochlorés introduits dans un milieu estuarien. Les résultats montrent la présence dans les sédiments des composés du DDT et des PCB et l'absence du lindane. Les plus fortes teneurs de DDT et des PCB sont localisées dans la zone nord de la rade, face au port de Brest (rejets industriels et urbains) et à l'embouchure de l'Elorn. Des teneurs non négligeables sont également observées aux alentours des installations navales de l'Île Longue dans la zone centrale de la rade. Les teneurs significatives en DDT dans la partie sud-est reflètent vraisemblablement l'influence des apports de l'Aulne et de la baie de Daoulas.

La faible capacité d'adsorption du lindane sur la matière en suspension (K = 110), par rapport au DDT (K = 51 000) et aux PCB (K > 30 000) explique l'absence de cet insecticide dans les sédiments analysés. Le temps de transit dans l'eau de mer des composés du DDT et des PCB, au débouché des émissaires et à l'embouchure des rivières, sera d'autant plus court que le taux de sédimentation des matières en suspension sera rapide. Ceci explique bien les gradients de concentration de DDT et de PCB observés dans les sédiments prélevés dans la zone nord de la rade, à proximité des sources de pollution terrestres.

4) Les plus fortes teneurs résiduelles de DDT et de PCB dans les moules sont mesurées dans les échantillons prélevés dans la zone portuaire de Brest, et confirment l'importance des apports résiduels liés aux rejets urbains et industriels de cette zone. La moule apparaît comme un bon indicateur biologique de la pollution côtière, notamment pour les composés du DDT et les PCB. Les facteurs d'accumulation, calculés par rapport aux

teneurs observées dans l'eau de mer, sur la base du poids sec du mollusque, sont estimés à 26 200 pour le lindane, 78 000 pour les PCB et 118 200 pour les composés du DDT.

5) La contamination du milieu sédimentaire influe sur les taux résiduels observés chez les polychètes. La présence du lindane (non détecté dans le sédiment) semble indiquer que le sédiment n'est pas le seul processus de contamination. Les facteurs de concentration, sur la base du poids humide des animaux, sont de 3,0 ± 2,7 pour les PCB et de 2,3 ± 2,1 pour les composés du DDT. Le facteur de concentration est égal environ à 500 pour le lindane, par rapport à l'eau de mer.

6) La gamme de concentrations mesurées est très variable selon le type d'échantillons analysés. Elle varie du ppt (partie par 10¹²) pour l'eau de mer au ppm (partie par 10⁶) pour certains échantillons biologiques. Les niveaux de concentrations moyens, avec leurs écarts-type, des trois types de résidus organochlorés (lindane, DDT total, PCB) mesurés dans les échantillons d'eau de pluie, d'eau de mer, de sédiment, de moules et de polychètes, sont résumés dans le tableau 14.

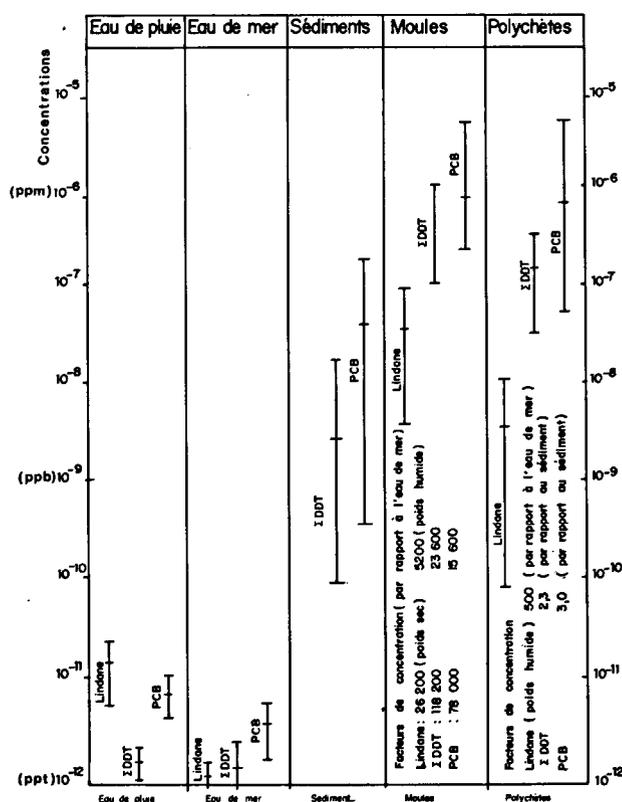


Tableau 14
 Concentration des résidus organochlorés observés dans les échantillons prélevés sur le site de la rade de Brest (teneurs exprimées par rapport au poids sec pour les sédiments et la matière vivante).
 Ranges of organochlorine residue levels observed in samples from the Rade de Brest, expressed in relation to dry weight where sediments and living matter are concerned.

RÉFÉRENCES

- Alzieu C., Thibaud Y., Michel P., 1979. Résultats des travaux de l'ISTPM en matière de surveillance des micropolluants dans la matière vivante, Institut Scientifique et Technique des Pêches Maritimes, I.P.M. 3 Pollutions, 22 janvier 1979.
- Amiard-Triquet C., 1975. Étude du transfert des radionucléides entre le milieu sédimentaire et les invertébrés qui y vivent, *Thèse Doc. Sci., Univ. Nantes*, N° A.O. CNRS 11 053.
- Anonyme, 1970. Laboratory of the Government chemist, London, Annual report (cité par Holden, 1973).
- Arnoux A., Blanc A., Jorajuria A., Monod J.L., Tatossian J., 1981 a. État actuel de la pollution sur les fonds du secteur de Cortiou (Marseille), *V^e Journées Étude Pollutions, Cagliari, CIESM, 1980*, 459-470.
- Arnoux A., Bellan-Santini D., Monod J.L., Tatossian J., 1981 b. Polluants minéraux et organiques dans les sédiments prélevés entre la Provence et la Corse (mission Biomède 1), *V^e Journées Étude Pollutions, Cagliari, CIESM, 1980*, 423-432.
- Bengtson S.A., Sodergren A., 1974. DDT and PCB residues in airborne fallout and animals in Iceland, *Ambio*, 3, 21, 84-86.
- Berthois L., Auffret G., 1968-1970. Contribution à l'étude des conditions de sédimentation dans la rade de Brest, *Cah. Océanogr.*, 20, 10, 883-920; 21, 5, 469-485; 22, 7, 701-725; 22, 12, 981-1010.
- Bevenue A., Hylin J.W., Kawano Y., Kelley T.W., 1972. Organopesticide residues in water, sediment, algae and fish, Hawaii, 1970-1971, *Pestic. Monit. J.*, 6, 56-63.
- Bidleman T.F., Rice C.P., Olney C.E., 1976. High molecular weight chlorinated hydrocarbons in the air and sea: rates and mechanisms of air/sea transfer, in: *Marine pollutant transfer*, edited by H.L. Windom and R.A. Duce, D.C. Heath & company Lexington, Massachusetts, USA, 323-351.
- Canonne P., Mamarbachi G., 1975. Résidus des insecticides organochlorés dans les sédiments du haut estuaire du fleuve Saint-Laurent, *Bull. Environ. Contam. Toxicol.*, 14, 1, 83-87.
- Caprais J.C., Marchand M., 1981. Identification des organochlorés à haut poids moléculaire par chromatographie en phase gazeuse sur colonnes capillaires, *Analisis*, 9, 4, 140-144.
- Cohen J.M., Pinkerton C., 1966. Widespread translocation of pesticide by air transport and rain-out, in: *Organic pesticides in the environment*, ACS Adv. Chem. Ser., 60, 163-176.
- Cosson-Mannevy M.A., 1979. Utilisation d'un mollusque filtreur, *Mytilus edulis*, comme indicateur de pollution vis-à-vis des organochlorés dans l'environnement marin, *Thèse 3^e cycle, Univ. Pierre-et-Marie-Curie, Paris-VI, 22 mars 1979*, 147 p.
- Cosson-Mannevy M.A., Marchand M., 1982. Bioaccumulation des polluants chimiques chez les organismes marins. Limite des études *in vitro*, *International Symposium: Principles for the Interpretation of the Results of Testing Procedures in Ecotoxicology, Sophia-Antipolis, Valbonne, France, 1980*, Publ. CEE-Luxembourg, EUR 7549 EN/FR, 256-273.
- Cowan A.A., 1978. Organochlorine compounds in mussels from Scottish coastal waters, ICES CM 1978 E, 39, 14 p.
- Cox J.L., 1971. DDT residues in seawater and particulate matter in the California current system, *Fish. Bull.*, 69, 2, 443-450.
- Dawson R., Riley J.P., 1977. Chlorine-containing pesticides and polychlorinated biphenyls in British coastal waters, *Estuarine Coastal Mar. Sci.*, 4, 55-69.
- Dexter R.N., Pavlou S.P., 1973. Chlorinated hydrocarbons in sediments from Southern Greece, *Mar. Pollut. Bull.*, 4, 188-190.
- Duce R.A., Duursma E.K., 1977. Inputs of organic matter to the ocean, *Mar. Chem.*, 5, 4-6, 319-339.
- Duce R.A., Quinn J.E., Olney E.E., Plotrowicz S.R., Ray B.J., Wade T.L., 1972. Enrichment of heavy metals and organic compounds in the surface microlayer of Narragansett Bay, Rhode Island, *Science*, 176, 176-183.
- Duinker J.C., Hillebrand M.T.J., 1979. Behavior of PCB, pentachlorobenzene, hexachlorobenzene, α , γ , β -HCH, dieldrine, endrin and pp'DDD in the Rhine-Meuse estuary and the adjacent coastal area, *Neth. J. Sea Res.*, 13, 2, 256-281.
- Duke T.W., Lowe J.L., Wilson A.J., 1970. A polychlorinated biphenyl (Aroclor 1254) in the water, sediment and biota of Escambia Bay, Florida, *Bull. Environ. Contam. Toxicol.*, 5, 171-180.
- Eder G., 1976. Polychlorinated biphenyls and compounds of the DDT group in sediments of the central North Sea and the Norwegian depression, *Chemosphere*, 2, 101-106.
- Edwards C.A., 1976. *Persistent pesticides in the environment*. 2nd edition, CRC Press Inc., 170 p.
- Eisenreich S.J., Hollod G.J., Johnson T.C., 1980. Polychlorinated biphenyls and other microcontaminant sediment interactions in Lake Superior, in: *Contaminants and sediments, vol. 1*, Ann. Arbor Science, 67-94.
- Elder D., 1976. PCBs in N.W. Mediterranean coastal waters, *Mar. Pollut. Bull.*, 7, 4, 63-64.
- Elder D.L., Villeneuve J.P., 1977. Polychlorinated biphenyls in the Mediterranean Sea, *Mar. Pollut. Bull.*, 8, 1, 19-22.
- Elder D.L., Villeneuve J.P., Parsi P., Harvey G.R., 1976. Polychlorinated biphenyls in sea water, sediment and over-ocean air of the Mediterranean, Activities of the International Laboratory of Marine Radioactivity, IAEA-187, Monaco, 136-151.
- Foehrenbach J., 1972. Chlorinated pesticides in estuarine organisms, *J. Water Pollut. Control Fed.*, 44, 4, 619.
- Fowler S.W., Polikarpov G.G., Elder D.L., Parsi P., Villeneuve J.P., 1978. Polychlorinated biphenyls: accumulation from contaminated sediments and water by the polychaete *Nereis diversicolor*, *Mar. Biol.*, 48, 303-309.
- Franco-Soler J.M., 1972. Pesticides organochlorés et PCB dans trois espèces marines sur le littoral espagnol, *Journées Étude Pollut., CIESM, Athènes*, 55-57.
- Gaul H., Ziebarth U., 1980. Organochlorverbindungen in Seewasser der Westlichen Ostsee Untersuchungsmethode und Ergebnisse der Jahre 1976 und 1978, *Dtsch. Hydrogr. Z.*, 33, 5, 199-209.
- Giam C.S., Chan H.S., Neff G.S., Atlas E.L., 1978. Phtalate esters plasticizers: a new class of marine pollutant, *Science*, 199, 419-421.
- Goldberg E.D., 1975. The mussel watch. A first step in global marine monitoring, *Mar. Pollut. Bull.*, 6, 111-113.
- Goldberg E.D., Bowen W.T., Farrington J.W., Harvey G.R., Martin J.M., Parker P.L., Risebrough R.W., Robertson W., Schneider E., Gamble E., 1978. The mussel watch, *Environ. Conserv.*, 5, 2, 101-125.
- Halcrow W., MacKay O.W., Bogan J., 1974. PCB levels in Clyde marine sediments and fauna, *Mar. Pollut. Bull.*, 5, 9, 134-136.
- Harvey G.R., Steinhauer W.G., 1976 a. Transport pathways of polychlorinated biphenyls in Atlantic water, *J. Mar. Res.*, 34, 4, 561-575.
- Harvey G.R., Steinhauer W.G., 1976 b. Distribution of PCB and DDT compounds in Atlantic Ocean sediments, Woods Hole Oceanographic Institution, Massachusetts, USA (rapport non publié).
- Harvey G.R., Steinhauer W.G., Teal J.M., 1973. Polychlorobiphenyls in North Atlantic Ocean water, *Science*, 180, 643-644.
- Hiraizumi Y., Manabe T., Takahasi M., Nishida K., Joh H., Nishimura H., 1975. Analysis of PCBs contamination of sediment in the coastal waters of the Seto Inland Sea, *La Mer (Bull. Soc. franco-japonaise d'océanographie)*, 13, 4, 163-170.
- Holden A.V., 1970. Source of polychlorinated biphenyl contamination in the marine environment, *Nature*, 228, 1220-1221.
- Holden A.V., 1973. Monitoring PCB in water and wildlife, PCB conference II, National Swedish Environmental Protection Board, Publication 1973, 4E, 1973.
- Holden A.V., 1976. Input of organochlorines to North Sea via atmospheric deposition, ICES. C.M. 1976/E, 46, 4 p.
- Linko R.R., Rantamaki P., Urpo K., 1974. PCB residues in plankton and sediment in the Southwestern coast of Finland, *Bull. Environ. Contam. Toxicol.*, 12, 6, 733-738.
- Marchand M., 1982. Polluants dans les sédiments marins côtiers : signification de la mesure des hydrocarbures halogénés, CIESM, groupe de travail sur les sédiments marins par rapport à la pollution, Doc. CNEXO/COB, Brest, 18 p.
- Marchand M., Vas D., Duursma E.K., 1974. Résidus de DDT et de polychlorobiphényles (PCB) dans les moules, le sédiment et le plancton de la côte nord-ouest méditerranéenne, *J. Étud. Pollut. CIESM, Monaco*, 171-174.
- Marchand M., Vas D., Duursma E.L., 1976. Levels of PCBs and DDTs in mussels from the N.W. Mediterranean, *Mar. Pollut. Bull.*, 7, 4, 64-69.
- Marchand M., Caprais J.C., Cosson-Mannevy M.A., Morinière P., 1979. Étude des apports et de la distribution des résidus organochlorés à haut poids moléculaire dans la rade de Brest, Rapp. Int. Centre Océanologique de Bretagne, Brest (France), avril 1979, 45 p.
- Masahiro O., Takahisa H., 1975. Alpha- and gamma-BHC in Tokyo rainwater (December 1968 to November 1969), *Environ. Pollut.*, 9, 283-288.
- McClure V.E., 1976. Transport of heavy chlorinated hydrocarbons in the atmosphere, *Environ. Sci. Technol.*, 10, 13, 1223-1229.

- Morinière P., 1978. Étude des organochlorés dans les sédiments de la zone intertidale et chez deux annélides polychètes de la rade de Brest, *Mém. DEA, Univ. Bretagne Occidentale, Centre Océanologique de Bretagne, Brest, juin 1978*, 32 p.
- NAS, 1980. *The international mussel watch*, The National Research Council, National Academy of Sciences, Washington DC, 248 p.
- Olausson E., 1972. Water sediment recharge and recycling of pollutants through biogeochemical processes, in: *Marine pollution and sea life*, edited by M. Ruivo, Fishing News (books) Ltd., London, 143-150.
- Olney C.E., Wade T.L., 1972. Chlorinated hydrocarbons in the marine atmosphere and sea surface microlayer, IDOE, workshop on baseline measurements, Brookhaven, N.Y., May 24-26.
- Osterroht C., 1977. Dissolved PCB's and chlorinated hydrocarbon insecticides in the Baltic, determined by two different sampling procedures, *Mar. Chem.*, **5**, 113-121.
- Osterroht C., Smetacek V., 1980. Vertical transport of chlorinated hydrocarbons by sedimentation of particulate in Kiel Bight, *Mar. Ecol. Progr. Ser.*, **2**, 27-34.
- Paylou S.P., Dexter R.N., 1979. Distribution of polychlorinated biphenyls in estuarine ecosystems. Testing the concept of equilibrium partitioning in the marine environment, *Environ. Sci. Technol.*, **13**, 1, 65-71.
- Paylou S.P., Dexter R.N., Clayton J.R. Jr., 1974. *Chlorinated hydrocarbons in coastal marine ecosystems. Proceedings of the International conference on transport of persistent chemicals in aquatic ecosystems*, National Research Council of Canada, Ottawa, 334 p.
- Peakall D.B., 1976. DDT in rainwater in New York following application in the Pacific North-West, *Atmos. Environ.*, **10**, 10, 899-900.
- Pearce P.A., Reynolds L.M., Peakall D.B., 1978. DDT residues in rainwater in New-Brunswick and estimate of aerial transport of DDT into the Gulf of St. Lawrence, 1967-1968, *Pestic. Monit. J.*, **11**, 4, 199-205.
- Pierce R.H., Olney C.E., Felbeck G.T. Jr., 1974. pp'DDT adsorption to suspended particulate matter in sea water, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **38**, 1061-1073.
- Poulichet F., 1977. Étude de la répartition des organochlorés à haut poids moléculaire entre la matière en suspension et l'eau de mer, Rapport de stage, Centre Océanologique de Bretagne, Brest, 51 p.
- Raybaud H., 1972. Les biocides organochlorés et les détergents dans le milieu marin, *Thèse Doct. Spéc., Univ. Aix-Marseille II*, 28 septembre 1972, 64 p.
- Riley J.P., Whaby S., 1977. Concentrations of PCBs, dieldrin and DDT residues in marine animals from Liverpool Bay, *Mar. Pollut. Bull.*, **8**, 9-11.
- Risebrough R.W., de Lappe B.W., Schmidt T.T., 1976. Bioaccumulation factors of chlorinated hydrocarbons between mussels and sea water, *Mar. Pollut. Bull.*, **7**, 225-228.
- RNO, 1982. *Synthèse des travaux de surveillance 1975-1979 du Réseau National d'Observation de la Qualité du Milieu Marin*, CNEXO-COB/Ministère de l'Environnement, 358 p.
- SAUM, 1978. *Schéma d'aptitude et d'utilisation de la mer de la rade de Brest*, CNEXO-Centre Océanologique de Bretagne, Brest, 95 p.
- Scura E.D., McClure V.E., 1975. Chlorinated hydrocarbons in sea water: analytical method and levels in the Northeastern Pacific, *Mar. Chem.*, **3**, 337-346.
- Sodergren A., 1972. Chlorinated hydrocarbon residues in airborne fallout, *Nature*, **236**, 395-397.
- Stadler D.F., 1977. Chlorinated hydrocarbons in the sea water of the German Bight and the Western Baltic in 1975, *Dtsch. Hydrogr. Z.*, **30**, 6, 189-215.
- Stadler D., Ziebarth U., 1975. Beschreibung einer methode zur bestimmung von Dieldrin, pp'DDT und PCB'o in seewasser und werte für die Deutsche Bucht, 1974, *Dtsch. Hydrogr. Z.*, **28**, 263-273.
- Stadler D., Ziebarth U., 1976. pp'DDT, Dieldrin und polychlorierte biphenyle (PCB) im oberflächenwasser der Westlichen Ostsee, 1974, *Dtsch. Hydrogr. Z.*, **23**, 1, 25-31.
- Strachan W.M.J., Huneault H., 1979. Polychlorinated biphenyls and organochlorine pesticides in Great Lakes precipitations, *J. Great Lakes Res.*, **5**, 1, 61-68.
- Tarrant K.B., Tatton J., 1968. Organo-pesticides in rain water in the British isles, *Nature*, **219**, 725-727.
- Villeneuve J.P., Elder D.L., Fukai R., 1981. Distribution of polychlorinated biphenyls in sea water and sediments from the open Mediterranean Sea, *V^e Journées Étud. Pollutions, Cagliari, CIESM, 1980*, 251-256.
- Vreeland V., 1974. Uptake of chlorobiphenyls by oysters, *Environ. Pollut.*, **6**, 135-140.
- Weil L., Quentin K.E., Ronicke G., 1973. Pestizidpegel des Luftstamms in der Bundesrepublik Kommission zur Erforschung der luftverunreinigung Mitteilung VIII, 21 p.
- Wells D.E., Johnstone S.J., 1978. The occurrence of organochlorine residues in rainwater, *Water, Air Soil Pollut.*, **9**, 271-280.
- West R.H., Hatcher P.G., 1980. Polychlorinated biphenyls in sewage sludge and sediments of the New York Bight, *Mar. Pollut. Bull.*, **11**, 126-129.
- Wheatley G.A., Hardman J.A., 1965. Indications of the presence of organochlorine insecticides in rainwater in Central England, *Nature*, **207**, 486-487.
- Williams P.M., Robertson K.J., 1975. Chlorinated hydrocarbons in sea-surface films and subsurface waters at nearshore stations and in the North Central Pacific Gyre, *NOAA Fish. Bull.*, **73**, 445-447.
- Yates M.L., Holswade W., Higer A.L., 1970. Pesticide residues in hydrobiological environments, *159th ACS Natl. Meeting, Houston, Texas, Fch. 1970 Water, Air and Waste Chemistry Sec. Am. Chem. Soc.* (abstract p. Watr-032).
- Young D.R., McDermott D.J., Heesen T.C., 1975. Polychlorinated biphenyl inputs to the Southern California Bight, Southern California coastal water research Projects, El Segundo, California, TM 224, 50 p.
- Young D.R., McDermott D.J., Heesen T.C., 1976. Aerial fallout of DDT in Southern California, *Bull. Environ. Contam. Toxicol.*, **16**, 5, 604-611.
- Young D.R., McDermott D.J., Heesen T.C., 1977. Sediments as sources of DDT and PCB, *Mar. Pollut. Bull.*, **11**, 254-257.