

CINETIQUE D'EPURATION IN-SITU DE MOULES CONTAMINEES PAR UN GAS-OIL

par Pierre MICHEL

Abstract.

- On November 17th 1975, the tanker « Port de Bouc » with 1 700 t. of fuel n° 2 on board run aground in Saint-Brieuc Bight and 470 t. of this product escaped. The mussel farming zones situated between 10 and 20 km from the oil spill place were rapidly polluted within a few days. The appraised mussels value was 2 millions US dollars. A regular survey of the situation was made and 52 samples were analysed. After 3 days, the maximum of contamination was measured in a sample (505 mg/kg of wet flesh against 16 mg/kg in a non polluted check sample) the maximum pollution for the whole bight was measured after 15 days (the average was 220 mg/kg). First, the release was fast during 1 month and characterized by the total elimination of n-paraffins. Nevertheless, the petroleum taste remained during more than 3 months. Five months were necessary for a complete removal. No mortality was observed and mussels had a normal growing rate during this period. —

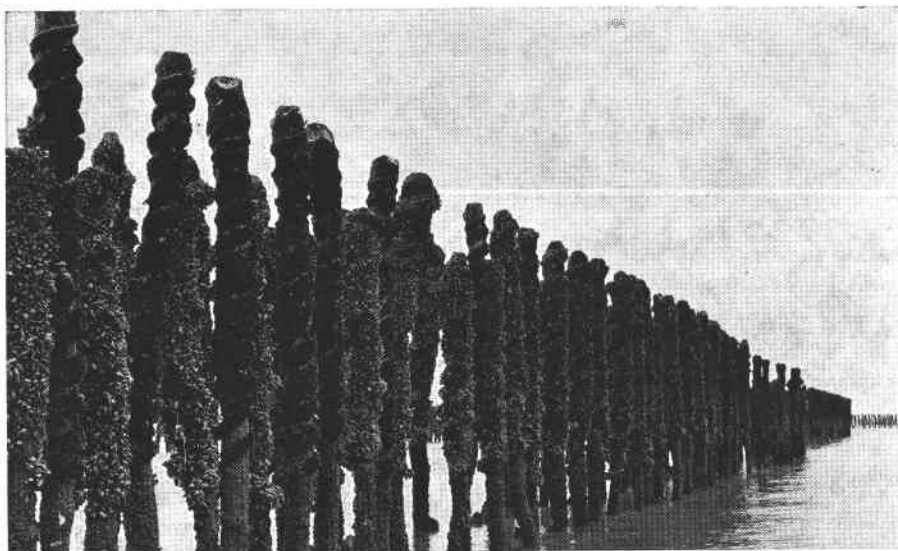
Introduction.

Le 17 novembre 1975, un petit pétrolier, le « Port de Bouc » transportant 1 700 tonnes de gas-oil était en difficulté et s'échouait à proximité de Saint-Brieuc dans l'anse d'Yffiniac. Il ne pouvait être renfloué qu'après s'être allégé de 470 tonnes d'hydrocarbures. La très grande fluidité du gas-oil a provoqué son étalement rapide à la surface de l'eau et rendu impossible tout essai de récupération du polluant. De même, aucun produit dispersant n'a été nécessaire pour ce produit pétrolier qui disparaissait (de la vue) en quelques jours.

La baie de Saint-Brieuc comporte d'importants gisements naturels de coques (2 000 hectares) à proximité même du lieu de l'accident. Mais les craintes les plus vives concernaient surtout les exploitations mytilicoles de la baie de Morieux, situées entre 10 et 20 km de la source de pollution.

A cette époque, les coquillages en place atteignaient la taille commerciale et la valeur du stock pouvait être évaluée à 10 millions de francs. De fait, dès le 20 novembre, l'analyse en laboratoire confirmait les premiers examens gustatifs et permettait de constater que les coquillages de la baie se trouvaient contaminés à un très haut niveau, sur toute son étendue.

Le problème de l'épuration de ces moules se trouvait donc posé de façon extrêmement concrète sans qu'aucun élément précis publié dans la littérature ne puisse permettre de pronostiquer avec certitude le délai nécessaire à cette opération. On note, en effet, que LEE et coll. (1972) ont expérimenté avec la moule l'accumulation et l'épuration de l'heptadécane pendant 24 et 360 heures, celle du naphthalène pendant 4 et 76 heures; STEGEMAN et TEAL (1973) ont mesuré l'accumulation et l'épuration de fuel n° 2 (1) dans l'huître respectivement pendant 50 et 30 jours; BLUMER et coll. (1970) ont vérifié que deux mois après un rejet de 700 m³ de fuel n° 2, les huîtres et les coquilles Saint-Jacques étaient encore contaminées; ANDERSON et NEFF (1974) assurent que des huîtres contaminées par un fuel n° 2 s'épurent en 24 heures pour les paraffines et en 28 jours pour les naphthalènes, cette épuration étant plus rapide encore chez les clams, les crevettes et les poissons. Chacun de ces cas diffère de celui qui nous préoccupe, soit par la nature du produit pétrolier, soit par l'espèce concernée, soit par la technique et la durée d'expérimentation,



Bouchots à moules (photo M.-J. DAIDIGNAC)

soit par l'ensemble de ces facteurs. Ces informations permettaient cependant un certain optimisme et suggéraient un délai d'épuration raisonnable d'environ deux mois. Nous verrons que cinq mois ont, en fait, été nécessaires pour retrouver une teneur normale en hydrocarbures. L'étude de la cinétique d'épuration que nous avons réalisée sur ces moules, outre l'intérêt qu'elle présentait pour réautoriser la vente en temps opportun, apporte également une contribution supplémentaire utile pour d'autres occasions.

Cinétique d'épuration.

Des prélèvements systématiques ont été effectués à intervalles réguliers aux emplacements repérés de 1 à 5 plan A (fig. 1). Divers autres prélèvements ont été faits pour vérifier que toutes les moules de la baie étaient contaminées de façon identique.

(1) Le fuel n° 2 américain correspond au gas-oil français alors que le fuel n° 2 français correspond au Bunker C américain.

Les résultats obtenus sont réunis dans le tableau 1. La contamination n'a pas atteint uniformément l'ensemble des bouchots dès l'origine, c'est ce qui nous a permis d'obtenir le 20 novembre 1975 un échantillon avec 16 mg/kg que l'on peut considérer comme référence non contaminée et un autre avec 505 mg/kg qui constitue l'extrême opposé.

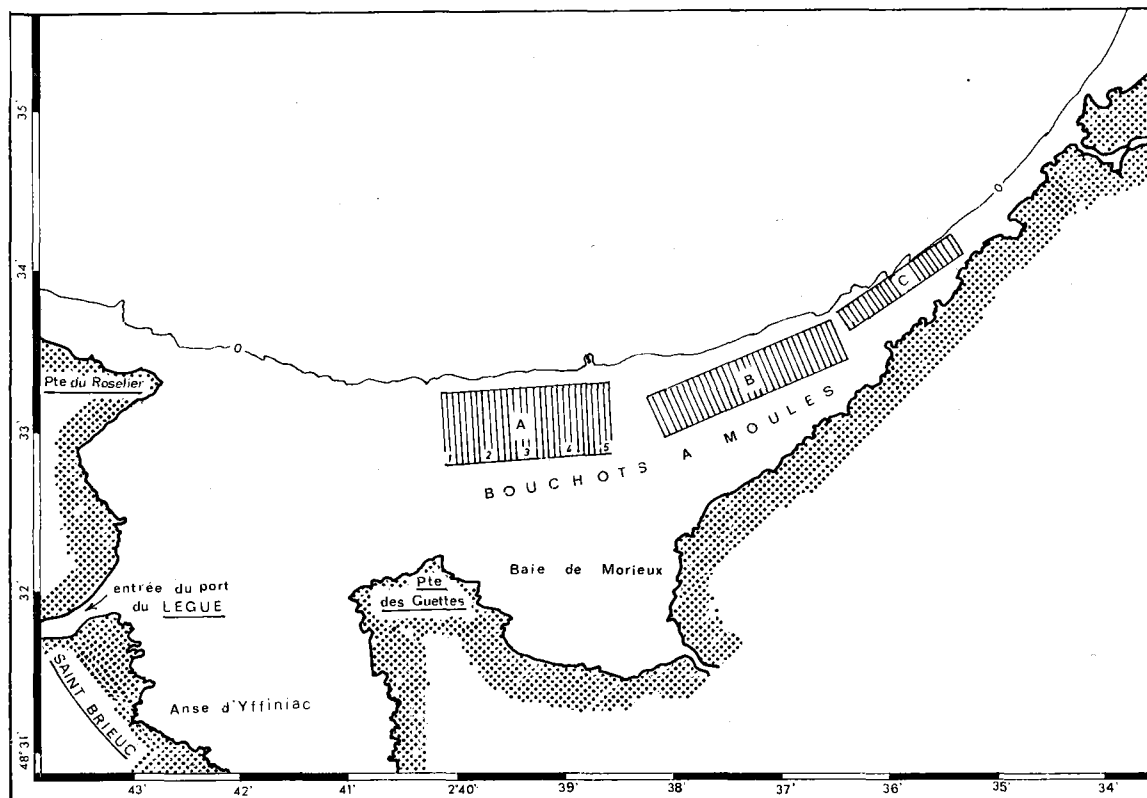


FIG. 1. — Carte de la Baie de Saint-Brieuc

Dates	Lieux de prélèvement					
	1	2	3	4	5	Divers
20.11.1975	505	44	192	31	16	
3.12.1975	312	217	198	165	236	218
18.12.1975	197	133	133	141	184	
5.01.1976	150	125	140	133	170	
19.01.1976	176	197	148	99	92	175, 244 151, 130
4.02.1976	119	98	96	105	102	100, 129, 105 99, 94
16.02.1976	95	73	71	81	75	
18.03.1976	53	36	46	34	43	33, 27

TABL. 1. — Résultats des analyses exprimés en mg/kg de chair humide.

Les analyses ont été réalisées selon une technique originale en cours de publication : les hydrocarbures (à l'exclusion des carotènes) sont purifiés par chromatographie liquide puis analysés en chromatographie gazeuse soit à température fixe (290 °C) pour les mesures quantitatives, soit à température programmée de 120° à 280 °C pour la caractérisation du contaminant ou de son résidu.

Nous avons reporté sur la figure 2 l'intervalle à l'intérieur duquel se situaient les résultats de chaque série de prélèvements. On constate qu'il s'est produit au cours du temps une uniformisation de la pollution marquée par le rétrécissement de cet intervalle. La cinétique d'épuration est représentée sur la même figure par la courbe qui joint entre elles les moyennes de chaque série.

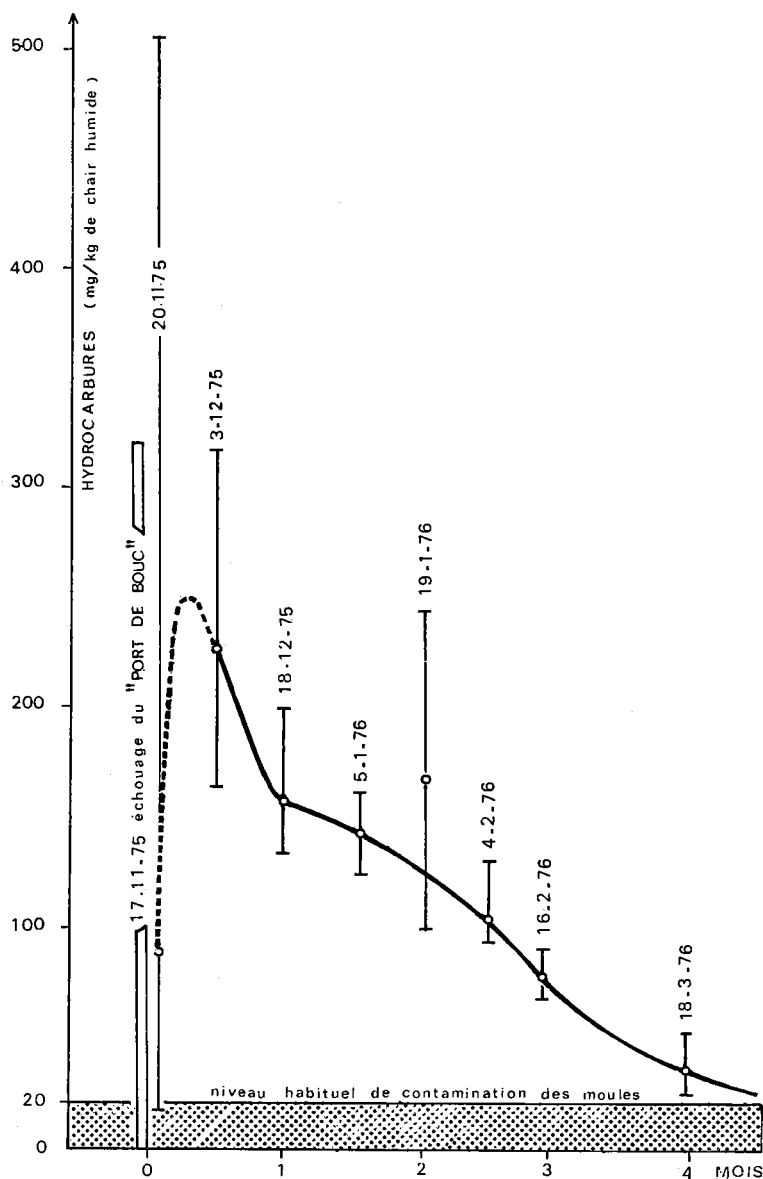


FIG. 2. — Cinétique d'épuration des moules. MICHEL.

L'analyse de cette cinétique permet de distinguer trois périodes successives.

1 - Accumulation.

La première période concerne l'accumulation dont la durée est trop brève par rapport à l'intervalle d'échantillonnage pour avoir pu être précisée exactement.

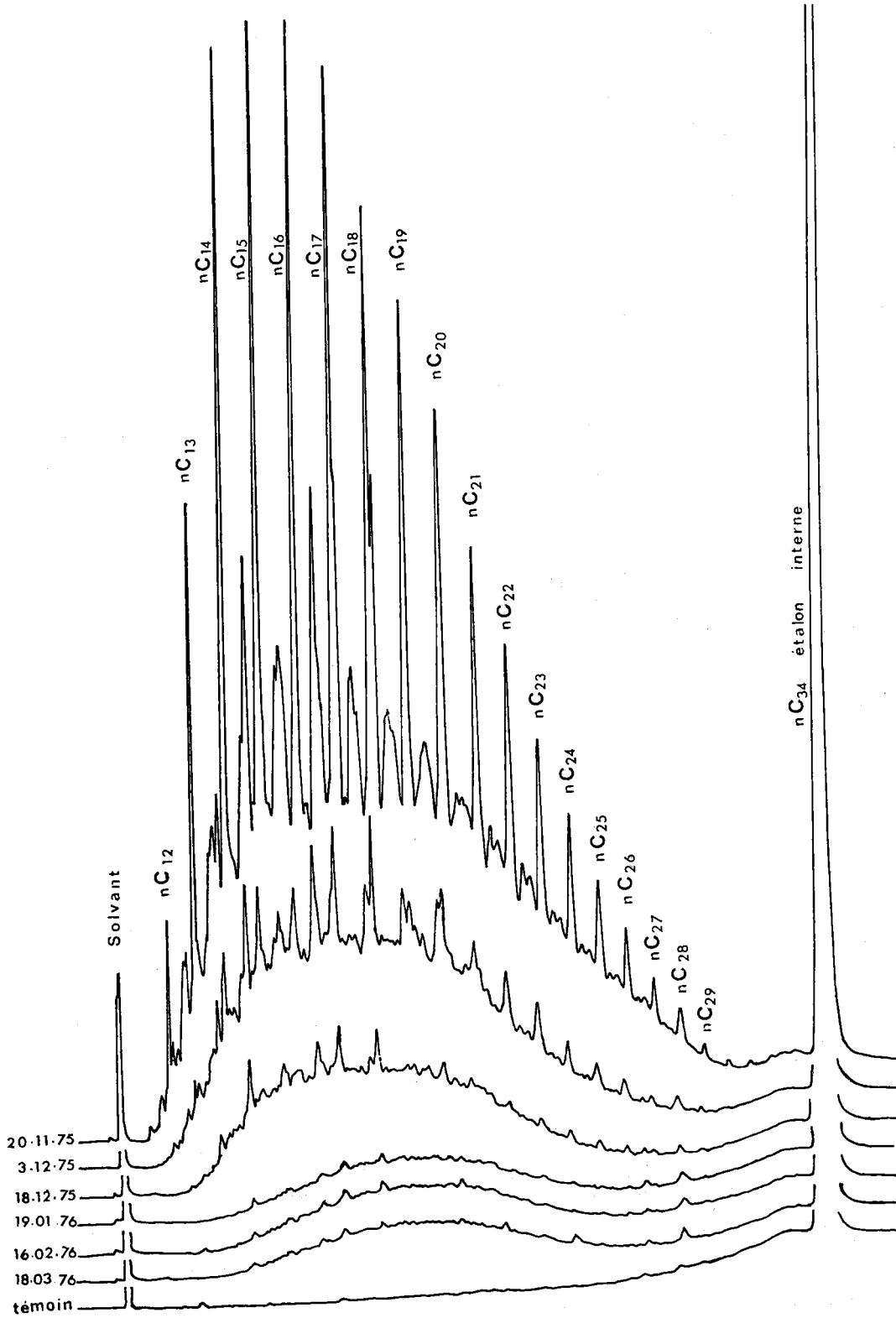


FIG. 3. — Chromatogrammes des extraits successifs

Il semble que cette contamination soit très rapide dès l'instant où les coquillages sont en contact avec une eau contaminée. Si la moyenne atteint un maximum après huit à dix jours, cela est dû aux fragments de nappe qui ont erré dans la baie pendant cette période. Il est possible, en outre, que les valeurs aberrantes mesurées le 19 janvier 1976, coïncidant avec une forte marée de vive eau, puissent s'expliquer par la reprise de sédiments contaminés sur les parties les plus hautes au fond de la baie.

2 - *Epuración rápida.*

On constate ensuite une période d'épuration rapide jusqu'au 18 décembre 1975, soit trente jours après l'accident. Les spectres chromatographiques (fig. 3) montrent que cette chute est liée pour une grande part aux n-paraffines dont 80 % environ sont déjà éliminées en quinze jours, et à la désorption des hydrocarbures fixés superficiellement ou ayant subi seulement un transit intestinal.

3 - *Epuración lenta.*

Les hydrocarbures assimilés par les moules font l'objet d'une épuration beaucoup plus lente. Ils appartiennent à toutes les familles depuis les n-alcanes à longue chaîne (au-dessus de C 22) jusqu'aux aromatiques. Cet ensemble, bien que n'étant pas résolu sur les chromatogrammes donne néanmoins un signal qu'il n'est pas possible de confondre avec le témoin.

Les examens organoleptiques conduits parallèlement aux analyses chimiques ont permis de déceler un goût d'hydrocarbures qui s'est atténué au cours du temps mais a été nettement discernable pendant trois mois. Il a cependant fallu cinq mois pour que le taux de contaminant retrouve son niveau normal.

Conclusions.

La série de contrôles que nous avons été amenés à effectuer à l'occasion de l'accident du « Port de Bouc » permet de tirer un certain nombre d'enseignements sans doute plus fiables que ceux obtenus sur la base d'essais en laboratoire.

1. — Les moules sont peu affectées par des pollutions, même importantes. Nous n'avons constaté ici aucune mortalité et même aucune interruption de leur croissance avec un produit pourtant réputé toxique. Cela explique que, continuant à filtrer l'eau en permanence, elles accumulent le pétrole en très grande quantité (505 mg/kg de poids humide, soit environ 0,5 % par rapport au poids sec).

2. — La rétention des hydrocarbures par les moules n'est pas sélective puisque nous avons obtenu un extrait (20 novembre 1975) dont le spectre chromatographique ressemble à s'y méprendre au gas-oil d'origine. Par contre, l'épuration est sélective et commence par les paraffines de bas poids moléculaire qui sont pratiquement éliminées en quinze jours. Les paraffines normales au-dessus de C 22 subsistent plus longtemps ainsi que l'avaient indiqué LEE et coll. (1972). Les hydrocarbures ramifiés et les insaturés ont une rémanence beaucoup plus grande.

3. — Le temps nécessaire à l'épuration de moules contaminées par des hydrocarbures a souvent été sous-évalué. En effet, il a fallu un délai de cinq mois pour revenir à un niveau normal alors que des temps de un à deux mois sont rapportés dans la littérature. Plusieurs raisons peuvent expliquer cette constatation.

a) Le contrôle des paraffines normales ne rend pas un compte exact de la contamination et donne des résultats beaucoup trop optimistes. La mesure de l'ensemble des hydrocarbures nous semble préférable.

b) L'hypothèse a souvent été émise d'une synergie pour l'accumulation des hydrocarbures chlorés en présence de produits pétroliers. La généralisation de cette hypothèse à l'ensemble des hydrocarbures expliquerait que l'on ne peut avoir une image de la réalité en testant isolément un hydrocarbure issu d'un mélange aussi complexe qu'un gas-oil ou qu'un pétrole brut.

c) Les faits rapportés dans ce document correspondent à une situation très précise. La température par exemple a évolué durant cette période entre 8 et 13 °C, soit notablement en dessous des expériences classiques de laboratoire. Il est certain que cette température, ainsi que d'autres paramètres plus difficiles à discerner, peuvent modifier la cinétique d'épuration.

4. — Les moules sont déjà largement utilisées pour le contrôle des niveaux de pollution par les métaux lourds et les produits organochlorés. La présente étude montre non seulement qu'elles pourraient servir à mesurer le niveau de contamination pétrolière, mais aussi, dans une certaine mesure, à prouver, grâce à la proportion des paraffines normales, que l'on est en présence d'une contamination accidentelle récente. La facilité d'obtenir un échantillonnage représentatif, ainsi que la relative simplicité analytique, nous ont permis de commencer une cartographie des pollutions du littoral français dont les premiers résultats semblent beaucoup plus significatifs que ceux obtenus par des analyses d'eau.

BIBLIOGRAPHIE

- ANDERSON (J.W.) et NEFF (J.M.), 1974. — Accumulation and Release of petroleum hydrocarbons by edible animals. — International Symposium C.E.C., E.P.A., W.H.O., Paris, June 1974, n° 69.
- BLUMER (M.), SOUZA (G.) et SASS (J.), 1970. — Hydrocarbon pollution of edible Shellfish by an oil spill. — *Mar. Biol.* **5**, 195-202.
- EHRHARDT (M.) et HEINEMAN (J.), 1974. — Hydrocarbons in blue mussels from the kiel bight. — *Cons. int. Explor. Mer.* C.M. 1974/E: 11.
- LEE (R.F.), SAUERHEBER (R.) et BENSON (A.A.), 1972. — Petroleum hydrocarbons: Uptake and Discharge by the Marine Mussel *Mytilus edulis*. — *Science*, **177**, 344-346.
- STEGEMAN (J.J.) et TEAL (J.M.), 1973. — Accumulation, Release and Retention of Petroleum hydrocarbons by the oyster *Crassostrea virginica*. — *Mar. Biol.*, **22**, 37-44.
- WHITTLE (K.J.), MACKIE (P.R.), HARDY (R.) et MAC INTYRE (A.D.), 1974. — The fate of n-alkanes in marine organisms. — *Cons. int. Explor. Mer.* C.M./E: 33.
-