

ÉTUDE DE L'ÉPURATION «*IN SITU*» D'HUÎTRES *CRASSOSTREA GIGAS* CONTAMINÉES PAR LES DIPHÉNYLPOLYCHLORÉS

par Claude ALZIEU ⁽¹⁾

— Les diphénylpolychlorés rassemblent un ensemble de substances et isomères qui possèdent un groupement diphényl sur lequel sont fixés de 1 à 10 atomes de chlore (chloro-homologues). Les formulations commerciales, caractérisées par leur teneur en chlore, sont des mélanges en proportion variable de certains chloro-homologues. Les plus connues sont les aroclor 1248, 1254, 1260 titrant respectivement 48, 54 et 60 % de chlore, et les phénoclor DP4 (tétrachloré), DP5 (pentachloré) et DP6 (hexachloré). Leur grande stabilité thermique et chimique ainsi que leur insolubilité dans l'eau sont à la base de leur très large utilisation dans l'industrie comme plastifiants secondaires des peintures, vernis, matières plastiques et caoutchoucs, fluides caloporteurs, diélectriques, etc. —

Les résultats des études de surveillance de la contamination des bivalves marins par les composés organochlorés montrent que si les teneurs en DDT et ses métabolites sont en nette régression depuis 10 ans, celles en diphénylpolychlorés ont tendance à augmenter. Sur le littoral les zones les plus contaminées sont situées à proximité des chantiers navals (rivière du Blavet, rade de Toulon), des complexes industriels (Fos, Dunkerque) et des grands estuaires (Seine), (Alzieu et coll., 1976). Les mécanismes de bioaccumulation des PCB étudiés en laboratoire ont montré que pour les organismes planctonophages, l'absorption directe à partir de l'eau était plus importante que l'ingestion par voie alimentaire (Scura, 1977). Le rôle des chaînes alimentaires n'est sensible que pour les espèces carnivores.

Les bivalves peuvent donc accumuler directement des quantités de PCB qui sont en relation étroite avec la contamination de l'eau dans laquelle ils vivent. Le facteur de concentration, c'est-à-dire le rapport entre la teneur dans les organismes et celle de l'eau dans laquelle ils vivent, est d'autant plus élevé que l'on a à faire à des bivalves filtreurs. Il augmente aussi avec le nombre d'atomes de chlore fixés sur le noyau diphényl (tabl. 1). L'aroclor 1254 est plus accumulé par les huîtres et les coques que l'aroclor 1242 et 1260, alors que les tellines retiennent en plus grande quantité l'aroclor 1242. Les facteurs de concentration indiqués par Duke et coll. (1970), Lowe et coll. (1972) pour les huîtres sont plusieurs centaines de fois supérieurs à ceux trouvés par Langston (1978 a) en expérimentant sur des coques et des tellines. Selon Vreeland (1974) la position des atomes de chlore dans la molécule peut influencer la capacité de rétention des chlorobiphényles par les huîtres : le tétrachlorobiphényl symétrique est 1,5 fois moins retenu que son homologue dissymétrique.

(1) Nous tenons à exprimer nos remerciements à nos collègues du laboratoire de La Trinité-sur-Mer pour leur contribution à ce travail.

Lorsque les coquillages sont replacés en eau de mer propre, ils perdent progressivement leur charge : les PCB à faible teneur en chlore peuvent être éliminés en quelques semaines, alors qu'il faut plusieurs mois pour observer la disparition des biphényls les plus chlorés. Selon Langston (1978 b), la coque *Cerastoderma edule* élimine 90 % des dichlorobiphényles en 21 jours alors que pendant le même temps sa charge en hexachlorobiphényles reste constante. Sur une expérimentation à plus long terme Lowe et coll. (1972) ont trouvé que l'aroclor 1254 était totalement éliminé par les huîtres *C. virginica* au bout de 12 à 28 semaines d'épuration, et que les signes d'atrophie de l'épithélium digestif diverticulaire dus aux PCB étaient résorbés après la douzième semaine.

Composés	Concentration dans l'eau $\mu\text{g/l}$	Durée d'exposition	Espèce	Facteur de concentration	Référence bibliographique
Aroclor 1254	1 5	24 semaines	<i>C. virginica</i>	101 000 85 000	Lowe et coll. (1972)
Aroclor 1254	10	4 jours	<i>C. virginica</i>	3 300	Duke et coll. (1970)
Aroclor 1242	250	40 jours	<i>Cerastoderma edule</i>	112	Langston (1978 a)
			<i>Macoma balthica</i>	238	
Aroclor 1254	250	40 jours	<i>C. edule</i>	163	
			<i>Macoma balthica</i>	138	
Aroclor 1260	250	40 jours	<i>C. edule</i>	56	
			<i>Macoma balthica</i>	62	
2, 3 - dichlorobiphényl	0,6 à 0,055	65 jours	<i>C. virginica</i>	1 200	Vreeland (1974)
3, 4, 2' - trichlorobiphényl				6 200	
2, 5, 2', 5' - tetrachlorobiphényl				7 400	
2, 3, 2', 5' - tetrachlorobiphényl				11 000	
2, 3, 4, 2', 5 - pentachlorobiphényl				27 000	
2, 4, 5, 2', 4', 5' - hexachlorobiphényl				18 000	

Tabl. 1. — Facteurs d'accumulation des diphénylpolychlorés par les bivalves.

L'ensemble de ces résultats montre que les PCB peuvent être accumulés et persister très longtemps dans les tissus des bivalves marins. Cependant les conditions expérimentales, telles que nature et concentration du PCB, température et salinité de l'eau de mer, choisies et contrôlées pour favoriser la mise en évidence d'un phénomène particulier, sont souvent éloignées de celles que l'on observe dans le milieu naturel et qui sont sous la dépendance de rejets polluants multiples et de phénomènes hydrologiques et climatiques variés. Il nous a donc paru intéressant de suivre « *in situ* » la décontamination d'huîtres ayant accumulé naturellement de fortes charges, pour comparer la persistance des PCB à celle indiquée par la bibliographie lors d'études pratiquées en laboratoire.

1. Méthodes.

Deux prélèvements d'huîtres *Crassostrea gigas* ont été effectués, l'un par dragage sur les gisements contaminés de la rivière du Blavet, l'autre sur parcs dans la rivière d'Auray. Les mollusques prélevés ont été triés de façon à constituer deux lots homogènes de même taille (7,8 à 7,9 cm) et dont le poids moyen par huître était de 71,3 et 53,6 g respectivement pour le lot originaire du Blavet et celui de la rivière d'Auray. Après mise en poche ostréophile à raison de 2 kg par poche, les coquillages ont été reparqués sur table en rivière d'Auray au lieu-dit « Le Douarly ». Ce parc est situé dans la partie aval de l'estuaire où pendant la période d'expérimentation, c'est-à-dire du 6 septembre 1976 au 28 avril 1978, des mesures effectuées dans les eaux de surface ont montré que la température avait varié entre 6 et 19 °C, la salinité entre 19 et 34 ‰; la charge en matières en suspension demeure habituellement faible (0,05 mg/l). La recherche des PCB dans

les eaux n'a pas mis en évidence de teneur supérieure au seuil de détection qui était de l'ordre de 20 ng par litre.

La décontamination des deux lots expérimentaux a été suivie en recherchant les PCB dans des prélèvements de 1 kg d'huîtres effectués à un rythme mensuel pendant les six premiers mois, puis tous les deux mois par la suite. Après décoquillage, les chairs égouttées ont été broyées de manière à constituer un échantillon moyen, puis lyophilisées. Les composés organochlorés ont été extraits par du n-hexane qualité « pestipur » dans un appareil à reflux de type soxhlet. L'extrait hexanique est purifié par addition d'acide sulfurique concentré et fractionné par éluions successives à l'hexane sur colonne de gel de silice. Les PCB, le DDT, le DDE et le DDD sont identifiés et quantifiés par chromatographie en phase gazeuse avec détecteur à capture d'électrons et colonne de Chromport XXX 80-90 mesh à 3 % de silicone OV 1. Les concentrations sont calculées par rapport à la chair lyophilisée pour tenir compte des difficultés rencontrées pour égoutter de façon reproductible les chairs des bivalves marins.

2. Résultats et interprétation.

Les résultats des analyses (tabl. 2) montrent qu'au début de l'expérimentation les teneurs en DDT, DDE et DDD étaient du même ordre de grandeur dans les deux lots alors que pour les PCB la contamination était nettement plus élevée dans les huîtres reparquées, c'est-à-dire originaires du Blavet. Ces valeurs sont comparables à celles que nous avons précédemment rencontrées dans les coquillages de ces deux rivières.

Durée de reparcage (semaines)	Huîtres reparquées				Huîtres témoins			
	DP 6	DDT	DDE	DDD	DP 6	DDT	DDE	DDD
0	2,33	0,038	< 0,030	0,084	1,39	0,019	0,047	0,039
6,5	1,04	0,030	0,042	0,020	0,64	0,061	0,094	0,025
10	1,04	0,026	0,101	0,031	0,46	0,026	0,079	0,051
14	1,87	0,052	0,025	0,035	0,55	0,033	0,033	0,023
18	1,40	0,051	0,056	0,032	0,55	0,057	0,050	0,033
24	1,53	0,053	0,078	0,030	1,32	0,110	0,114	0,032
30	1,03	0,016	0,024	0,023	0,53	0,025	0,040	0,020
33	0,72	0,019	0,025	0,019	0,58	0,015	0,018	0,018
39	0,56	< 0,007	0,016	0,021	0,48	< 0,007	0,015	0,021
51	0,60	< 0,011	0,291	0,031	0,55	< 0,009	0,267	0,031
68	0,45	0,011	0,048	0,021	0,40	0,020	0,042	0,017
74	0,54	0,023	0,030	0,021	0,60	0,023	0,025	0,024
81	0,37	0,017	0,013	0,018	0,28	0,012	0,012	0,014

Tabl. 2. — Teneurs en DP6, DDT, DDE et DDD exprimées en mg/kg de chair lyophilisée dans les huîtres reparquées et les témoins.

L'évolution des teneurs en PCB dans les huîtres reparquées et dans les témoins (fig. 1), fait apparaître 2 périodes distinctes. Pendant la première qui s'achève après quarante semaines d'immersion, les teneurs dans les 2 lots demeurent très différentes, et chez les huîtres reparquées varient d'un mois à l'autre de façon notable tout en restant très élevées. De la quarantième semaine à la fin de l'expérimentation, les teneurs dans les 2 lots sont très voisines l'une de l'autre, et les écarts entre 2 prélèvements effectués à quelques mois d'intervalle demeurent très faibles. Au cours de cette période il n'est donc plus possible de déterminer l'origine des coquillages en se basant uniquement sur leur teneur en PCB. Ceci signifie que les huîtres du Blavet se sont décontaminées jusqu'à atteindre les teneurs moyennes des huîtres autochtones qui sont de l'ordre de 0,3 à 0,6 mg par kg de chair lyophilisée. La quantité de PCB éliminée après 81 semaines de reparcage en rivière d'Auray représente 84,1 % de la charge initiale.

Ces résultats montrent que des huîtres provenant de zones polluées par les PCB se décontament très lentement lorsqu'elles sont reparquées dans un milieu moins contaminé. La persistance des résidus dans les tissus a été ici de l'ordre de quarante semaines, c'est-à-dire beaucoup plus que ce qui est avancé dans les essais faits en laboratoire : Lowe et coll. (1972) ont obtenu en 28 semaines l'épuration complète de jeunes huîtres *C. virginica*, qui avaient accumulé une charge en aroclor 1254 plus de 200 fois supérieure à celle que contenaient nos huîtres originaires du Blavet.

Les PCB bioaccumulés dans le milieu naturel s'éliminent donc beaucoup plus difficilement que ceux fixés rapidement dans un essai de laboratoire.

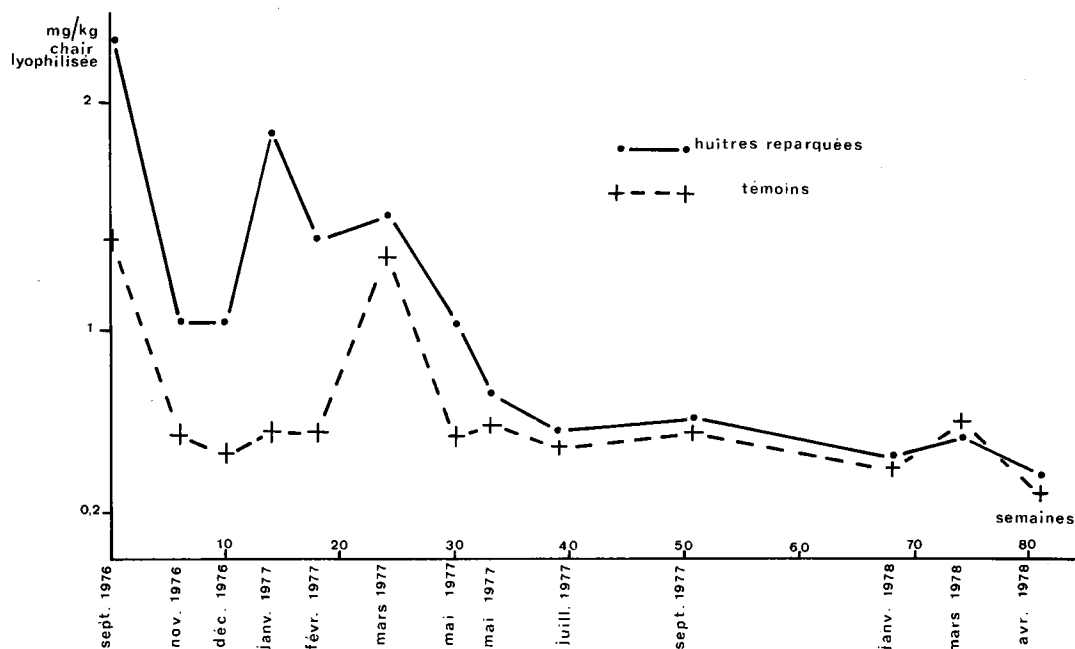


Fig. 1. — Évolution des teneurs en DP6 dans les huîtres reparquées et témoins.

Conclusions.

Le suivi de la décontamination « *in situ* » des huîtres *Crassostrea gigas* montre que la rétention des PCB dans les tissus peut être sous-évaluée sur la base des résultats fournis par les expérimentations en laboratoire.

Plusieurs raisons peuvent expliquer ceci.

L'ensemble des phénomènes physiques, chimiques et biochimiques en milieu marin modifie les proportions relatives des différents chloro-homologues des formulations commerciales : les produits les plus stables persistent dans l'eau en plus grande proportion, sont bioaccumulés en plus grandes quantités et donc plus difficilement éliminés.

Les apports momentanés et chroniques de PCB maintiennent un niveau moyen de contamination de l'eau souvent inférieur au seuil de détection analytique mais suffisant pour empêcher la décontamination complète des coquillages.

L'activité métabolique des organismes vivants évolue en fonction des conditions climatiques et diffère de celle existant au laboratoire où les conditions de milieu sont fixées artificiellement.

L'ensemble de ces résultats tend à montrer que les teneurs en PCB dans les bivalves filtreurs tels que l'huître ne sont représentatifs du niveau de contamination de leur habitat que dans la mesure où ils y vivent

depuis plus de 10 mois. Cette constatation est capitale en ce qui concerne les programmes de surveillance continue de la contamination de la faune sessile par les composés organochlorés. Les analyses effectuées sur des coquillages prélevés sur des gisements naturels semblent à ce titre plus significatives que celles pratiquées sur des mollusques de parcs, dont l'origine et les temps de séjour dans différentes zones conchyliques sont souvent difficiles à connaître avec exactitude.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- ALZIEU (Cl.), MICHEL (P.) et THIBAUD (Y.), 1976. — Présence de micropolluants dans les mollusques littoraux. — *Science et Pêche, Bull. Inst. Pêches marit.*, n° 264: 1-18.
- COURTNEY (W.A.M.) et DENTON (G.R.W.), 1976. — Persistence of polychlorinated biphenyls in the hard clam and the effect upon the distribution of these pollutants in the environment. — *Envir. Pollut.*, 10: 55-64.
- DUKE (T.W.), LOWE (J.I.) et WILSON Jr (A.J.), 1970. — A polychlorinated biphenyl (Aroclor 1254) in the water sediment and biota of Escambia Bay, Florida. — *Bull Envir. Contam. Toxicol.*, 5: 171-180.
- LANGSTON (W.J.), 1978 a. — Accumulation of polychlorinated biphenyls in the cockle *Cerastoderma edule* and the tellin *Macoma balthica*. — *Mar. biol.*, 45: 265-272.
- 1978 b. — Persistence of polychlorinated biphenyls in marine bivalves. — *Mar. biol.*, 46: 35-40.
- LOWE (J.I.), PARRISH (P.R.), PATRICK Jr (J.M.) et FORESTER (J.), 1972. — Effects of the polychlorinated biphenyl Aroclor 1254 on the american oyster *Crassostrea virginica*. — *Mar. biol.*, 17: 209-214.
- SCURA (E.D.), 1977. — Transfer of the chlorinated PCB in laboratory marine food chain. — *Mar. biol.*, 40 (4): 317-325.
- VREELAND (V.), 1974. — Uptake of chlorobiphenyls by oysters. — *Environ. Pollut.*, 6: 135-140.
-