

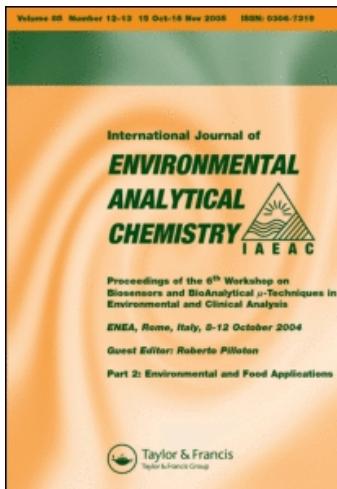
This article was downloaded by:

On: 18 January 2011

Access details: Access Details: Free Access

Publisher *Taylor & Francis*

Informa Ltd Registered in England and Wales Registered Number: 1072954 Registered office: Mortimer House, 37-41 Mortimer Street, London W1T 3JH, UK



International Journal of Environmental Analytical Chemistry

Publication details, including instructions for authors and subscription information:

<http://www.informaworld.com/smpp/title~content=t713640455>

Contamination Pétrolière de la Microcouche de Surface du Golfe de Fos-sur-mer (Mer Méditerranée)

R. Siron^a, J. F. Rontani^a, G. Giusti^a

^a Centre d'Océanologie de Marseille (UA 41), équipe "Chimie Marine", Faculté des Sciences de Luminy (case 901), Marseille cédex, France

To cite this Article Siron, R. , Rontani, J. F. and Giusti, G.(1987) 'Contamination Pétrolière de la Microcouche de Surface du Golfe de Fos-sur-mer (Mer Méditerranée)', International Journal of Environmental Analytical Chemistry, 28: 1, 93 — 104

To link to this Article: DOI: 10.1080/03067318708078402

URL: <http://dx.doi.org/10.1080/03067318708078402>

PLEASE SCROLL DOWN FOR ARTICLE

Full terms and conditions of use: <http://www.informaworld.com/terms-and-conditions-of-access.pdf>

This article may be used for research, teaching and private study purposes. Any substantial or systematic reproduction, re-distribution, re-selling, loan or sub-licensing, systematic supply or distribution in any form to anyone is expressly forbidden.

The publisher does not give any warranty express or implied or make any representation that the contents will be complete or accurate or up to date. The accuracy of any instructions, formulae and drug doses should be independently verified with primary sources. The publisher shall not be liable for any loss, actions, claims, proceedings, demand or costs or damages whatsoever or howsoever caused arising directly or indirectly in connection with or arising out of the use of this material.

Contamination Pétrolière de la Microcouche de Surface du Golfe de Fos-sur-mer (Mer Méditerranée)

R. SIRON, J.-F. RONTANI and G. GIUSTI

*Centre d'Océanologie de Marseille (UA 41), équipe "Chimie Marine",
Faculté des Sciences de Luminy (case 901), 70, Rte Léon Lachamp,
13288 Marseille cédex 9, France*

(Received March 21, 1986; in final form June 10, 1986)

In a general study on the petroleum contamination of the Fos-sur-mer Gulf (Mediterranean Sea), the surface microlayer was sampled. We present here the first results reported up to date in this area, based on a sampling carried out with a rotating PVC drum at 3 stations in May 1985.

Very high hydrocarbons concentrations were sometimes observed in the surface film, which appears more heterogeneous than the underlaying water column (0.5-2 m). Water samples were filtered through fiberglass filters (0.5-1 μ m). Both dissolved and particulate phases were separately extracted and analysed, providing evidence that suspended particles are the major vector for the accumulation and the transport of petroleum pollutants in these neritic waters.

The petroleum origin of "total hydrocarbons" fractions is confirmed by GC and HPLC which reveal characteristic features for *n*-alkanes and polynuclear aromatic hydrocarbons. HPLC analysis of polar (non-hydrocarbons) fractions could indicate their formation from petroleum components. Furthermore, the comparison with the underlaying waters shows that volatilization and biodegradation are the major processes affecting hydrocarbons distribution in these superficial waters.

Biological data (bacteria, chlorophylls, ATP and energetic charge) were simultaneously measured and indicated an important inhibition of phyto- and bacterio- neuston regarding to the planktonic organisms.

KEY WORDS: Fos-sur-mer Gulf, surface microlayer, dissolved phase, particulate phase, *n*-alkanes, aromatic hydrocarbons, polar oil compounds.

Dans le cadre d'une étude générale de la contamination pétrolière du Golfe de Fos-sur-mer, trois stations ont été échantillonnées (film de surface et eau sous-jacente). Nous rapportons ici les premiers résultats concernant la microcouche de surface de ce site.

Nous avons observé en certains endroits, de très fortes accumulations d'hydrocarbures dans le film de surface qui apparaît plus hétérogène que l'eau sous-jacente. L'analyse séparée des phases dissoute et particulaire montre le rôle très important de cette dernière fraction en tant que vecteur de pollution potentiel vers la colonne d'eau et les organismes filtreurs.

L'analyse chromatographie des fractions "hydrocarbures totaux" (CPG et HPLC) et des composés polaires (HPLC) extraits de la microcouche, confirme leur origine principalement pétrolière et montre l'altération qu'ils subissent en surface (évaporation, biodégradation).

Les données biologiques recueillies simultanément ont révélé une importante inhibition du phyto- et du bactério-neuston relativement aux microorganismes planctoniques.

INTRODUCTION

Le film de surface est reconnu comme étant un milieu particulièrement riche en microorganismes,^{1,2} mais aussi en matériel lipidique dissous et particulaire.^{3,4} Il est quelquefois également le siège d'importantes accumulations de substances zénobiotiques et notamment d'hydrocarbures.⁵⁻⁷

Dans le cadre d'un travail très général concernant l'étude des produits pétroliers en milieu marin en relation avec l'activité biologique,⁸ il nous a semblé intéressant d'étudier l'accumulation de ces polluants dans la microcouche de surface d'un milieu côtier assez fortement pollué, afin de mieux connaître leur répartition dans les couches superficielles, l'ampleur de telles accumulations, les principaux phénomènes physico-chimiques et biologiques intervenant sur ces composés ainsi que leur impact éventuel sur les organismes neustoniques.

Nous présentons ici les premiers résultats obtenus à ce jour en ce qui concerne la microcouche de surface du Golfe de Fos-sur-mer.

METHODOLOGIE

Situation du Golfe de Fos

Le Golfe de Fos-sur-mer est situé à 40 km au NW de Marseille (Mer Méditerranée). Il s'agit d'un milieu nérétique semi-fermé qui supporte

sur tout son pourtour une forte implantation urbaine et industrielle ainsi qu'un intense trafic maritime (Figure 1). La principale caractéristique hydrodynamique de ce milieu est l'importance des apports d'eaux déssalées (Rhône et Etang de Berre). Trois stations de prélèvements ont été choisies afin d'échantillonner ces aires de dilution (Figure 1).

Collecte des échantillons

Les prélèvements ont été effectués lors de deux missions, le 15.05.85 (stations 1 et 2) et le 23.05.85 (station 3). Les échantillons d'eau sous-jacente (0.5 m et 2 m) ont été prélevés par pompage péristaltique. Le film de surface a été collecté à l'aide d'un rouleau en PVC (1 m × 0.4 m) selon la technique de Harvey.⁹ Le rouleau est poussé à l'avant d'une petite embarcation munie d'un moteur électrique afin d'éviter toute contamination du film de surface. Des essais préliminaires ont montré que dans les conditions d'utilisation du rouleau, on pouvait estimer à environ 100 µm, l'épaisseur du film ainsi collecté (Laborde, comm. pers.).

Une fois collectés, les échantillons d'eau (2 × 1 l) sont filtrés sous vide sur filtres en fibres de verre (Whatman GF/C; porosité approx. 0.5 à 1.0 µm) préalablement extraits. Les deux phases—dissoute et particulaire—sont ensuite extraites et analysées séparément.

Extraction et séparation chimique

L'eau filtrée est extraite au chloroforme (60 ml pour 1 l d'eau) par la technique "liquide-liquide". Les particules recueillies sur filtres sont extraites au soxhlet par un mélange chloroforme-méthanol (2:1) pendant 24 heures à reflux.

Après évaporation des phases chloroformiques le résidu obtenu, correspondant à la matière organique extractible (EXT), est séché sous courant d'azote puis pesé à l'aide d'une microbalance électronique (Mettler ME 30). Cette technique permet ainsi une précision de $\pm 10 \mu\text{g}$ sur la totalité du résidu considéré.

L'EXT est ensuite chromatographié sur colonne de silice (15 cm × 1 cm; 0.063–0.200 mm), désactivée par 5% d'eau. Deux fractions sont ainsi récupérées: les "hydrocarbures totaux" (HCT) et les composés polaires autres qu'hydrocarbures, par élutions à l'hexane et au méthanol respectivement. Après évaporation du solvant, les HCT sont séchés sous courant d'azote et pesés.

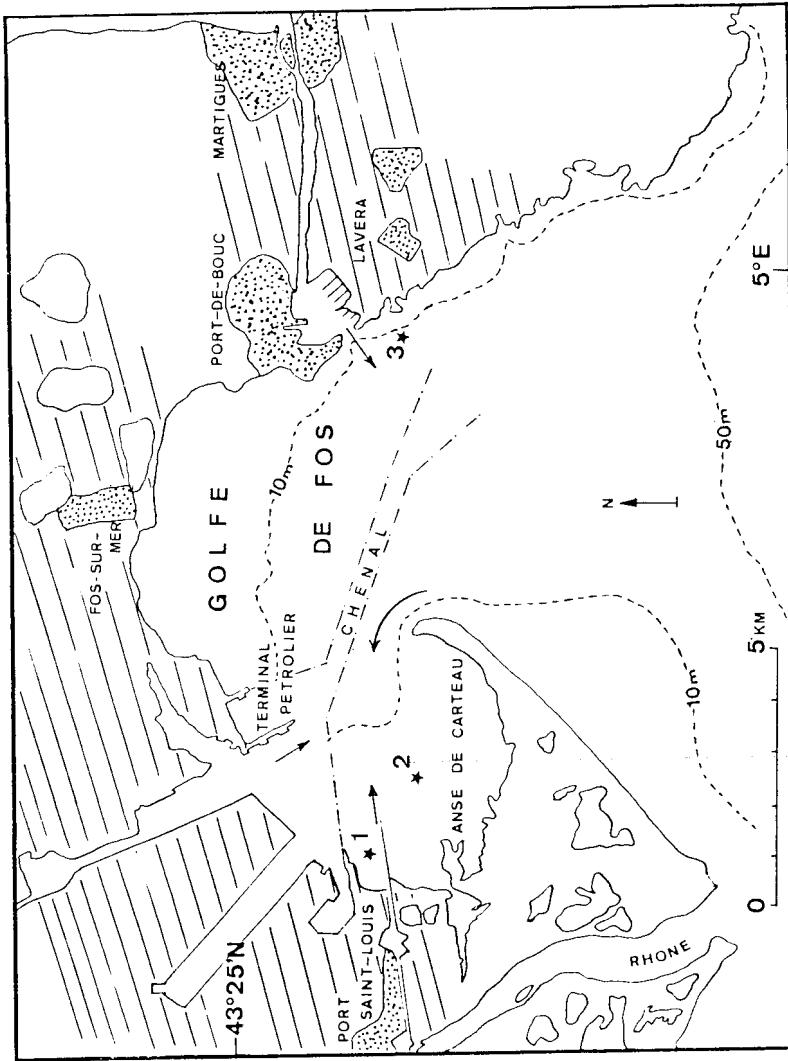


FIGURE 1 Situation du Golfe de Fos-sur-mer localisation des stations de prélèvements (*, 1, 2, 3). : zones industrielles; : zones urbaines; → : principaux apports d'eaux dessalées.

REMARQUES

Tous les solvants utilisés sont de pureté maximale (“pour HPLC”; 99.9% min) et régulièrement contrôlés en CPG et HPLC. Des “blancs” ont été effectués pour toutes les étapes du protocole expérimental (stockage, filtration, extraction et séparation chromatographique).

Des essais du rouleau en laboratoire ont montré qu'il n'induisait qu'une contamination tout à fait négligeable des fractions HCT.

Chromatographie en phase gazeuse (CPG)

Les fractions HCT sont reprises dans l'hexane et injectées dans un chromatographe Girdel série 30 équipé d'une colonne capillaire (OV-1; 50 m × 0.3 mm) et d'un détecteur à ionisation de flamme. Le gaz vecteur est l'hélium (0.9 bar). L'analyse se fait suivant une programmation de température: 170 à 290°C à 3°C.mn⁻¹, puis isotherme à 290°C jusqu'en fin d'analyse.

Le chromatographe est relié à un intégrateur Shimadzu C-R2AX qui permet de calculer l'aire des pics après correction de la ligne de base. Les concentrations en *n*-alcanes (du *n*C₁₆ au *n*C₃₀) sont calculées à l'aide d'un standard externe (le *n*-eicosane), en supposant que tous les alcanes considérés ont même facteur de réponse vis-à-vis du détecteur utilisé.

Chromatographie en phase liquide à haute performance (HPLC)

L'appareillage utilisé est un système modulaire Beckman muni de deux pompes permettant l'analyse en gradient d'élution. La colonne (25 cm × 4.6 mm) est à phase inverse (Ultrasphère ODS). Le débit dans la colonne est maintenu constant à 1 ml.mn⁻¹.

Pour les fractions HCT, le gradient d'élution est le suivant: 75% acétonitrile—25% eau à 100% acétonitrile en 30 minutes. Les hydrocarbures aromatiques sont détectés par mesure de l'absorption à 254 nm.

Pour les fractions polaires (autres qu'hydrocarbures), le gradient d'élution est le suivant: 100% méthanol à 95% méthanol—5% tétrahydrofurane en 20 minutes, puis passage à 100% de THF en 10

minutes. Les composés polaires aromatiques sont détectés simultanément à 254 et 313 nm.

RESULTATS ET DISCUSSION

D'un point de vue strictement quantitatif, on observe une grande variabilité des concentrations dans la microcouche de surface entre les différentes stations échantillonnées, alors que dans la colonne d'eau sous-jacente, les concentrations restent relativement constantes, et ce aussi bien pour la matière extractible (EXT) que pour les hydrocarbures totaux (HCT) ou les *n*-alcanes (Tableaux I et II). Le film de surface apparaît ainsi plus hétérogène que l'eau sous-jacente, reflétant probablement les apports et les processus physico-chimiques divers intervenant en surface sur ces composés. La phase particulaire, plus variable que la phase dissoute, est la plus chargée en hydrocarbures totaux et *n*-alcanes. Les fortes teneurs en HCT et *n*-alcanes (Tableau I) confirment le rôle de la fraction particulaire en tant que "vecteur" de pollution¹⁰⁻¹³ dans ces eaux côtières très riches en particules en suspension d'origines diverses.¹⁴ Il semble

TABLEAU I

Fraction particulaire: concentrations en extrait chloroformique total (EXT; en mg.l⁻¹), en hydrocarbures totaux (HCT; en mg.l⁻¹), en *n*-alcanes (*n*-alc.; en µg.l⁻¹) et en seston (mg.l⁻¹) dans la microcouche de surface (MCS) et l'eau sous-jacente (ESJ). (fe): facteurs d'enrichissement de la microcouche relativement à l'eau sous-jacente.

Stations	1	2	3	
EXT (fe)	25.20 ± 6.04 (64.6)	1.64 ± 0.25 (3.8)	1.09 ± 0.16 (2.8)	
HCT (fe)	9.77 ± 1.12 (36.2)	0.66 ± 0.07 (2.3)	0.40 ± 0.06 (4.0)	
MCS	<i>n</i> -alc. (fe)	293.10 ± 47.51 (22.0)	23.76 ± 1.88 (1.9)	15.20 ± 1.54 (3.4)
	seston (fe)	256.0 ± 8.2 (38.2)	39.2 ± 1.5 (5.6)	22.7 ± 1.7 (5.1)
ESJ	EXT	0.39 ± 0.05	0.43 ± 0.05	0.39 ± 0.02
	HCT	0.27 ± 0.02	0.29 ± 0.05	0.10 ± 0.01
	<i>n</i> -alc.	13.34 ± 2.91	12.76 ± 1.52	4.49 ± 1.71

TABLEAU II

Fraction dissoute: même légende que Tableau I.

	Stations	1	2	3
MCS	EXT (fe)	1.20 \pm 0.06 (5.7)	0.52 \pm 0.04 (1.7)	0.34 \pm 0.04 (3.8)
	HCT (fe)	0.78 \pm 0.15 (39.0)	0.07 \pm 0.02 (1.4)	0.04 \pm 0.01 (1.0)
	<i>n</i> -alc. (fe)	12.48 \pm 1.33 (6.4)	6.58 \pm 0.53 (2.9)	2.88 \pm 0.36 (1.4)
ESJ	EXT	0.21 \pm 0.02	0.30 \pm 0.02	0.09 \pm 0.03
	HCT	0.02 \pm 0.005	0.05 \pm 0.01	0.04 \pm 0.005
	<i>n</i> -alc.	1.95 \pm 0.37	2.27 \pm 0.82	2.08 \pm 0.32

d'ailleurs que dans ce cas, le gradient de contamination du film de surface puisse être corrélé avec la charge sestonique (Tableau I).

La station 1, pour laquelle nous mesurons des teneurs en HCT particulières très élevées, comparables à celles rapportées pour un site voisin également pollué,⁶ est à considérer comme un cas tout à fait extrême de pollution pétrolière du film de surface. Malgré les fortes concentrations en HCT et en *n*-alcanes observées en surface, les facteurs d'enrichissement de la microcouche relativement à l'eau sous-jacente (fe) que nous calculons (hormis pour la fraction particulaire à la station 1) sont dans la même gamme que ceux qui sont rapportés pour des aires océaniques peu—ou pas—polluées^{3,5,15} et par conséquent, ne nous paraissent pas pouvoir être retenus comme critères de pollution des eaux superficielles dans de tels milieux côtiers, pour lesquels on observe également des concentrations relativement élevées dans la colonne d'eau.

Les paramètres biologiques qui ont été mesurés simultanément (Tableau III) révèlent pour les 3 stations une importante concentration de microorganismes dans la microcouche de surface et l'eau sous-jacente. Toutefois, l'enrichissement de la microcouche en bactéries, en pigments chlorophylliens et en ATP est très faible par rapport à ce qui est généralement observé en aires océaniques.^{1,4} Les facteurs d'enrichissement (fe) ainsi que la faible activité biologique—mesurée par la charge énergétique (Tableau III)—réflètent une inhibition du bactério—et du phytoneuston relativement au

bactéries et au phytoplancton. Il est vraisemblable qu'une telle inhibition de l'activité neustonique soit la résultante de nombreux types de substances xénobiotiques accumulées en surface dans ce milieu semi-fermé où les conditions climatiques permettent quelquefois une forte stratification des eaux superficielles. Des teneurs relativement élevées en détergents anioniques ont également été mesurées dans ce site,¹⁶ qui contribueront à la stabilisation et à l'accumulation des hydrocarbures pétroliers dans le film de surface.

Qualitativement, l'analyse en CPG des fractions HCT extraites de la microcouche révèle les principales caractéristiques d'une origine pétrolière^{17,20} avec notamment une distribution régulière des *n*-alcanes sans prédominance des chaînes à nombre pair ou impair de carbones (CPI moyens égaux à 1.09 ± 0.06 et 1.07 ± 0.18 pour les phases dissoute et particulaire respectivement) émergeant d'un massif de composés non résolus, ainsi que la présence de nombreux petits pics aux temps de rétention intermédiaires correspondant vraisemblablement à des alcanes ramifiés et à des aromatiques (Figure 2). De même, nous observons en HPLC (Figure 3) la très

TABLEAU III

Paramètres biologiques: concentrations en bactéries (en cell. $\times 10^6 \cdot \text{ml}^{-1}$), en pigments chlorophylliens (en $\mu\text{g. équivalents de chl-a. l}^{-1}$), en adénosine triphosphate (ATP; en $\mu\text{g. l}^{-1}$) et charge énergétique (C.E.; calculée suivant la formule: $\text{CE} = (\text{ATP} + 1/2 \text{ADP}) / (\text{ATP} + \text{ADP} + \text{AMP})$). (fe): facteurs d'enrichissement de la microcouche relativement à l'eau sous-jacente.

Stations	1	2	3
bactéries (fe)	5.3 (1.65)	3.0 (1.58)	3.1 (1.55)
éq. chl-a (fe)	13.8 (0.84)	8.8 (0.89)	—
ATP (fe)	0.98 (0.68)	1.05 (0.64)	1.73 (4.12)
C.E. (fe)	0.59 (1.09)	0.51 (0.93)	0.51 (1.27)

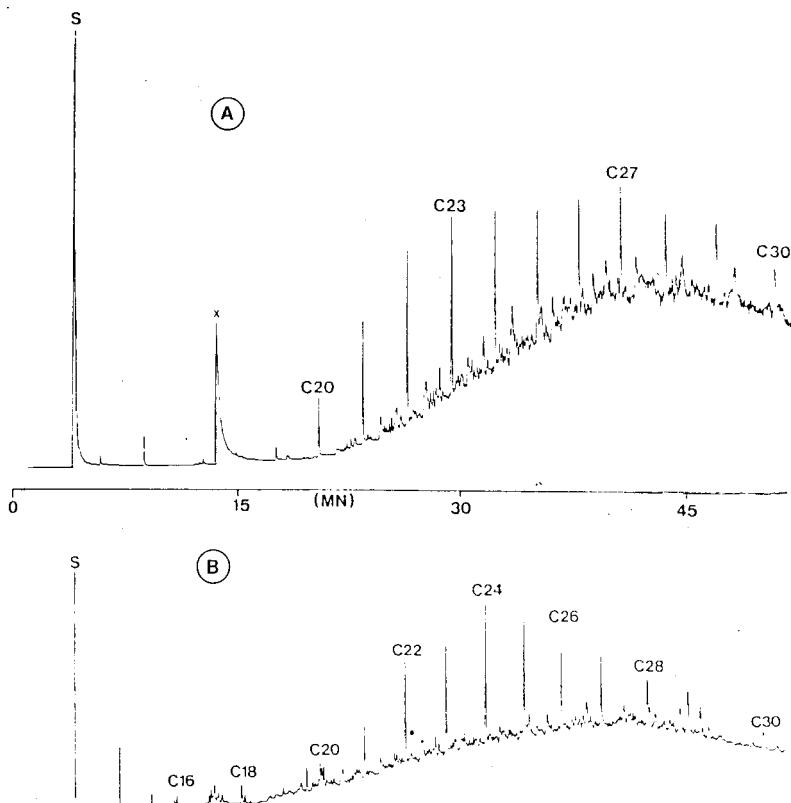


FIGURE 2 Chromatogrammes (CPG) des fractions HCT: A: station 1, microcouche de surface, phase dissoute. B: station 1, eau sous-jacente, phase dissoute. (S: solvant; X: contamination dûe au rouleau de prélèvements; les *n*-alcanes sont repérés par le nombre d'atomes de carbone dans la chaîne).

large gamme et la complexité caractéristique de l'origine pétrolière des hydrocarbures aromatiques.^{21,22}

Aussi bien en CPG (Figure 2) qu'en HPLC (Figure 3) nous constatons une prédominance des composés à haut point d'ébullition ou fortement condensés dans le film de surface relativement à l'eau sous-jacente, confirmant l'importance du phénomène d'évaporation dans le devenir des produits pétroliers en milieu marin.^{23,24}

De plus, la faible proportion du total des *n*-alcanes (du *n*-C16 au *n*-C30) dans les fractions HCT que nous trouvons en surface, aussi

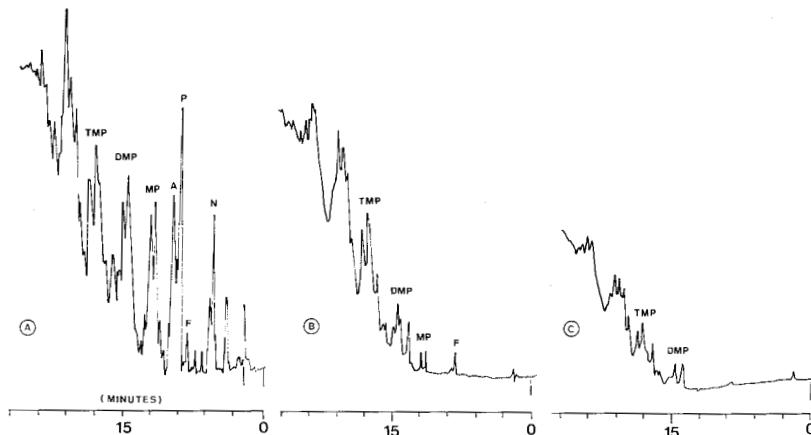


FIGURE 3 Chromatogrammes (HPLC) des fractions HCT: A: station 1, microcouche de surface, phase particulaire. B: station 2, microcouche de surface, phase particulaire. C: station 2, eau sous-jacente, phase particulaire. (N: naphtalène; F: fluorène; P: phénanthrène; A: anthracène; MP: méthyl-phénanthrènes; DMP: di-méthyl-phénanthrènes; TMP: triméthyl-phénanthrènes; détection: 254 nm).

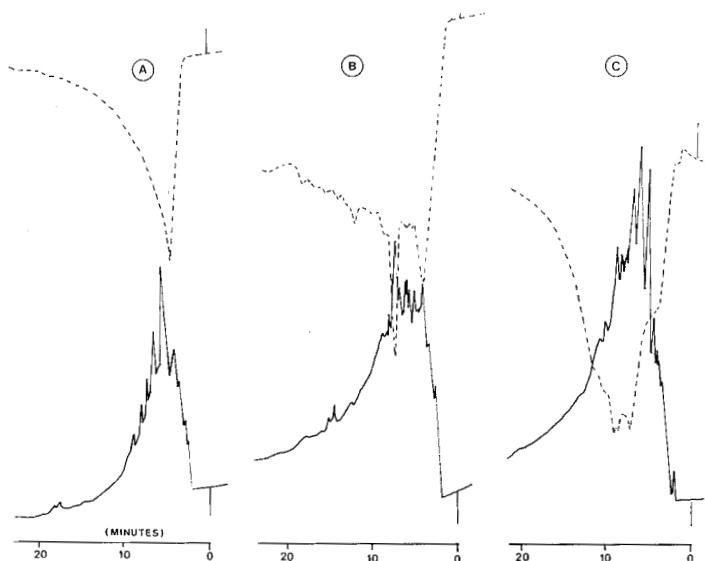


FIGURE 4 Chromatogrammes (HPLC) des fractions polaires extraites de la microcouche de surface: A: station 1, phase particulaire. B: station 2, phase particulaire. C: fraction pétrolière (Arabian Light) équivalente. (Détection: 254 nm (—) et 313 nm (---).)

MICROCOUCHE DE SURFACE

bien pour la phase dissoute ($5.8 \pm 2.4\%$) que particulaire ($4.3 \pm 1.1\%$) pourraient indiquer, corrélativement aux fortes densités bactériennes (Tableau III), l'importance de la biodégradation des hydrocarbures pétroliers dans ces eaux superficielles qui sont par ailleurs enrichies en sels nutritifs et matières organiques diverses provenant des apports fluviaux.¹⁴

L'analyse en HPLC des fractions polaires indique qu'elles sont formées de structures aromatiques dont certaines sont fortement condensées (absorption simultanée à 254 et 313 nm). Une analyse complémentaire en spectroscopie I.R. a révélé également la présence de groupements carbonyles. Sans pouvoir déterminer la structure exacte de ces composés du fait de la complexité de ces fractions, il apparaît, par comparaison avec des fractions pétrolières équivalentes, que certains d'entre eux pourraient être d'origine pétrolière (Figure 4). Le fait que nous observions ces composés principalement dans la phase particulaire ne fait que confirmer la contamination des particules du film de surface.

CONCLUSION

L'étude de la microcouche du Golfe de Fos-sur-mer nous a permis de constater que la contamination des eaux superficielles de certains sites côtiers particulièrement exposés, peut atteindre un degré extrême. Il est vraisemblable que les concentrations en hydrocarbures relativement importantes observées dans toute la colonne d'eau⁸ soient le résultat d'une diffusion vers l'eau sous-jacente²⁵ ou d'un brassage des couches d'eaux superficielles.

Ainsi, les organismes neustoniques—mais aussi planctoniques—seront soumis de façon chronique à une contamination pétrolière relativement élevée. Celle-ci pourrait être à l'origine de sélections spécifiques observées au niveau du phytoneuston (de Suza Lima, comm. pers.) ou du plancton^{14,26} du Golfe de Fos-sur-mer.

La forte contamination des particules en suspension peut également expliquer les teneurs en hydrocarbures très importantes accumulées par des moules prélevées dans ce même site.²⁷

Ces résultats montrent ainsi la nécessité de poursuivre de telles études dans un cadre pluridisciplinaire et un suivi régulier de la pollution de ce milieu côtier, d'autant plus que des activités conchyliocoles tendent à se développer dans l'Anse de Carteau, zone particulièrement fermée.

Remerciements

Nous remercions les Dr Y. de Suza Lima, T. Mimura et P. Laborde, du Centre d'Océanologie de Marseille, qui ont effectué les prélèvements et qui nous ont gracieusement communiqué les données biologiques.

Références

1. S. Kjelleberg, T. A. Stenström and G. Odham, *Mar. Biol.* **39**, 21 (1979).
2. J. T. Hardy and C. W. Apts, *Mar. Biol.* **82**, 293 (1984).
3. J. C. Marty, A. Saliot, P. Buat-Ménard, R. Chesselet and K. A. Hunter, *J. Geophys. Res.* **84**, 5707 (1979).
4. J. T. Hardy, *Prog. Oceanogr.* **11**, 307 (1982).
5. T. L. Wade and J. G. Quinn, *Mar. Pollut. Bull.* **6**, 54 (1975).
6. J. C. Marty and A. Saliot, *Deep-Sea Res.* **23**, 863 (1976).
7. P. R. Mackie, R. Hardy and K. J. Whittle, *Estuarine Coastal Mar. Sci.* **2**, 359 (1974).
8. R. Siron, *Etude des Produits Pétroliers en Milieu Marin*, Doctorat de l'Univ. d'Aix-Marseille II, pp. 247 (1986).
9. G. W. Harvey, *Limnol. Oceanogr.* **11**, 608 (1966).
10. D. M. Schultz and J. G. Quinn, *Org. Geochem.* **1**, 1 (1977).
11. K. J. Whittle, P. R. Mackie, R. Hardy, A. D. McIntyre and R. A. A. Blackman, *Rapp. P.-v. Réun. Cons. Int. Explor. Mer.* **171**, 72 (1977).
12. P. A. Meyers and T. G. Oas, *Environ. Sci. Technol.* **12**, 934 (1978).
13. S. E. Hamilton, T. S. Bates and J. D. Cline, *Environ. Sci. Technol.* **18**, 72 (1984).
14. F. Blanc, M. Leveau and M. C. Bonin, *Int. Revue Ges. Hydrobiol.* **60**, 359 (1975).
15. P. D. Boehm, *Mar. Chem.* **9**, 255 (1980).
16. R. Siron and G. Giusti, *C. R. Acad. Sci. Paris.* **301**, 313 (1985).
17. J. Albaiges, J. Rivera, J. M. Torradas and M. R. Cuberes, *Rev. Inst. Fr. Petrol.* **31**, 427 (1976).
18. M. Marchand and J. Roucaché, *Oceanologica Acta* **4**, 171 (1981).
19. D. H. Stuermer, R. B. Spies, P. H. Davies, D. J. Ng, C. J. Morris and S. Neal, *Mar. Chem.* **11**, 413 (1982).
20. J. R. Payne, J. R. Clayton Jr., C. R. Phillips, J. L. Lambach and G. H. Farmer, *Oil Petrochemical Pollution* **2**, 173 (1985).
21. W. Giger and M. Blumer, *Anal. Chem.* **46**, 1663 (1974).
22. J. Grimalt and J. Albaiges, *Journal of HRC & CC* **5**, 255 (1982).
23. M. Blumer, M. Ehrhardt and J. H. Jones, *Deep-Sea Res.* **20**, 239 (1973).
24. D. C. Gordon Jr., P. D. Keizer and N. J. Prouse, *Mar. Biol.* **22**, 329 (1973).
25. M. Marchand, *Environ. International* **4**, 421 (1980).
26. G. Patriti, *Tethys* **11**, 155 (1984).
27. D. Carles, Bioaccumulation des hydrocarbures par *Mytilus galloprovincialis* (Lamarck). Etude qualitative et quantitative: relation avec les modifications cytologiques au niveau de la glande digestive, Thèse 3^e cycle, Univ. d'Aix-Marseille II, pp. 95 (1984).