



HAP atmosphériques à Port-Saint-Louis-du-Rhône

RAPPORT FINAL

- HAPSIS -

2020

Mathilde Reuillard / Annabelle Austruy

annabelle.austruy@institut-ecocitoyen.fr 04 90 55 49 97 / 06 99 13 00 50

Institut Ecocitoyen pour la Connaisance des Pollutions
RD268 - Centre de vie la Fossette - 13270 Fos-sur-Mer 04.90.55.49.94 – www.institut-ecocitoyen.fr

Le présent rapport est publié sous licence CC-BY-ND

Les données, les interprétations et les images présentes dans ce rapport sont la propriété de l'Institut Écocitoyen pour la Connaissance des Pollutions et de ses partenaires, le LCE et AtmoSud, libres d'accès et d'utilisation à condition de citer les références du rapport et d'indiquer la source des données, photos, et graphiques ("Institut Écocitoyen pour la Connaissance des Pollutions - Fos sur Mer").

Il ne sera pas apporté de modifications à la version originale du rapport à des fins de diffusion. L'Institut Écocitoyen pour la Connaissance des Pollutions ne pourra être tenu responsable de toute interprétation réalisée par un tiers et qui n'est pas explicitement détaillée dans ce rapport.

Pour citer ce rapport :

Annabelle Austruy, Mathilde Reuillard. HAPs atmosphériques à Port-Saint-Louis-du-Rhône : suivi intégré et sources – Rapport final. Institut Écocitoyen pour la Connaissance des Pollutions, 2021.

Résumé

Les Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAPs) regroupent plus d'une centaine de composés organiques neutres et apolaires. Bien que présents naturellement dans l'environnement, ils sont principalement émis par les activités anthropiques (industrielles, portuaires, routières, domestiques).

Dans le cadre de recherches participatives impliquant les jardiniers de Port-Saint-Louis-du-Rhône, l'Institut Ecocitoyen (IECP) a mis en évidence une contamination aux HAPs sur la ville, située au sud-ouest de la ZIP de Fos-sur-Mer. Ces travaux ont notamment porté sur les sols des zones maraîchères présentant une pollution diffuse en HAPs en surface consécutive à des apports atmosphériques issus principalement de sources pyrolytiques. Suite à ce constat, le projet intitulé « HAPs à Port-Saint-Louis-du-Rhône : suivi intégré et sources » (HAPSIS) a été réalisé en 2020 en partenariat avec AtmoSud et le Laboratoire Chimie Environnement (LCE) de l'Université Aix-Marseille. Il avait pour objectif de caractériser et cartographier l'exposition aux HAPs atmosphériques sur la ville et d'identifier les conditions (environnementales, météorologiques) et les origines (locales, régionales) de ces apports. Ce projet a été soutenu par la Métropole Aix-Marseille-Provence, la ville de Port-Saint-Louis-du-Rhône et la DREAL-PACA à travers le Plan Régional Santé-Environnement.

Plusieurs approches ont été mises en œuvre :

- Le suivi sur l'année 2020 des concentrations de plusieurs polluants atmosphériques (PM10, PM1, BC et SO2) associé à des dosages des teneurs en HAPs sur filtres PM10 ;
- Le prélèvement des retombées atmosphériques totales au cours de deux périodes de mesures, hivernale et estivale, grâce à l'installation de préleveurs de poussières (jauges owen), en 3 points de la ville ;
- La réalisation de deux campagnes de biosurveillance lichénique, hivernale et estivale, pour mesurer la bioaccumulation des HAPs dans les thalles de *Xanthoria parietina* sur 7 sites répartis sur la ville ;
- La cartographie de la contamination des sols en HAPs, à partir de 10 points de mesure, permettant d'apprécier l'impact de cette exposition.

Les résultats mettent en évidence le contexte particulier de la ville de Port-Saint-Louis-du-Rhône avec une exposition marquée aux HAPs atmosphériques. Cette contamination diffuse serait en partie liée aux émissions industrielles en provenance des zones industrielles de Fos-sur-Mer et Lavéra. S'ajoutent à cela les fortes variations saisonnières observées dans le dosage des HAPs sur les différentes matrices environnementales prélevées (PM10, particules sédimentables et lichens) témoignant de l'influence de sources d'émissions locales telles que celles induites par le chauffage au bois. Par ailleurs, la cartographie des sols a montré que tous les échantillons prélevés sur la zone urbaine présentaient une contamination diffuse plus ou moins importante en HAPs et a permis d'isoler les zones les plus contaminées. Il s'agit du Canal Saint-Louis, comportant de nombreuses friches industrielles, de la Presqu'île du Mazet et du centre-ville, notamment autour du stade et du Faubourg Hardon. Un gradient de concentration depuis ces friches est ainsi observé sur les échantillons de lichens et de sols. Il témoignerait de la remise en suspension des HAPs par l'envol des poussières de sols contaminés des friches industrielles situées en bordure du Canal Saint-Louis. La revégétalisation de ces friches industrielles, présentant souvent des sols nus, pourrait limiter cet envol de poussières et donc l'influence des friches industrielles sur l'exposition aux HAPs atmosphériques de la ville.

Le large champ d'application obtenu grâce aux différents types de prélèvements réalisés lors de cette étude et leur complémentarité, ont permis de mieux comprendre l'exposition aux HAPs atmosphériques sur la ville.

Remerciements

Nous tenons à remercier toutes les personnes qui ont contribué à ce projet.

Dans un premier temps, nous adressons nos remerciements aux citoyens ayant mis à disposition leurs terrains pour cette étude ainsi que la ville de Port-Saint-Louis-du-Rhône pour son aide et son soutien à la réalisation de cette étude.

Nous remercions l'ensemble des partenaires ayant participé au projet : le Laboratoire Chimie-Environnement d'Aix-Marseille Université et AtmoSud.

Enfin, nous remercions la Métropole Aix-Marseille-Provence et la DREAL PACA pour leur participation au financement de ce projet.
Ce travail participe aux actions inscrites dans le cadre d'une convention de recherche établie entre la Métropole Aix Marseille Provence et l'Institut Ecocitoyen.

Table des matières

I. Introduction....8
II. Matériel et méthode....11
II.1. Zone d'étude....11
II.2. Station atmosphérique....13
II.3. Plan d'échantillonnage....14
II.4. Echantillonnage et prétraitement....15
II.5. Analyses des échantillons....19
II.6. Traitement des données....20
III. Résultats & discussions....21
III.1. Cartographie des teneurs en HAPs dans les sols....21
III.2. Biosurveillance atmosphérique....24
III.3. Teneurs en HAPs dans les retombées atmosphériques totales....27
III.4. Exposition atmosphérique de Port-Saint-Louis-du-Rhône....30
III.5. Teneurs en HAPs dans les PM10....32
III.6. Apports et origines des HAPs....34
III.6.a. Cartographie de l'exposition aux HAPs....34
III.6.b. Sources et origines des HAPs atmosphériques....34
IV. Conclusions....43
V. Bibliographie....45
Annexes....55
Annexe 1 : Vents dominants et conditions météorologiques de la zone d'étude....56
Annexe 2 : Conditions météorologiques lors de la pose des jauges Owen....57
Annexe 3 : Polarplots et rose des vents du 06/02/20....58
Annexe 4 : Polarplots et rose des vents du 12/02/20....59
Annexe 5 : Polarplots et rose des vents du 07/03/20....60
Annexe 6 : Polarplots et rose des vents du 25/03/20....61
Annexe 7 : Polarplots et rose des vents du 30/04/20....62
Annexe 8 : Polarplots et rose des vents du 05/06/20....63

Index des Figures

Figure 1 : Situation géographique de la ville de Port-Saint-Louis-du-Rhône.....9
Figure 2 : Localisation des 10 stations et types de prélèvements sur la ville de Port-Saint-Louis-du-Rhône...12
Figure 3 : Photo des jauges Owen installées sur les différents sites d'étude pendant la période estivale.....14
Figure 4 : Prélèvement de lichens *Xanthoria parietina*.....15
Figure 5 : Schéma de la méthode de prélèvements de sols.....17
Figure 6 : Concentrations totales des 16 HAPs mesurées dans les échantillons composites récoltées sur 10 sites de prélèvements.....19
Figure 7 : Profils HAP (en % HAPtot) relevés dans les différents sols échantillonnés sur la commune.....20
Figure 8 : Coefficients de corrélation de Pearson calculés entre les compositions en congénères HAP relevées dans les échantillons de sol 21
Figure 9 : Concentrations totales des 16 HAPs mesurées dans les thalles de *X. parietina* récoltées sur les 7 sites de prélèvement.....22
Figure 10 : Profils HAP (en % HAPtot) relevés dans les lichens échantillonnés sur la commune.....23
Figure 11 : Coefficients de corrélation de Pearson calculés à partir de la répartition des congénères HAP des échantillons de lichens au cours de la période hivernale et estivale.....24
Figure 12 : Profils HAP relevés dans les particules sédimentables récoltées avec des jauges Owen sur les trois sites de prélèvements en été et en hiver.....27
Figure 13 : Concentrations moyennes journalières de PM10, BC et SO_2 mesurées dans la station AtmoSud de Port-Saint-Louis-du-Rhône du 01/01/20 au 31/12/20.....28
Figure 14 : Coefficients de corrélation de Pearson calculés à partir des moyennes journalières des différents paramètres atmosphériques mesurés.....30
Figure 15 : Evolution des concentrations en HAPs totaux (sur filtres PM10) et en PM10 (moyennées à la journée) mesurées du 07/01/20 au 31/12/20 à la station AtmoSud de Port-Saint-Louis-du-Rhône.....31
Figure 16 : Quantités de HAPs contenus dans les PM10 (en µg HAP/g particules) du 07/01 au 31/12/2020 observées à la station AtmoSud de Port-Saint-Louis-du-Rhône.....32
Figure 17 : Profil HAP moyen (en % HAPtot) prélevés sur les filtres PM10 du 07/01/20 au 31/12/20.....32
Figure 18 : Concentrations en BaP mesurées dans les filtres PM10 du 07/01/20 au 31/12/20.....33
Figure 19 : Analyse factorielle multiple des correspondance (AFCM) réalisée sur les données atmosphériques (SO2, PM10, BC), les teneurs en HAPs et les conditions de vents avec la répartition des jours de prélèvements par mois.....35
Figure 20 : Coefficients de corrélation de Pearson calculés à partir des mesures atmosphériques effectuées les jours de prélèvements des HAPs.....35

Index des tableaux

Tableau 1 : Liste des équipements dont les mesures ont été utilisées dans le cadre de l'étude.....11

Tableau 2 : Description et localisation des stations de prélèvements.....13

Tableau 3 : Types de phorophytes.....15

Tableau 4 : Description des 16 HAPs définis comme prioritaires par l'EPA et analysés dans cette étude.....18

Tableau 5 : Apports de particules sédimentables (PS) et de HAPs par unité de surface et de temps.....26

Tableau 6 : Pourcentages de HAPtot dans les dépôts secs et humides récoltés avec les jauges Owen.....27

I. INTRODUCTION

Les activités anthropiques (industrielle, agricole, urbaine …) sont à l'origine d'émissions de contaminants dans l'atmosphère (SIG, 2020).

Parmi eux, figurent les hydrocarbures aromatiques polycycliques, dits HAPs. Cette famille comporte plus d'une centaine de composés organiques neutres, apolaires et constitués d'au moins deux cycles aromatiques (Rollin *et al.*, 2005). Les origines des HAPs sont diverses et peuvent être regroupées en trois catégories. La principale catégorie concerne les HAPs pyrolytiques issus de la combustion incomplète de matière organique pouvant être d'origine naturelle (feux de forêts ou éruptions volcaniques) (Eva *et al.*, 2000) ou anthropique avec des émissions issues de l'utilisation de combustibles solides (bois, tourbe, charbon), de carburants fossiles et de certains procédés industriels (domaines de la fonte, métallurgie, production d'énergie, industries chimiques, production de coke, produits chlorés, pâte à papier, incinération des produits ménagers) (Brignon et Soleille, 2006). On retrouve ensuite les HAPs pétrogéniques formés à partir de produits pétroliers ou de leurs dérivés (non brûlés), avec des émissions localisées chroniques (activité portuaire, raffinerie, lessivage des infrastructures routières) ou accidentelles (marée noire) (Brignon et Soleille, 2006) et les HAPs diagénétiques produits naturellement par biosynthèse de la matière organique par les êtres vivants (Krauss, 2005). Le Centre technique de référence en matière de pollution atmosphérique et de changement climatique (CITEPA) étudie, en France, l'évolution des sources d'émissions des quatre HAPs couverts par le Protocole Aarhus (adopté en 1998 et faisant suite à la Convention de Genève établie en 1979), à savoir le benzo(a)pyrène (BaP), le benzo(b)fluoranthène (BbF), le benzo(k)fluoranthène (BkF) et l'indeno(1,2,3-cd)pyrène (Ipy). En 2018, il a été estimé que le secteur résidentiel restait la source majoritaire de HAPs dans l'environnement en France, du fait de la combustion de biomasse à des fins de chauffage (CITEPA, 2020). De fait, un effet de saisonnalité est souvent visible avec une augmentation des émissions lors de la saison hivernale, couplée à un ralentissement des processus de dégradation des HAPs et une plus grande stabilité des basses couches de l'atmosphère, limitant les phénomènes de dispersion (LCSQA, 2003).

Il existe différentes voies d'exposition aux HAPs. Les principales étant, pour les non-fumeurs, l'ingestion (contamination des aliments par dépôts atmosphériques, bioaccumulation dans la chaîne trophique ou préparation des aliments au charbon de bois) et l'inhalation (Tarantini, 2009 ; Berard, 2020). Certains représentent un danger sanitaire, ainsi 16 HAPs couramment analysés sont classés comme polluants prioritaires par l'Agence de Protection de l'Environnement des États-Unis (US-EPA). Parmis eux, le benzo(a)pyrène (BaP) a été reconnu comme cancérigène avéré par le Centre International de Recherche sur le Cancer (CIRC - groupe 1) et le dibenzo(a,h,)anthracène (DBA) comme cancérigène probable (groupe 2A).

Enfin, 5 congénères HAPs, dits prioritaires, le benzo(a)anthracène (BaA), le benzo(b)fluoranthène (BbF), le benzo(k)fluoranthène (BkF), le chrysène (Chr) et l'indéno(1,2,3,c,d)pyrène (Ipy), sont classés comme cancérigènes possibles par le CIRC (groupe 2B) (OMS, 2020).

Les études des territoires industriels, dont l'activité entraîne l'émission importante de contaminants dans l'environnement, sont donc essentielles. Elles permettent de mieux comprendre les contaminations en présence, surveiller les risques sanitaires qui y sont liés ainsi que leurs impacts sur l'environnement. Ces missions sont celles de l'Institut Écocitoyen pour la Connaissance des Pollutions (IECP). Ce centre de recherche associatif œuvre depuis 2010 pour mesurer les impacts de ces émissions anthropiques sur l'environnement et ses effets sur la santé sur l'ensemble du territoire de la Métropole Aix-Marseille-Provence, qui comprend la Zone Industrialo-Portuaire (ZIP) de Fos-sur-Mer, 1er port de France et 7e européen (Marseille-Fos, 2020).

De nombreux travaux réalisés par l'IECP et ses partenaires, notamment sur le pourtour du Golfe de Fos, ont mis en évidence les contaminations de l'environnement (Austruy *et al.*, 2016 ; Sylvestre *et al.*, 2017 ; Ratier *et al.*, 2018 ; Austruy *et al.*, 2019) et leurs conséquences sur le vivant (Dron *et al.*, 2019 ; Lebaron *et al.*, 2019) et les populations (Goix *et al.*, 2018 ; Jeanjean *et al.*, 2021). Dans le cadre de ses actions, l'IECP a ainsi mis en évidence une contamination aux HAPs sur la ville de Port-Saint-Louis-du-Rhône, située au sud-ouest de la ZIP de Fos-sur-Mer (Austruy & Roulier, 2016 ; Ratier *et al.*, 2018 ; Khedim, 2018). Ces travaux ont notamment porté sur les sols des zones maraîchères (Roulier, 2015 ; Austruy & Roulier, 2016 ; Austruy *et al.*, 2021) présentant une pollution diffuse en HAPs en surface consécutive à des apports atmosphériques issus principalement de sources pyrolytiques (Khedim, 2018).

Ce travail fait donc suite à ces études. Ses objectifs sont de caractériser l'exposition atmosphérique et la contamination des sols en HAPs sur l'ensemble de la ville de Port-Saint-Louis-du-Rhône ceci afin de déterminer les influences et les sources de pollution (locales, régionales) impactant la ville. Les résultats de cette étude permettront (i) de consolider les données sanitaires et environnementales de ce territoire en indiquant les zones les plus exposées, (ii) d'agir sur la (les) source(s) et (iii) d'appréhender les conditions favorisant cette contamination, pour réduire ou limiter l'exposition des populations.

Pour répondre à ces objectifs, les évolutions des concentrations de certains polluants atmosphériques mesurées en continu par AtmoSud au sein de la ville ont été étudiées. Il s'agit des PM10, du carbone suie ou Black Carbon (BC) et du SO_2. Elles ont été associées à des mesures de HAPs sur filtres PM10 et à un suivi météorologique. Ce dispositif a été complété par le prélèvement et l'analyse des retombées atmosphériques, grâce à la pose de jauges Owen. Pour finir, une cartographie de la contamination des sols en HAPs a été effectuée ainsi qu'une cartographie de l'exposition atmosphérique en période hivernale et estivale à l'aide de mesures de bio-imprégnation lichénique utilisées en biosurveillance atmosphérique. En effet, les mesures physico-chimiques de surveillance de la qualité des milieux permettent d'apprécier les concentrations de divers polluants (PM10 et 2,5, HAPs, métaux et métalloïdes,

…) en lien avec les valeurs réglementaires. Or, ces mesures peuvent également être complétées par les techniques de biosurveillance, définies comme étant l'utilisation des réponses biologiques (biochimique, moléculaire, physiologique …) d'un organisme ou d'un ensemble d'organismes pour prévoir et/ou révéler une altération de l'environnement et en suivre l'évolution (Van Haluwyn *et al.*, 2011). La biosurveillance peut être employée pour étudier la distribution spatiale et temporelle de certains polluants atmosphériques, pour identifier et suivre des sources ponctuelles de contamination ou pour évaluer d'éventuels impacts environnementaux. Ainsi, elle peut être intégrée aux méthodologies d'évaluation des risques et constituer un outil d'information et d'aide à la décision (Van Haluwyn *et al.*, 2011 ; Grand *et al.*, 2012 ; Agnan, 2013 ; Ratier *et al.*, 2018).

Le projet HAPSIS est issu d'une convention de recherche entre l'IECP et la Métropole Aix-Marseille Provence sur les expositions des populations aux mélanges de polluants atmosphériques. Il est soutenu par la Ville de Port-Saint-Louis-du-Rhône. HAPSIS a été sélectionné par l'APSE 2019 et a bénéficié à ce titre d'une participation financière de la DREAL PACA. Ce projet s'inscrit dans les orientations du PRSE 3, dans l'objectif « consolider les données sanitaires et environnementales ». Il réunit plusieurs partenaires : (i) l'IECP, pour la coordination, l'interprétation des données, la réalisation des campagnes d'échantillonnages, le prétraitement des échantillons, (ii) le Laboratoire Chimie-Environnement de Aix-Marseille Université pour les analyses de ces derniers et (iii) AtmoSud, pour l'obtention de données atmosphériques, la mise à disposition des jauges Owen, d'un préleveur haut débit et son concours dans l'expertise des phénomènes de pollution atmosphérique dans la zone. Ce rapport final présente les données atmosphériques enregistrées entre le 07/01/20 et le 31/12/20 ainsi que les deux campagnes d'échantillonnage des lichens, sols et jauges Owen.

II. Matériel et méthode

II.1. Zone d'étude

Située dans le département des Bouches-du-Rhône, sur le littoral méditerranéen, la ville de Port-Saint-Louis-du-Rhône est l'une des communes composant le Golfe de Fos (Figure 1). Ce dernier est fermé par l'embouchure du Rhône à l'ouest et par le Cap Couronne à l'est.

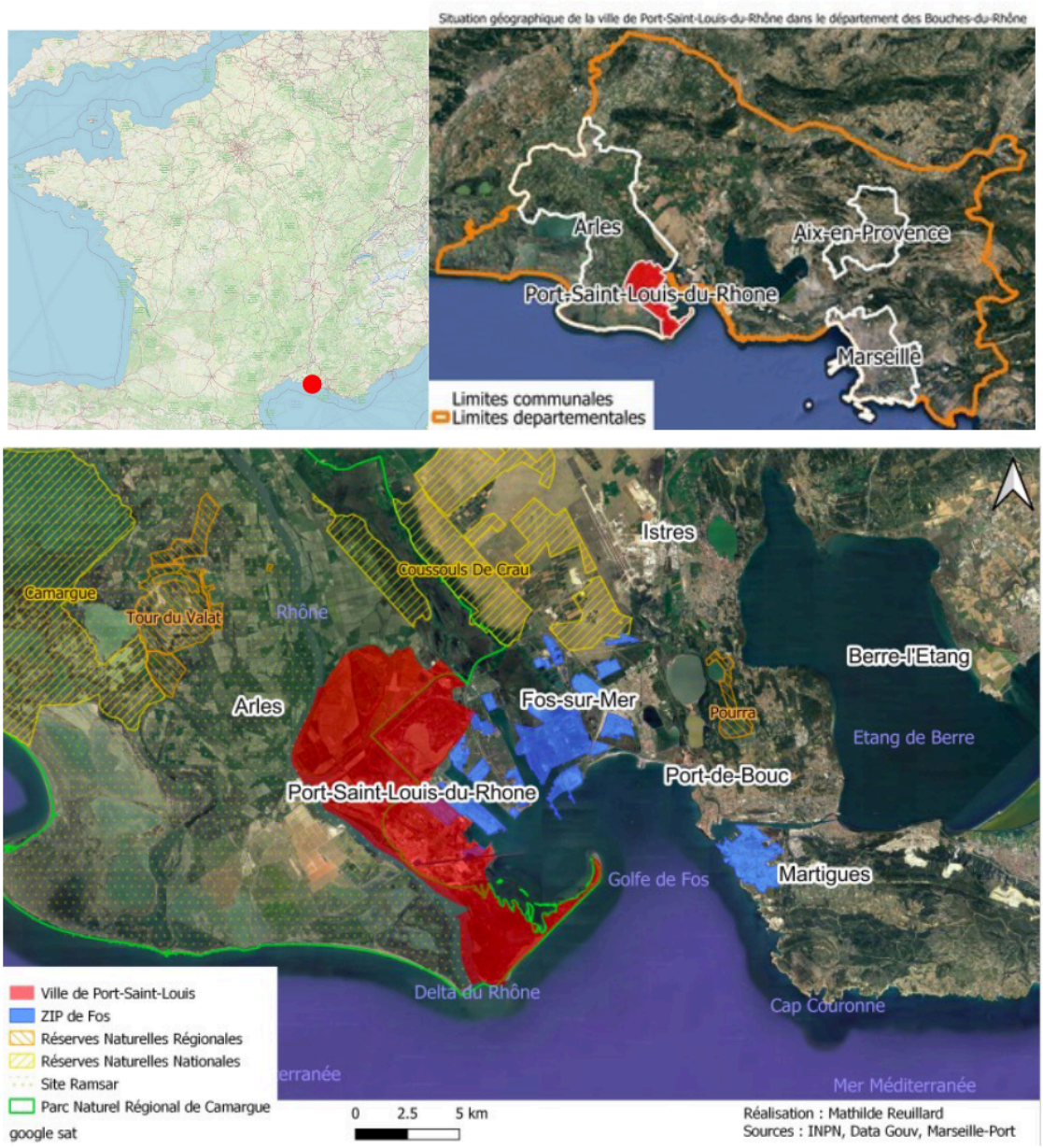


Figure 1 : Situation géographique de la ville de Port-Saint-Louis-du-Rhône

Les paysages bordant ce golfe s'articulent entre les structures du port, les espaces urbains et industriels et les paysages naturels de Camargue et de la Crau. Le Golfe de Fos abrite la Zone industrialo-portuaire (ZIP) de Fos-sur-Mer constituant le bassin ouest du port de Marseille-Fos. Cette zone de 10 000 ha est un port multi-filières accueillant des activités maritimes, logistiques et industrielles. La ZIP traite ainsi différents types de trafics via des terminaux pétroliers, céréaliers, gaziers, vracs solides (minerais, ciment, charbon, coke, bauxite, engrais ...) et à conteneurs. Ceci ayant permis la circulation de 79 millions de tonnes de marchandises en 2019 grâce aux transports maritimes, routiers et ferroviaires. Elle dispose également de plate-formes logistiques dont 3 millions de m² d'entrepôts (Marseille Fos, 2020). De plus, elle possède diverses activités industrielles telles que la sidérurgie, la pétrochimie ou l'industrie chimique avec plus de 40 sites opérationnels ce qui en fait le deuxième port le plus industrialisé d'Europe (ARII PACA, 2011 ; Marseille-Fos, 2020).

Par ailleurs, ce territoire est bordé de zones naturelles (Figure 1) avec les réserves naturelles nationales de Camargue (la Capelière), des Marais du Vigueirat et des Coussouls de Crau ainsi que les réserves naturelles régionales de la Tour du Valat et de Pourra (Réserves Naturelles de France, 2015). Trois d'entre elles sont comprises dans le Parc Naturel Régional de Camargue, présent à l'ouest de la ZIP (Figure 1), correspondant à un site Ramsar dont la convention a été signée le 1er octobre 1986 (PNR de Camargue, 2020). Ce site, d'importance internationale, comporte de nombreuses zones humides caractérisées par leur salinité. Il possède ainsi une mosaïque d'habitats variée, accueillant de nombreux oiseaux nicheurs et hivernants. Il est notamment composé de roselières, lagunes, sansouires, plages, marais d'eaux douces et salants. Des milieux cultivés sont également présents, ils sont en partie consacrés à la riziculture (PNR de Camargue, 2020).

La commune de Port-Saint-Louis-du-Rhône est née il y a une centaine d'année, lors de l'ouverture du Canal du Rhône. Au 20e siècle, ses activités industrielles étaient générées par le trafic maritime. Cependant, suite à la crise économique de 1974 et à l'arrivée de nouvelles techniques de transport, leur transfert vers la ZIP de Fos-sur-Mer a été effectué. Depuis les années 90, le bassin central est réaménagé en port de plaisance (Mairie de Port-Saint-Louis, 2020). Actuellement, la ville s'étend sur 73,4 km² et comptait environ 8 500 habitants en 2017 (INSEE, 2020).

Cette région est caractérisée par un climat méditerranéen rythmé par quatre saisons, bien contrastées, avec un été chaud et sec et un hiver marqué bien que doux. Le printemps et l'automne sont parfois pluvieux, avec un net avantage pour l'automne, souvent sous forme d'orages (40 % du total annuel de précipitations) (Annexe 1). L'ensoleillement y est également important et les vents violents fréquents (Météo France, 2020). Concernant la direction des vents en région méditerranéenne, plusieurs types de vents sont distingués (Météo France, 2020) provenant majoritairement du nord-ouest (Mistral), du sud-est (Marin) et de l'est (Levant) (Annexe 1).

II.2. Station atmosphérique

Le centre-ville de Port-Saint-Louis-du-Rhône est équipé d'une station atmosphérique, propriété de AtmoSud, disposant de plusieurs appareils dont les mesures ont été utilisées lors de cette étude (Tableau 1).

Tableau 1 : Liste des équipements dont les mesures ont été utilisées dans le cadre de l'étude

	Type de mesures	Unités de mesure	Fréquence de mesure	Indicateurs	Propriétaire du matériel
CPC	Comptabilise l'ensemble des particules ultrafines inférieures à PM1	Nbre PM1/cm^3	1 min	Suivi de la pollution atmosphérique en particules	LCE
BAM avec une tête PM10	Concentrations en PM10	µg/m^3	15 min	Suivi de la pollution atmosphérique en particules	AtmoSud
AE33 avec une tête PM2,5	Concentrations en Black Carbon	µg/m^3	15 min	Traceur de combustion	AtmoSud
DA80 avec une tête PM10	Concentrations HAPs dans les PM10	µg/m^3	1 / 6 jours	Charge en HAP des particules PM10	AtmoSud
Analyseur de SO_2	Concentrations en SO_2	µg/m^3	15 min	Traceur de l'activité industrielle et du trafic maritime	AtmoSud
Station météorologique	Vitesse et direction des vents	m/s	1 min	Suivi météorologique	IECP

Le BAM prélève les particules sur une bande filtrante et mesure ensuite leur masse grâce à une source interne de rayonnements de type bêta, traversant un spot qui a été exposé à volume d'air prédéfini (1 m^3/h). Ici, il s'agit des concentrations de PM10 c'est-à-dire des particules dont le diamètre est inférieur à 10 µm (AtmoSud, 2018). Une panne de l'appareil est à signaler les 25/03/20, 17/04/20 et 15/10/20.

L'aethalomètre (AE33) mesure les concentrations en Black Carbon (BC) ou carbone suie, il s'agit d'un composé primaire, inerte, issu d'une combustion incomplète des combustibles carbonés. Son fonctionnement repose sur l'absorption de l'intensité lumineuse du dépôt de BC sur une bande filtrante, mesurée par des détecteurs photométriques (AtmoSud, 2018). De plus, l'AE33 réalise une classification optique du BC qui va permettre de caractériser sa nature chimique en fonction de sa longueur d'onde. En effet, le BCff, provenant de la combustion de carburants fossiles, absorbe de 850 à 900 nm. Le BCwb, issu de la combustion de biomasse, absorbe lui autour de 400 nm (AtmoSud, 2018).

Le DA80 est un collecteur haut débit (30 m^3/h) équipé d'une tête de prélèvement PM10. Ainsi, il prélève de l'air en continu et le dirige sur un filtre inséré dans la conduite (AtmoSud, 2018). Les particules PM10 et aérosols sont ainsi récoltés sur un filtre pendant 24 h, tous les 6 jours, à partir du 7 janvier 2020 et jusqu'au 31 décembre 2020. Une analyse des HAPs contenus sur les filtres a ensuite eu lieu au Laboratoire

Chimie-Environnement (LCE) de Marseille. Suite à une panne du DA80, les prélèvements sur filtre PM10 des HAPs ont été tronqués ou absents le 13/01/20, 31/03/20 et 06/04/20.

Enfin, les données météorologiques ont été complétées par celles de température et de pluviométrie enregistrées à la station atmosphérique de Fos-Carabins, appartenant à l'IECP.

II.3. Plan d'échantillonnage

Afin de cartographier l'exposition et déterminer les origines des HAPs retrouvés à Port-Saint-Louis-du-Rhône, deux campagnes d'échantillonnages ont été réalisées. Elles ont eu lieu en hiver et en été, et étaient composées de prélèvements de retombées atmosphériques (jauges Owen), de lichens et de sols (Tableau 2). Ceux-ci ayant été effectués au sein de 10 stations choisies préalablement (Figure 2) et décrites dans le Tableau 2.

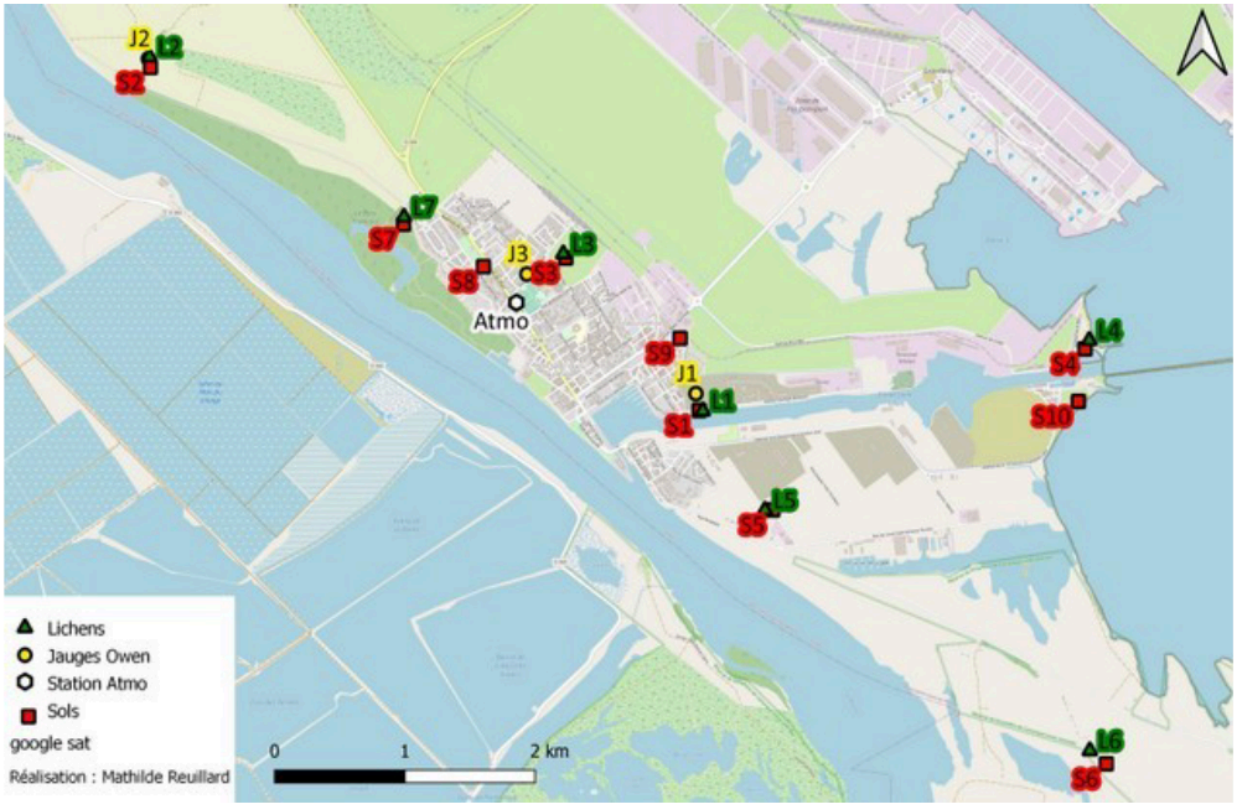


Figure 2 : Localisation des 10 stations et types de prélèvements sur la ville de Port-Saint-Louis-du-Rhône

Tableau 2 : Description et localisation (Lambert 93) des stations de prélèvements

N° site	Nom site	Description site	Jauge Owen	Lichens	Sols
1	Friche industrielle	Usine déconstruite « Arthur Armand » Activités de raffinage et/ou stockage d'huiles minérales (BASIAS, 1998)	847164,3 6255949,1	847220,4 6255821,6	847163,1 6255870,6
2	Bois François	Terrain privé (à proximité du Rhône et de terrains agricoles) servant de pâturage continu pour chevaux	842905,5 6258363,1	842913,6 6258377,8	842894,2 6258346,3
3	Stade	Pelouse peu fréquentée du centre-ville présente aux abords d'un stade et d'habitations	845846,8 6256815,3	846122,5 6256973,5	846113,3 6256989,8
4	Plage Olga	Terrain entouré d'habitations et d'une plage, à proximité de la ZIP de Fos		850173,5 6256418,1	850114,2 6256400,6
5	Presqu'île Mazet	Terrain privé servant de pâturage continu pour chevaux		847714,4 6255087,9	847745,2 6255138,5
6	They Roustan	Zone humide d'eau salée		850250,8 6253342,4	850350,2 6253294,4
7	Entrée nord ville	Terrain à proximité des habitations, ripisylve du Rhône		844894,4 6257221,1	844863,5 6257215,5
8	Parc urbain	Parc situé dans le centre-ville			845483,3 6256911,2
9	Centre culturel	Terrain privé, jardin et potager			847003,8 6256408,4
10	Plage de Carteau	Terrain proche d'habitation et d'une plage			850072,1 6256006,0

II.4. Echantillonnage et prétraitement

➢ *Jauges Owen*

Le dispositif utilisé dans cette étude est composé d'un support pied fixé avec des sardines sur lequel est posé une jauge Owen et un entonnoir en verre (Figure 3) selon la norme NF X43-014. Ce système permet de collecter les retombées atmosphériques qui entrent de façon gravitaire dans l'entonnoir puis dans la jauge.

Après une période d'exposition, ce système permet ainsi de quantifier les polluants présents dans les dépôts secs (particules) et humides (précipitations). La quantité de dépôt recueillie peut varier en fonction de certains paramètres météorologiques tels que les précipitations, lessivant l'atmosphère, ou le vent qui favorise la remise en suspension de particules (Scal Air, 2016).

Avant exposition, chaque jauge a été rincée et un blanc a été réalisé par jauge, avec 250 mL d'eau ultrapure. Ce blanc a été conservé dans une bouteille en verre d'un litre ayant été préalablement rincée et recouverte de papier aluminium.

Sur le terrain, chaque jauge a d'abord été recouverte de papier aluminium, et 200 mL d'eau ultrapure y ont été introduits. Elles ont ensuite été surmontées d'un entonnoir en verre puis placées sur un support pied fixé avec des sardines, à 1,80 m de hauteur (Figure 3). Les jauges ont été installées sur 3 sites différents (Figures 2 et 3) pour une durée d'exposition de 30 jours, au cours de deux périodes de prélèvements :

- Pour la période hivernale, du 17/12/2019 au 15/01/2020 ;
- Pour la période estivale, du 20/05/2020 au 19/06/2020.

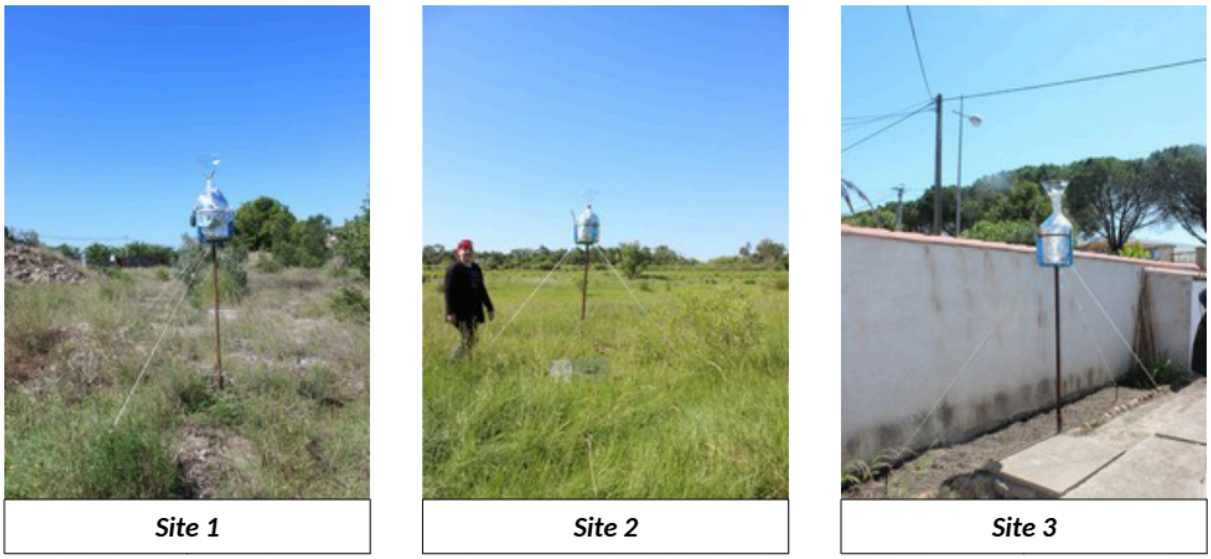


Figure 3 : Photo des jauges Owen installées sur les différents sites d'étude pendant la période estivale

Après exposition, chaque jauge a été pesée sans son entonnoir. Puis son contenu a été récolté dans une bouteille en verre d'un litre, rincée préalablement et recouverte de papier aluminium. La jauge a ensuite été rincée trois fois avec 250 mL d'eau ultrapure. Ces eaux de rinçage ont également été versées dans une bouteille de 1 L. Ce processus a été répété pour chaque jauge Owen.

Afin de pouvoir quantifier l'ensemble des particules retombées dans une jauge Owen, les eaux de rinçage récoltées ont été filtrées par filtration sous vide à l'aide d'un filtre en quartz préalablement pesé et rincé à l'eau ultrapure. Ce filtre a ensuite été séché pendant 2 h à l'étuve à 30 °C. Sa pesée après filtration et séchage permettant ainsi de connaître la masse de particules atmosphériques récoltées. La phase liquide, correspondant à la masse d'eau filtrée, a été récupérée, pesée et sera également analysée.

➢ *Lichens*

Les particularités anatomiques des lichens en font des organismes bien adaptés à l'étude des contaminants atmosphériques aussi bien gazeux que particulaires puisque ces végétaux sont très sensibles

à la pollution de l'air (Tiévant, 2001). Ces organismes sont formés par la symbiose d'un champignon avec une algue ou une cyanobactérie. Ils ne possèdent ni cuticule cireuse, ni système racinaire, ni stomate tout en constituant des populations stables et pérennes ayant une grande longévité et une activité biologique quasi-annuelle puisqu'ils réalisent la photosynthèse en continu (Van Haluwyn et Asta, 2014 ; Dron *et al.*, 2021). Ils ne sont donc pas capables de réguler leurs échanges gazeux avec l'atmosphère et sont donc naturellement exposés en continu aux contaminants présents dans l'air ambiant et à leurs retombées via les dépôts secs et humides (Boucheron et Martin, 2019).

Dans le cadre de la surveillance de la qualité de l'air, en France, la norme NF X43-904 de l'AFNOR a été publiée. Celle-ci décrit une méthode d'échantillonnage et de préparation des échantillons de lichens *in situ*. Le but étant de mesurer la bioaccumulation des polluants atmosphériques par ces organismes afin de mettre en évidence une source locale de pollution et/ou de sa zone d'influence, ou cartographier des niveaux de pollution de fond à l'échelle régionale, nationale, voire internationale. Cette approche relative permet également de comparer différents sites entre eux.

Tableau 3 : Types de phorophytes

	Hiver	Ete
L1	7 *Morus sp.*	9 *Morus sp.*
L2	3 *Fraxinus sp.*	1 *Prunus sp.* 4 *Fraxinus sp.*
L3	5 *Tamarix sp.*	3 *Populus sp* 4 *Tamarix sp.*
L4	1 *Populus sp* 7 *Tamarix sp.*	4 *Populus sp* 5 *Tamarix sp.*
L5	7 *Tamarix sp.*	9 *Tamarix sp.*
L6	6 *Tamarix sp.*	6 *Tamarix sp.*
L7	1 *Ficus sp.* 3 *Tamarix sp.* 1 *Quercus sp.*	7 *Tamarix sp.*



Figure 4 : Prélèvement de lichens X. parietina

Pour les mesures de bioaccumulation des polluants, l'espèce utilisée lors de cette étude est *Xanthoria parietina* (Figure 4). C'est un lichen foliacé composé d'un thalle de couleur jaune tendant vers le vert lorsqu'il est à l'ombre et vers l'orange lorsqu'il est en plein soleil, sa couleur variant en fonction de sa teneur en pariétine, un pigment synthétisé en présence de soleil (Van Haluwyn et Asta, 2014). Cette espèce est commune partout en France (Tiévant, 2001). Elle est nitrophile, basophile à subneutrophile et héliophile (Van Haluwyn et Asta, 2014). *X. parietina* a été utilisé dans de nombreuses études scientifiques (Augusto *et al.*, 2009 ; Vitali *et al.*, 2019) et est l'un des lichens les plus utilisés en biosurveillance de la qualité de l'air

(Van Haluwyn et Asta, 2014). Dans le Golfe de Fos et la Métropole Aix-Marseille-Provence, des mesures de bioaccumulation sur cette espèce de HAPs, PCDD-Fs, PCBs ou métaux, réalisées par l'IECP, ont montré l'impact de certaines activités industrielles locales sur les lichens (Dron *et al.*, 2016, Ratier *et al.*, 2018 ; Dron et al., 2021).

Dans le cadre de cette étude, deux campagnes de prélèvements ont été effectuées (hiver et été) sur 7 sites différents (Figure 2) :

- Hivernale : le 26 février 2020
- Estivale : le 2 juin 2020

Des prélèvements ont été réalisés sur les différentes essences d'arbres feuillus présentes sur chaque station (Tableau 3). Ainsi des thalles de *X. parietina* ont été récoltés sur les troncs d'arbres, à au moins 1,5 mètre de hauteur afin de limiter l'influence du sol sur la composition de l'échantillon. Ces prélèvements ont été réalisés sur l'ensemble des orientations du tronc afin que l'échantillon soit le plus représentatif possible de la qualité globale de l'air du site. Pour éviter toute contamination externe, les lichens ont été prélevés avec des gants, changés entre chaque station, et un couteau en céramique lavé à l'eau ultra-pure avant chaque utilisation. Ils ont ensuite été stockés dans des flacons en HPDE puis conservés à 4 °C.

Le pré-traitement des échantillons consistait à un tri des lichens (retrait des poussières, débris végétaux, écorces et espèces non souhaitées) effectué avec une pince en PPCO et un couteau en céramique préalablement lavés à l'eau ultrapure. Pour chaque station et par campagne, entre 5 et 8 g de lichens ont été triés puis congelés. Ils ont ensuite été lyophilisés pendant 72 h (−55 °C / 0,035 mbar, Christ-Alpha 1-4 LD) soit jusqu'à ce que la perte de masse de l'échantillon n'excède pas 5 % en 24 h. Cette méthode a permis d'éliminer l'eau contenue dans les échantillons, elle a été préférée au séchage à l'étuve puisqu'elle limite la perte d'éléments volatils. Leur broyage a ensuite été effectué à l'aide d'un broyeur à billes équipé de capsules et billes en zyrconium (Retsch MM 400) durant 2,5 min à une fréquence de 25 Hz afin d'obtenir une poudre très fine et homogène. Après le broyage, l'échantillon a été récupéré dans des flacons en PPCO, puis stocké à -30 °C en attendant la réalisation des analyses chimiques. Entre chaque échantillon, les capsules et billes ont suivi un protocole de lavage.

➢ Sols

Concernant les échantillons de sols, une seule campagne d'échantillonnage a eu lieu, les 5 et 11 mars 2020.

A chaque station, une zone de 10 * 10 m de côté a été délimitée afin de réaliser 9 prélèvements localisés au centre de la parcelle, à chaque coin et au milieu de chaque côté (Figure 5). Chaque point correspondait à un échantillonnage de sols en surface (0-15 cm) d'environ 250 cm^3 effectué avec une tarière manuelle. Ils ont ensuite été réunis dans un échantillon composite, homogénéisés puis conservés à 4 °C.

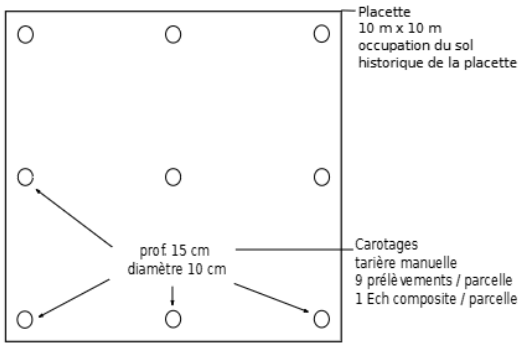


Figure 5 : Schéma de la méthode des prélèvements de sols après définition d'une parcelle de 10 m de côté

Au laboratoire, par la méthode de quartage, environ 250 g de chaque échantillon ont été sélectionnés pour les mesures de concentrations en HAPs.

Les échantillons destinés aux analyses ont été introduits dans des flacons spécifiques et lyophilisés pendant 72 h (−55 °C / 0,035 mbar, Christ-Alpha 1-4 LD), c'est-à-dire jusqu'à ce que leur perte de masse n'excède pas 5 % en 24 h. Par la suite, les échantillons de sol ont été broyés au mortier en agate et tamisés à 2 mm avant d'être conditionnés dans des flacons en PPCO à -30 °C.

II.5. Analyses des échantillons

A ce jour, environ 130 HAPs ont été identifiés et 16 sont retenus comme prioritaires par l'agence environnementale américaine (US-EPA) en raison de leur potentielle toxicité. Les analyses effectuées portent sur ces 16 HAPs (Tableau 4) qui sont les plus fréquemment recherchés et analysés dans les études de risque pour l'environnement (Rollin *et al.*, 2005 ; Girard *el al.*, 2011).

Après le pré-traitement des échantillons, les analyses des HAPs contenus dans les échantillons des jauges Owen, lichens, sols et filtres ont été réalisées au LCE d'Aix-Marseille Université. Une extraction solide/liquide à haute pression et haute température (ASE 350 Dionex) a été réalisée sur les matrices sols, lichens et filtres (atmosphériques et matière en suspension des jauges Owen). Un étalon interne (anthracène d10) a été ajouté à la prise d'essai avant l'extraction afin de compenser les incertitudes expérimentales et analytiques. Pour les sols, la prise d'essai a été mélangée à de la terre de diatomée afin d'augmenter l'efficacité d'extraction. L'extraction a été réalisée à 100 °C, 100 bars avec un mélange dicholométhane/acétone (1:1) pour les filtres et les sols. Pour les lichens, le dichlorométhane seul a été choisi comme solvant d'extraction. Une étape de purification sur cartouche de silice a été ajoutée pour la matrice lichénique afin d'éliminer les composés polaires et améliorer la sensibilité analytique. Les extraits récupérés ont été concentrés et transférés dans l'hexane pour atteindre un volume final de 500 µL puis ils ont été filtrés sur filtre PTFE 0,45 µm.

Pour la phase liquide issue de la filtration des jauges Owen, une extraction en phase solide sur une cartouche C18 a été effectuée. Les HAPs ont été élués de la cartouche par le dichlorométhane puis l'extrait a été évaporé à 500 µL et filtré sur filtre PTFE 0,45 µm.

Les analyses chimiques ont été réalisées par chromatographie gazeuse (Trace GC Thermo) couplée à un spectromètre de masse triple quadrupôles (XLS Quantum Thermo) en mode « fullscan » pour avoir le spectre de masse complet et en mode « SIM (Single Ion Monitoring) » pour la quantification.

Tableau 4 : Description des 16 HAPs définis comme prioritaires par l'EPA et analysés dans cette étude

Nom	Symbole	Nombre de cycles	Formule chimique
Naphtalène	Nap	2	$C_{10}H_8$
Acénaphtylène	Acy	3	$C_{12}H_8$
Acénaphtène	Ace		$C_{12}H_{10}$
Fluorène	Fle		$C_{13}H_{10}$
Anthracène	Ant		$C_{14}H_{10}$
Phénanthrène	Phe		$C_{14}H_{10}$
Fluoranthène	FlA	4	$C_{16}H_{10}$
Pyrène	Pyr		$C_{16}H_{10}$
Benzo(a)anthracène	BaA		$C_{18}H_{12}$
Chrysène	Chr		$C_{18}H_{12}$
Benzo(a)pyrène	BaP	5	$C_{20}H_{12}$
Benzo(b)fluoranthène	BbF		$C_{20}H_{12}$
Dibenzo(ah)anthracène	DBA		$C_{22}H_{14}$
Benzo(k)fluoranthène	BkF		$C_{20}H_{12}$
Benzo(ghi)pérylène	Bpe	6	$C_{20}H_{12}$
Indeno(1,2,3-cd)pyrène	Ipy		$C_{22}H_{12}$

II.6. Traitement des données

Une fois les analyses effectuées, les données collectées ont été traitées avec les logiciels LibreOffice calc et R 3.5.2 pour les calculs de coefficients de corrélation et le package OpenAir pour le traitement des données atmosphériques. De plus, une Analyse factorielle multiple des correspondances (AFCM) a été réalisée entre les variables atmosphériques (vitesse et direction du vent, concentrations en SO2, PM10 et BC) et les concentrations en HAPs relevées tous les 6 jours. Elle est utilisée pour décrire les relations entre p (p > 2) variables qualitatives et quantitatives simultanément observées sur n individus.Les cartographies ont été réalisées avec le logiciel QGIS 3.8.

III. RÉSULTATS & DISCUSSIONS

III.1. Cartographie des teneurs en HAPs dans les sols

Une analyse des HAPs a été réalisée sur les 10 échantillons de sols de surface prélevés à Port-Saint-Louis-du-Rhône à l'hiver 2020, la cartographie des teneurs mesurées est présentée dans la Figure 6.

Tous les sols de la ville contiennent des HAPs mais les concentrations rencontrées y sont très hétérogènes. Elles vont de 222 µg/kg (S2) à presque 31 000 µg/kg (S1). Sachant que les teneurs naturelles des sols en HAPs varient de 100 à 1 000 µg/kg (INERIS, 2005), ces résultats mettent donc en évidence une contamination importante des sols sur plusieurs sites, notamment S1, localisé sur une friche industrielle présentant une pollution historique aux HAPs, mais aussi S5 et S9, présentant des teneurs supérieures à 10 000 µg/kg de HAPs totaux et S3, S8, S6 et dans une moindre mesure S10 présentant des teneurs proches ou supérieures à 2 000 µg/kg. Ainsi, la cartographie met en exergue un gradient de concentrations décroissant depuis S1.

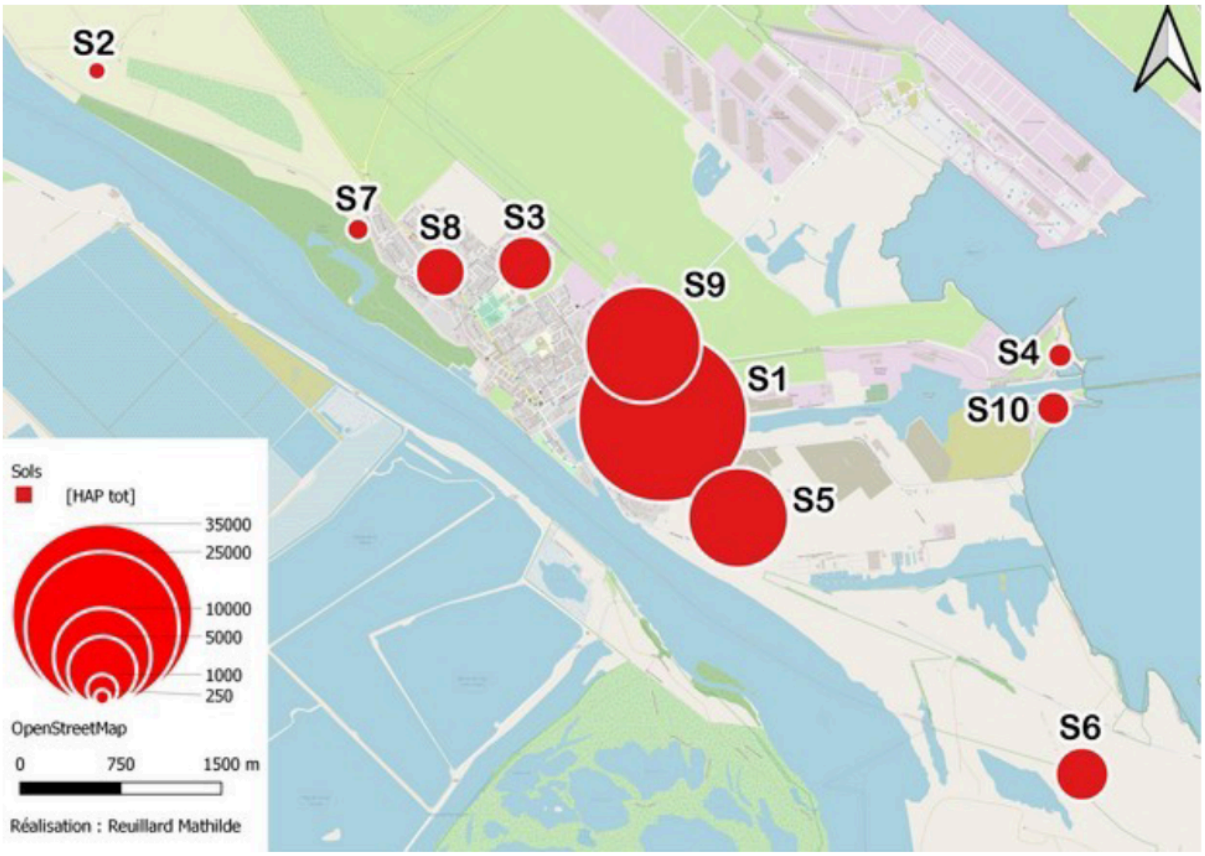


Figure 6 : Concentrations totales des 16 HAPs mesurées dans les échantillons composites récoltés sur 10 sites de prélèvements.

Les profils HAP observés au sein des échantillons de sols sont présentés dans la Figure 7.

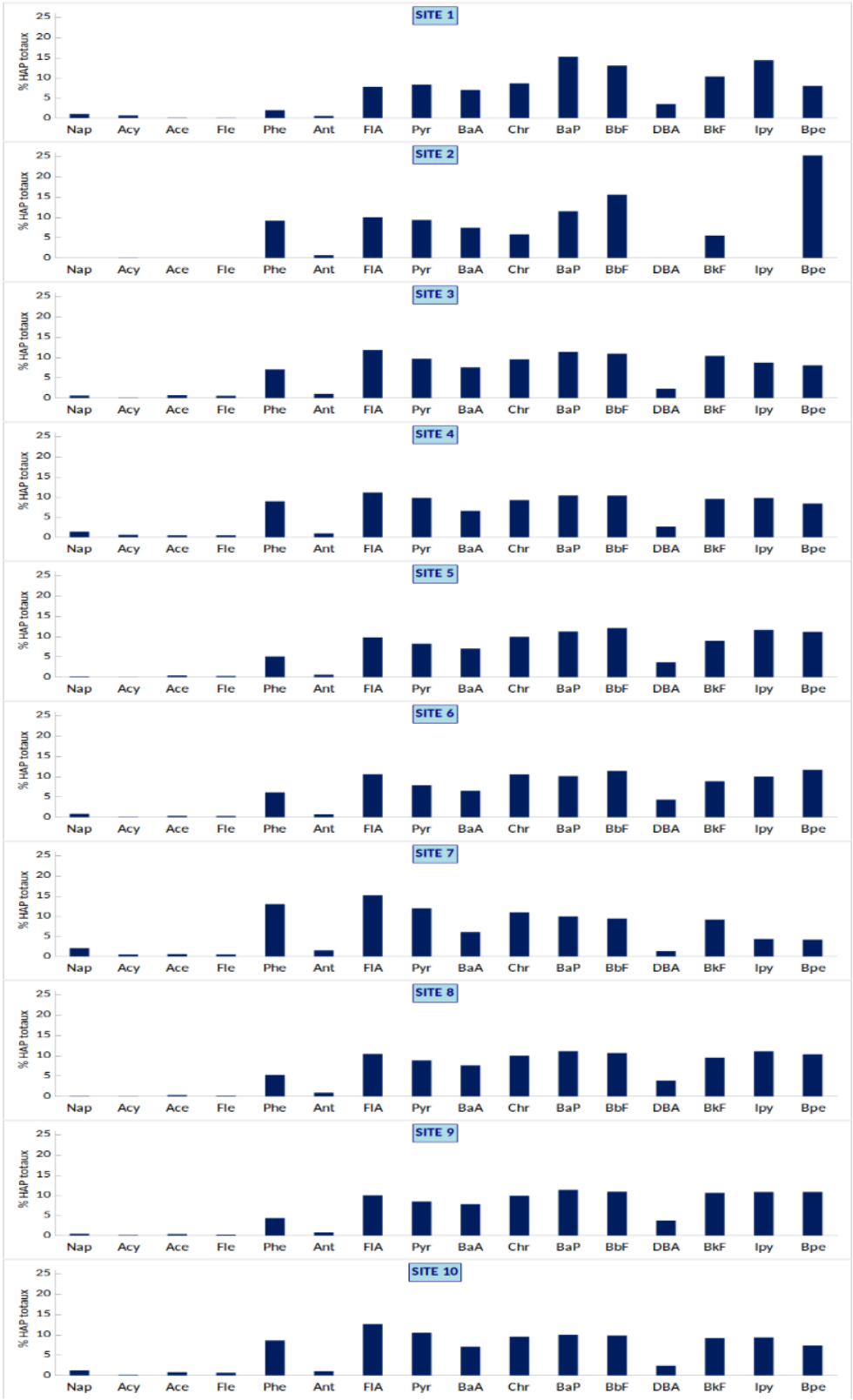


Figure 7 : Profils HAP (en % HAPtot) relevés dans les différents sols échantillonnés sur la commune

Globalement, la répartition des HAPs est homogène, notamment la proportion des congénères ayant 4 et 5 cycles aromatiques. Ainsi, l'ensemble des échantillons de sols présente une majorité de HAPs lourds, témoignant d'une contamination historique. En effet, les processus de vieillissement tels que la lixiviation (solubilisation), l'évaporation, la volatilisation et la biodégradation peuvent modifier la distribution des HAPs (Wilcke, 2000) avec notamment des HAPs de faible poids moléculaire plus volatils et plus sensibles à la dégradation microbienne.

De possibles apports atmosphériques peuvent s'y ajouter. En effet, les sites les plus proches de la ZIP (site 4 et 10, Figure 7) montrent une part de HAPs légers plus importante que dans les autres sites, pouvant témoigner d'un impact de l'activité industrielle actuelle sur les sols de la ville.

Afin de mieux comprendre les liens entre les différents profils HAP dans les sols, des coefficients de corrélations de Pearson ont été calculés à partir des proportions de chaque congénère HAP (Figure 8).

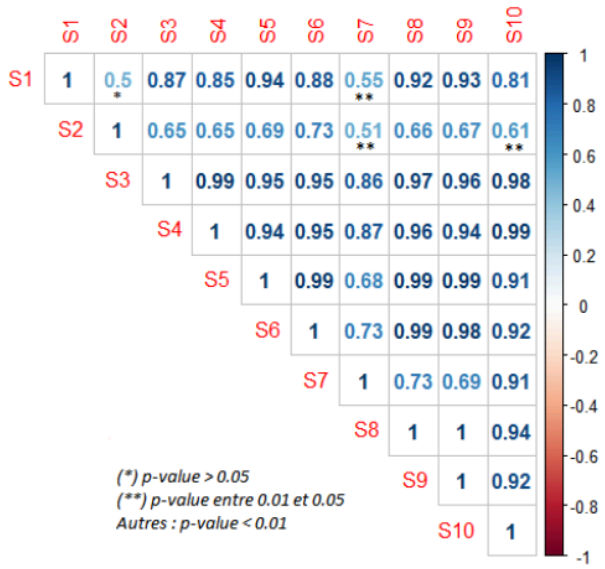


Figure 8 : Coefficients de corrélation de Pearson calculés entre les compositions en congénères HAP relevées dans les échantillons de sol (n = 16).

Les coefficients de corrélation retrouvés entre les sites correspondent au gradient de concentrations observé sur la cartographie. En effet, pour le site de la friche industrielle (S1), les valeurs les plus hautes observées illustrent les corrélations avec S5, S9 et S8. A noter également que les corrélations avec S3, S4, S6 et S10 restent élevées indiquant une répartition des congénères HAP commune dans les sols des différents sites.

Le site 2 et dans une moindre mesure le 7, localisés au nord de la ville et les plus éloignés du site 1, présentent les coefficients de corrélations les plus faibles, leur similitude avec les autres profils est donc la

plus faible. A l'exception des sites 7 et 2, les autres lieux de prélèvements ont tous les coefficients de corrélations supérieurs à 0,8, synonyme d'une forte correspondance dans les profils de congénères HAP.

III.2. Biosurveillance atmosphérique

Des prélèvements de thalles de *X.parietina* ont été réalisés sur 7 stations réparties sur le territoire communal afin d'évaluer la bioaccumulation des HAPs dans les lichens lors des deux campagnes d'échantillonnage, hivernale et estivale, et de cartographier l'exposition atmosphérique en HAPs de Port-Saint-Louis-du-Rhône (Figure 9).

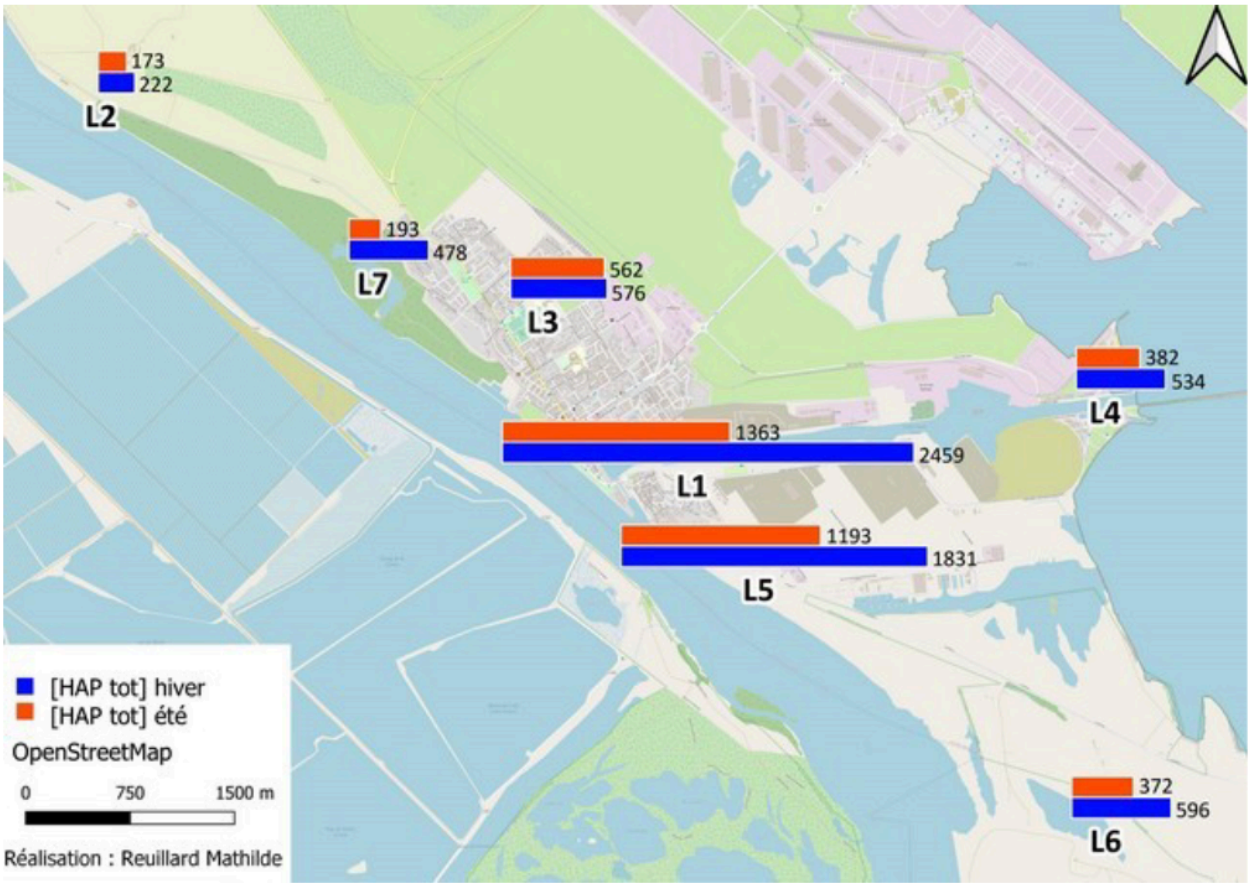


Figure 9 : Concentrations totales des 16 HAPs mesurées dans les thalles de X.parietina récoltés sur les 7 sites de prélèvement

Les concentrations relevées dans les lichens témoignent d'une exposition continue aux HAPs et ce durant les deux périodes étudiées. Ce phénomène a été plus marqué en hiver.

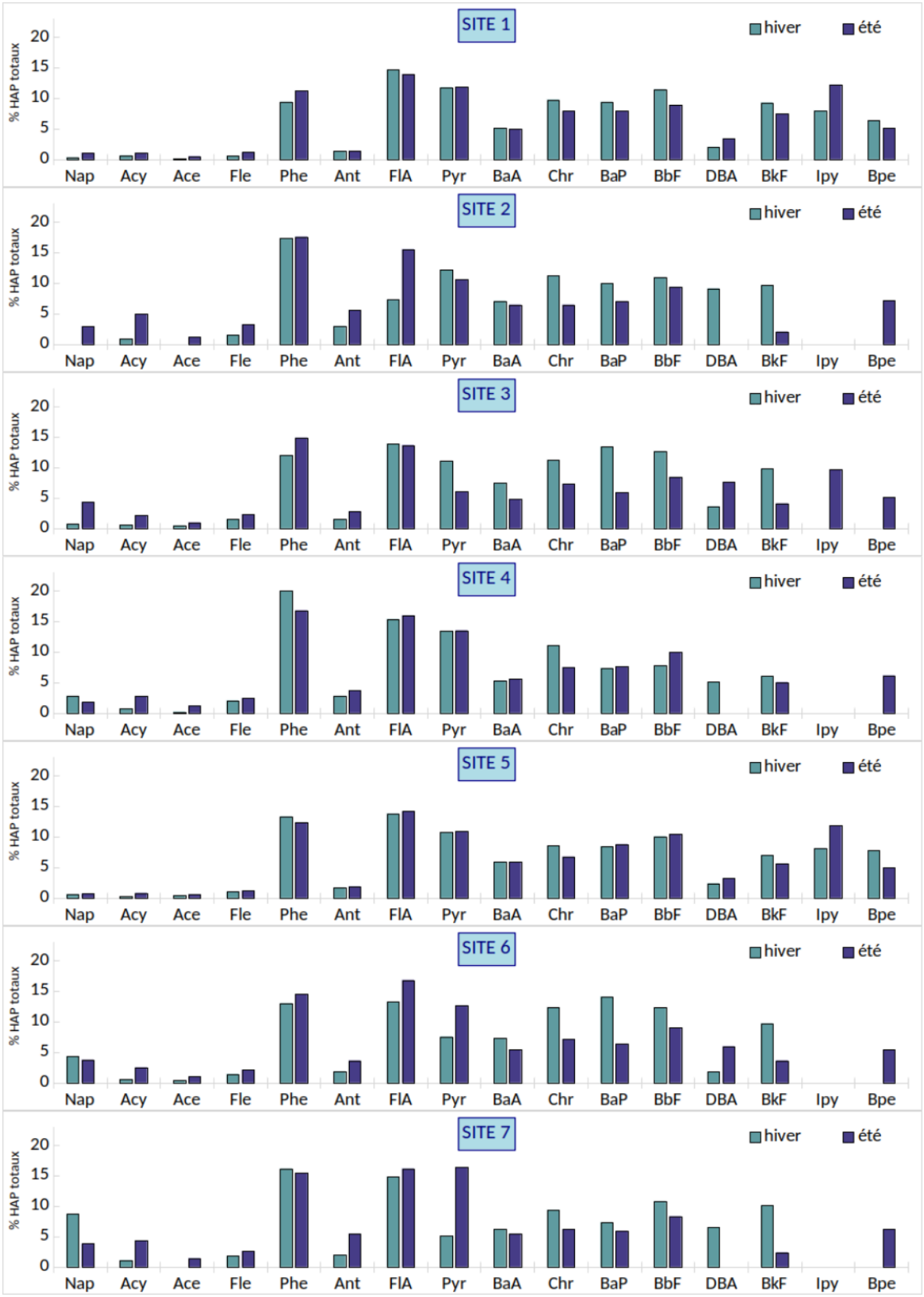


Figure 10 : Profils HAP (en % HAPtot) relevés dans les lichens échantillonnés sur la commune

La répartition de ces concentrations est très hétérogène, celles-ci ont varié entre 173 µg/kg (L2) à 1363 µg/kg (L1) en été, et 222 µg/kg (L2) à 2459 µg/kg (L1) en hiver. Les teneurs en HAPs mesurées dans les lichens sont ainsi élevées sur l'ensemble de la commune, exceptées sur le site 2 et, dans une moindre mesure, le 7 au regard des teneurs mesurées sur le reste du territoire métropolitain par l'IECP (Ratier, 2015 ; Ratier *et al.*, 2018) ou dans le cadre d'autres travaux de recherche menés sur des zones industrialo-portuaires (Augusto *et al.*, 2010).

Le site 1 présente les lichens les plus imprégnés. Il est suivi du site 5, qui est la zone de prélèvement la plus proche du site 1. Quant au site 3, situé en plein centre-ville de Port-Saint-Louis-du-Rhône, malgré les différences saisonnières d'exposition, les concentrations retrouvées n'ont quasiment pas varié d'une campagne à l'autre et sont restées élevées par rapport aux quatre sites restants. Pour finir, lors des deux campagnes, les mesures les plus faibles ont été réalisées au niveau du site 2, localisé en zone agricole de riziculture.

Les profils HAP relevés au sein des échantillons de lichens sur les différents sites sont détaillés dans la Figure 10. Sur le site 1 et 5 et dans une moindre mesure le 3, la répartition des congénères HAP varie peu entre l'été et l'hiver, les lichens de ces zones ont donc été soumis à des influences similaires lors des deux saisons. Les profils HAP sur ces sites montrent une dominance des HAPs lourds en été comme en hiver. Sur les sites 2, 4, 6 et 7, le profil HAP présentent une proportion plus importante de congénères légers et semble confirmer l'influence de sources d'exposition différentes aux 3 autres sites.

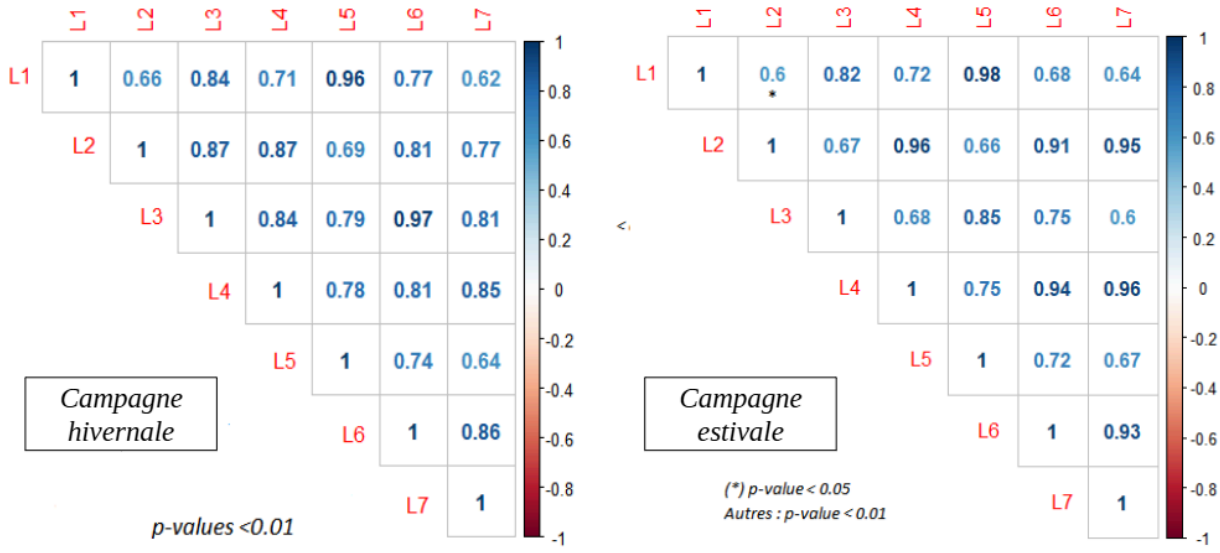


Figure 11 : Coefficients de corrélation de Pearson calculés à partir de la répartition des congénères HAP des échantillons de lichens au cours de la période hivernale et estivale (n = 16)

Des coefficients de corrélations de Pearson ont été calculés à partir de la proportion de chaque congénère pour les deux campagnes d'échantillonnage (Figure 11). Ces coefficients indiquent une corrélation positive des différents sites ($R > 0,6$, $p < 0,05$) et permettent de mettre en évidence les échantillons de lichens ayant une répartition des HAPs semblable ainsi que les variations de ces corrélations en fonction des saisons. Les coefficients de corrélation sont plus élevés en été, notamment entre les sites 2, 4, 6 et 7 qui sont les plus éloignés du centre-ville. Cela montre que la répartition des HAPs dans ces échantillons était relativement proche en période estivale. Les concentrations plus faibles, relevées notamment sur les sites 2 et 7 et inclues dans la gamme de valeurs des sites non exposés aux émissions anthropiques (Le Viguerait, Grans) lors des campagnes de biosurveillance lichénique menées par l'Institut Ecocitoyen (Dron et al, 2016 ; Ratier et al., 2018), pourraient renseigner sur le bruit de fond local en HAPs. La forte corrélation entre L1 et L5 et, dans une moindre mesure, L3, observée en hiver comme en été, montre que la répartition des HAPs est semblable sur ces sites et qu'elle a subi les mêmes influences au cours du temps.

III.3. Teneurs en HAPs dans les retombées atmosphériques totales

La mise en place de jauges Owen a permis de comparer l'exposition atmosphérique aux HAPs apportés par les particules sédimentables au niveau de trois points de prélèvements, en période hivernale et estivale.

Durant la campagne hivernale, un cumul des précipitations de 28,5 mm a été enregistré ainsi qu'une température moyenne de 10,2 °C. Quant à la campagne estivale, il y a eu un cumul des précipitations de 36,8 mm et une température moyenne de 20,3 °C. Les vents étaient majoritairement issus du nord-ouest et du sud-est en hiver alors qu'en été une part plus importante de sud-ouest a été obersvée (Annexe 2).

Les résultats présentés dans le Tableau 5 renseignent sur les quantités de particules sédimentables (dépôts secs) et de HAPs totaux contenus dans les dépôts totaux (secs et humides) retombés sur le sol ainsi que sur les concentrations en HAPs des particules sédimentables recueillies.

Les quantités de retombées atmosphériques relevées montrent un empoussièrement fort sur le site 1 en hiver avec une légère baisse observée en été. Les sites 3 et, dans une moindre mesure 2, présentent un faible empoussièrement en hiver. Des problèmes de mesures sur les échantillons estivaux de ces deux sites ont été rencontrés, expliquant l'absence de données en été.

Les quantités de HAPs apportées par les particules sédimentables ont été plus importantes en hiver qu'en été. Les dépôts de HAPs totaux en hiver ont été élevés sur l'ensemble des sites, et particulièrement sur le site 1.

Lors de la campagne hivernale, le site 1 (friche industrielle) a présenté le plus important dépôt de HAPs, plus de 6 fois supérieur aux autres sites, en lien avec l'empoussièrement important du site. Malgré des apports en HAPs moins importants en été, cette différence était également visible, mais avec un écart moindre entre les mesures réalisées sur les sites 1 et 3 (centre-ville). Quant au site 2, localisé en dehors du centre-ville, les concentrations observées ont été largement plus faibles que celles observées sur le site 1, réduites d'un facteur 8 quelque soit la période.

Tableau 5 : Apports de particules sédimentables (PS) et de HAPs par unité de surface et de temps

	Campagne hivernale			Campagne estivale		
	Site 1	**Site 2**	**Site 3**	**Site 1**	**Site 2**	**Site 3**
Dépôts secs (mg/m²/j)	71,0	18,3	9,8	58,3		
HAPtot déposés (ng/m²/j)	2922,4	360,9	432,2	873,4	126,8	769,0
HAPtot dans PS (µg/g)	40,3	18,1	42,2	14,4		

Afin d'étudier la charge des particules, les concentrations de HAPs totaux contenus dans 1 g de dépôt sec ont été calculées (Tableau 5). Lors de la campagne hivernale, les retombées atmosphériques recueillies présentaient une charge importante en HAPs sur les site 1 et 3 avec respectivement des concentrations de 40,3 et 42,2 µgHAP/g. Le site 2, situé en zone agricole, ne présentait qu'un faible apport de particules (18,3 mg/m²/j) faiblement chargées en HAPs (18,1 µg/g). En période estivale, la charge des particules récoltées au sein du site 1 était faible et inférieure à celle mesurée en période hivernale sur l'ensemble des sites. Cette différence peut être consécutive aux conditions météorologiques, avec une part de vent de sud-ouest plus importante en été et non soumis à l'influence des émissions anthropiques et de fortes températures relevées sur la campagne estivale pouvant entraîner une volatilisation ou dégradation de certains congénères (Qiu *et al.*, 2013).

Ces résultats semblent indiquer une source locale de HAPs via les retombées atmosphériques de particules sédimentables sur le pourtour du centre-ville et le Canal Saint-Louis plus particulièrement en hiver, dont les sources d'émissions pourraient être liées à la combustion de biomasse (chauffage résidentiel, écobuage) ou à l'envol de poussières de sol contaminées aux HAPs.

A noter que la majorité des HAPs contenus dans les jauges Owen était issue des dépôts secs, donc de la phase particulaire, ces molécules étant de nature hydrophobe (Tableau 6). Une différence entre les sites est observée avec une part des dépôts humides plus importante au niveau du site 2. Cela reste en cohérence avec le contexte de ce point de prélèvement puisqu'il est situé en dehors du centre-ville et à proximité du Rhône, en pleine zone agricole. De même, la part de HAPs en solution est plus importante lors de la campagne estivale pour les 3 sites.

La répartition des congénères HAP dans les dépôts de particules sédimentables en été et en hiver est présentée dans la Figure 12. Les variations de composition entre les deux campagnes d'échantillonnage étaient beaucoup plus importantes au niveau du site 2 avec une majorité de HAPs lourds (5 à 6 cycles) présents en hiver et une majorité de HAPs légers en été. Cette répartition des congénères HAP sur ce site met en avant deux sources distinctes de HAPs en fonction des saisons. La prédominance des HAPs lourds en hiver semble privilégier une origine pyrolytique telle que les phénomènes d'écobuage (Sylvestre *et al.*, 2017). Les faibles concentrations observées en été ne permettent pas de conclure sur le profil HAP déterminé sur cette période.

Les répartitions des HAPs au sein des sites 1 et 3 sont semblables pour les deux campagnes. Elles ont également subi les mêmes variations avec une diminution de la part des HAPs les plus lourds et une augmentation de la part des HAPs légers en été. Cette similitude dans la composition des dépôts pourrait indiquer une origine commune à ces deux sites. Par ailleurs, la plus faible proportion de HAPs lourds en été sur l'ensemble des sites peut expliquer la proportion plus importante de HAPs en solution comme observé dans les dépôts humides en été, les HAPs légers étant plus solubles dans l'eau (Neff et al., 2005).

Il est à noter un dépôt relativement important de BaP sur les sites 1 et 3 avec respectivement 193,8 et 55,9 ng/m^2/j en moyenne entre l'hiver et l'été, alors que le BaP n'a pas été relevé sur le site 2 en été et qu'un faible apport a été enregistré en hiver (42,9 ng/m^2/j).

Tableau 6 : Pourcentages des HAPs totaux dans les dépôts secs et humides récoltés avec les jauges Owen

Type de dépôts	Campagne hivernale			Campagne estivale		
	Site 1	**Site 2**	**Site 3**	**Site 1**	**Site 2**	**Site 3**
Dépôts secs	100	93	97	96	81	93
Dépôts humides	0	7	3	4	19	7

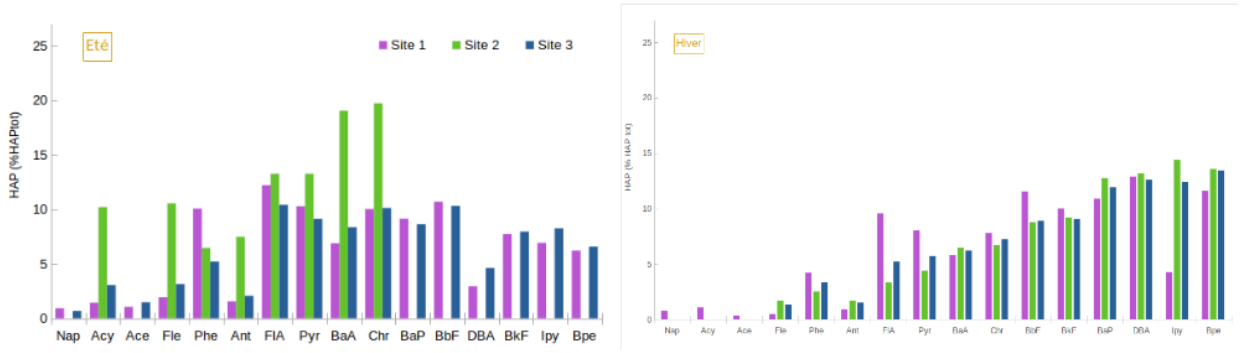


Figure 12 : Profils HAP relevés dans les particules sédimentables récoltées avec des jauges Owen sur les trois sites de prélèvements en été et en hiver.

III.4. Exposition atmosphérique de Port-Saint-Louis-du-Rhône

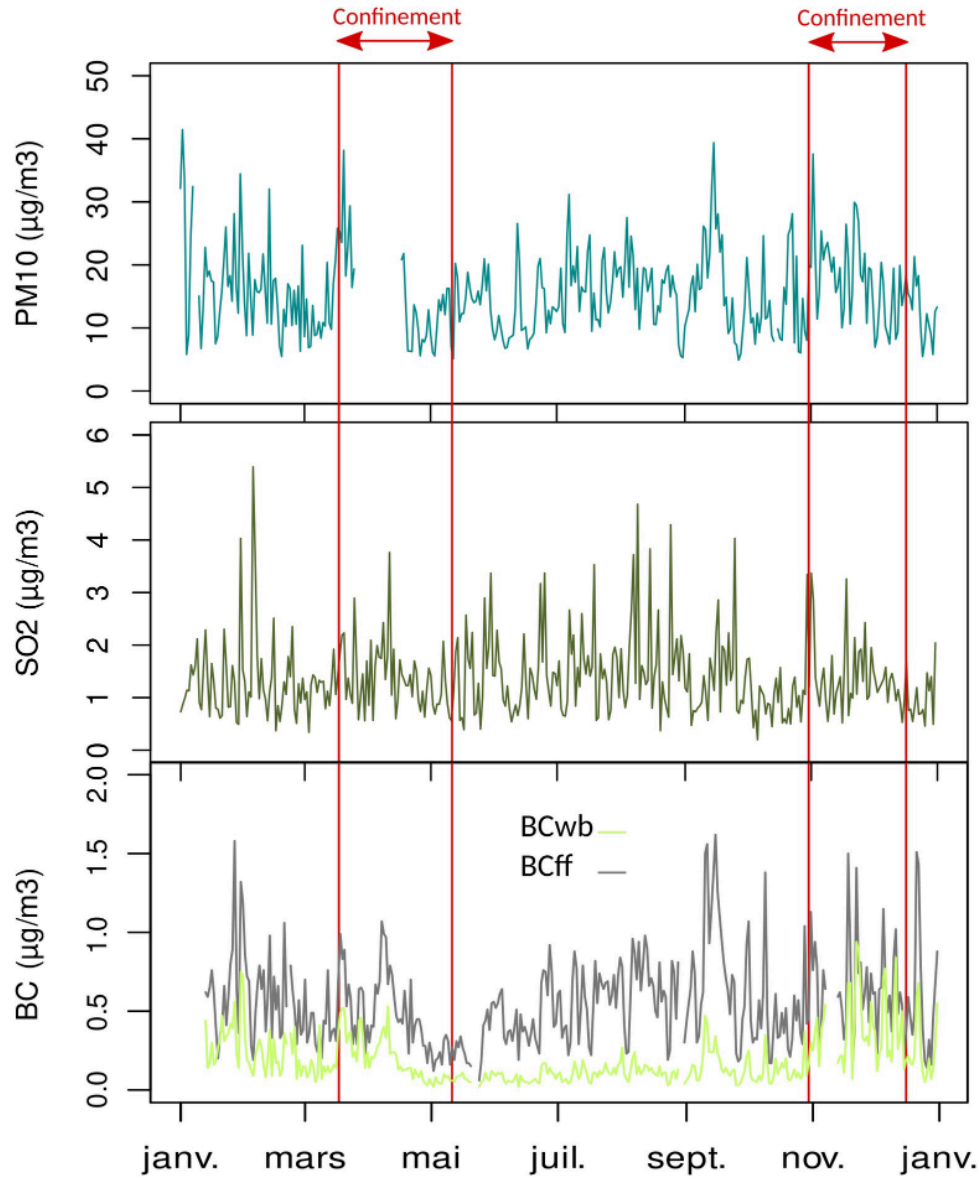


Figure 13 : Concentrations moyennes journalières de PM10, BC (BC_{WB} : BC issu de la combustion de biomasse et BC_{FF} : BC issu de la combustion de carburants fossiles) et SO_2 mesurées à la station AtmoSud de Port-Saint-Louis-du-Rhône du 01/01/20 au 31/12/20.

Réglementation (AtmoSud, 2020)

PM10 : 20 µg/m³ [annuel - OMS] → Objectif de qualité / 50 µg/m³ [journalier - OMS] → Valeur limite à ne pas dépasser 3 jours/an / 80 µg/m³ [journalier]→ Seuil d'alerte

SO_2 : 20 µg/m³ [journalier - OMS] → Valeur limite pour la protection des écosystèmes / 125 µg/m³ [journalier – valeur limite CE] (à ne pas dépasser plus de 3 jours/an) → Valeur limite pour la protection de la santé humaine / 50 µg/m³ [annuel – objectif de qualité France] → Valeur cible pour la protection de la santé humaine

Différentes données ont été collectées au sein de la station AtmoSud de Port-Saint-Louis-du-Rhône. La Figure 13 présente l'évolution des moyennes journalières des concentrations de PM10, carbone suie ou Black Carbon (BC) et SO_2 (en µg/m³) calculées à partir des données quart-horaires du 01 janvier au 31 décembre 2020. Sur le graphique du BC figure également les parts moyennes journalières mesurées de ses deux sources (combustion de biomasse ou de combustible fossile). Les pourcentages de données quart-horaires récoltées pour chaque paramètre étaient respectivement de 91,6, 78,9 et 92,0 % pour les PM10, le SO_2 et le BC, ces pourcentages exclus les valeurs négatives relevées pour les différents paramètres au cours de la campagne.

Les concentrations annuelles moyennes et les gammes de valeurs pour les différents paramètres calculées à partir des données quart-horaires étaient de 15,4 µg/m³ [0,0-153,9 µg/m³], 1,4 µg/m³ [0,0–48,2 µg/m³], 0,6 µg/m³ [0,0–14,9 µg/m³] et 0,2 µg/m³ [0,0–4,2 µg/m³] respectivement pour les PM10, le SO_2, le BCff et le BCwb. Des variations importantes ont ainsi été observées pour l'ensemble des paramètres.

Pour les PM10, aucun jour de dépassement du seuil d'information et de recommandation (50 µg/m³) n'a été relevé au cours de l'année 2020. Cependant, on dénombre 73 jours de dépassement de l'objectif de qualité fixé à 20 µg/m³ en moyenne annuelle dans la réglementation française, et plusieurs pics supérieurs à 30 µg/m³ en moyenne journalière relevés en hiver et en été.

Le carbone suie (BC) est un traceur de combustions locales et incomplètes de combustibles fossiles (BCff) ou de biomasses (BCwb). Son évolution sur l'année 2020 a montré des concentrations de BC plus importantes en hiver qu'en été, avec des moyennes journalières plus élevées et de nombreux pics de concentrations observés en période hivernale. Il est à noter que la part de BC issue de la combustion de combustibles fossiles (BCff) était largement supérieure à la part issue de la combustion de biomasses végétales (BCwb) sur l'ensemble de l'année. Une saisonnalité était aussi visible dans les sources de BC avec une part significativement plus grande du BCwb en période hivernale et automnale (01/01 – 14/04 et 03-11 – 31/12) qu'au cours du printemps et de l'été avec respectivement 32,1 % contre 17,6 %. Cette augmentation peut s'expliquer par l'utilisation du chauffage au bois dans les habitations et éventuellement par la pratique de l'écobuage sur la plaine du Rhône.

Concernant les moyennes journalières de SO_2, considéré comme un traceur des émissions industrielles, un maximum de 5,4 µg/m³ a été mesuré en moyenne journalière ce qui est très inférieur aux valeurs cibles de la réglementation française, fixée à 20 µg/m³ pour la protection des écosystèmes et à 125 µg/m³ pour la protection de la santé humaine. Contrairement au BC, l'évolution des concentrations journalière en SO_2 n'était pas marquée par un effet de saisonnalité, de nombreux pics de concentration étant observés tout au long de l'année.

Les concentrations horaires relevées pour l'ensemble de ces paramètres témoignent d'épisodes de pollution importants mais de courte durée sur la commune avec des moyennes horaires maximales très élevées pour l'ensemble de ces paramètres, de 143,3, 26,0 et 9,2 µg/m³ respectivement pour les PM10, le

SO_2, et le BCtot (les maximales en concentrations quart-horaires sont respectivement de 153,9, 48,2 et 16,0 µg/m^3).

A noter que le comptage de particules ultrafines (PM < 1 µm) n'a été réalisé que pendant deux mois à cause de problèmes techniques, l'exploitation de ces données est donc limitée. Cependant, une corrélation a été observée au cours de la période du 08/01/20 au 03/03/20 entre les teneurs en SO_2 et le nombre de particules ultrafines (R = 0,45, p < 0,001) mettant en avant l'influence des émissions industrielles sur les apports de ces particules. Au contraire, une faible corrélation a été observée entre les teneurs en SO_2 et les teneurs en PM10 et BC sur l'ensemble de la période de mesure indiquant la faible influence de l'activité industrielle sur les apports en PM10 et BC sur la ville (R = 0,27 et 0,24, p > 0,001) (Figure 14). Les teneurs en PM10 présentaient par contre une forte corrélation avec les teneurs en BC (R = 0,56, p < 0,001).

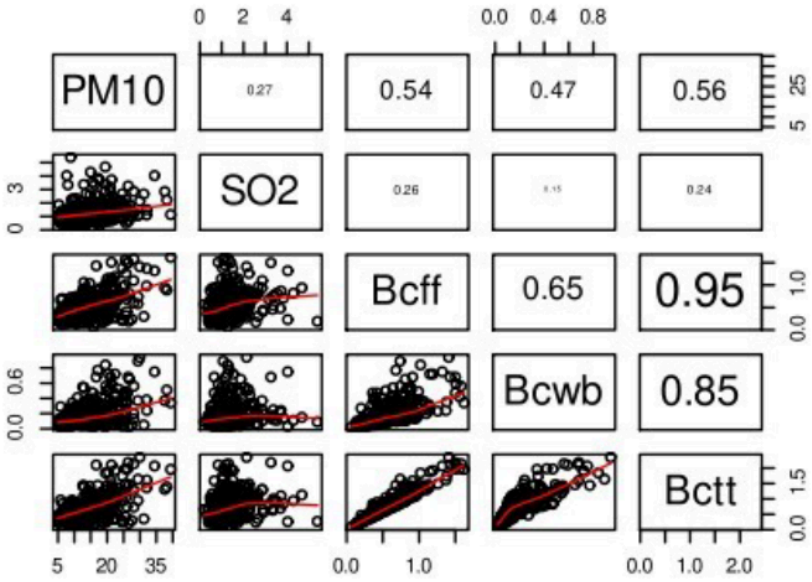


Figure 14 : Coefficients de corrélation de Pearson calculés à partir des moyennes journalières des différents paramètres atmosphériques mesurés (n = 366).

III.5. Teneurs en HAPs dans les PM10

Durant cette étude, les concentrations des 16 HAPs contenus dans les PM10 ont été mesurées. Cette donnée a permis d'évaluer l'exposition de Port-Saint-Louis-du-Rhône et d'évaluer la contribution des PM10 dans les apports de HAPs au cours du temps. Ainsi, des PM10 ont été prélevées sur filtres tous les six jours du 07/01/20 au 31/12/20 sur lesquels les HAPs ont été analysés. Le graphique présenté à la Figure 15

illustre les variations des concentrations moyennes en PM10 (axe primaire) etdes teneurs en HAPs (axe secondaire) mesurées au cours du temps.

Ces résultats permettent de constater que les PM10 prélevées à Port-Saint-Louis-du-Rhône ont systématiquement transporté des HAPs, ce qui met en évidence la contribution des PM10 dans la contamination diffuse en HAPs de la ville. Ainsi, les niveaux moyens annuels de HAPs mesurés dans les PM10 à Port-Saint-Louis-du-Rhône étaient comparables voire supérieurs aux teneurs mesurées à Paris en 2012, notamment pour les congénères BkF (0,27 contre 0,10 ng/m³ à Paris), DBA (0,07 contre 0,02 ng/m³), BaP (0,16 contre 0,17 ng/m³) et IpY (0,23 contre 0,18 ng/m³) (AirParif, 2013).

L'évolution des concentrations en HAPs a montré des valeurs plus élevées en période hivernale et automnale, de janvier à mars et d'octobre à décembre, avec une concentration maximale en HAPs de 19,6 ng/m³ mesurée le 02/11/20. A noter que cet effet de saisonnalité ne semblait pas s'appliquer aux PM10.

Par ailleurs, les pics de concentrations en HAPs n'étaient pas forcément corrélés à ceux en PM10 semblant indiquer que les PM10 n'étaient pas les seuls contributeurs des HAPs atmosphériques. En effet, ceux-ci peuvent aussi être déposés via les particules sédimentables, ou les PM2,5 et les particules ultrafines dont la masse reste négligeable par rapport aux PM10, et qui peuvent ainsi avoir une évolution propre.

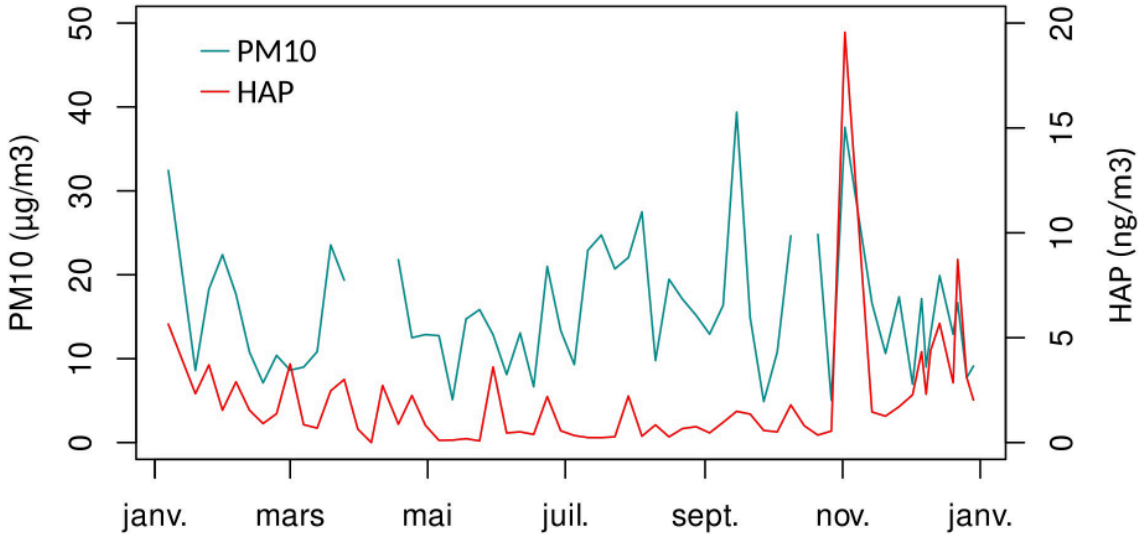


Figure 15 : Evolution des concentrations en HAPs totaux (sur filtres PM10) et en PM10 (moyennées à la journée) mesurées du 07/01/20 au 31/12/20 à la station AtmoSud de Port-Saint-Louis-du-Rhône

Pour mieux apprécier l'apport de HAPs par les PM10, la charge des particules en HAPs a été calculée et est présentée dans la Figure 16 en fonction du temps. Une saisonnalité dans la charge en HAPs des particules a également été observée puisque les PM10 présentaient une proportion plus importante de HAPs en hiver. Les journées du 02/11/20 et 22/12/20 se distinguaient avec une charge maximale

respectivement de 520,5 et 523,5 µgHAP/gPM10, les concentrations les plus fortes étant ensuite présentes entre décembre et mars. Ceci semble ainsi mettre en évidence l'influence des sources locales, et plus particulièrement des émissions domestiques liées à l'utilisation de moyens de chauffage au bois, dans les apports en HAPs par les PM10, observées essentiellement lors de la période hivernale. Cette différence peut être accentuée, comme indiqué précédemment, par les modifications des conditions météorologiques influençant la répartition et la forme chimique des polluants dans l'air, entre phase particulaire privilégiée en saison froide, et phase gazeuse avec une plus grande volatilisation des HAPs sous forme COV en été (Qiu *et al.*, 2013).

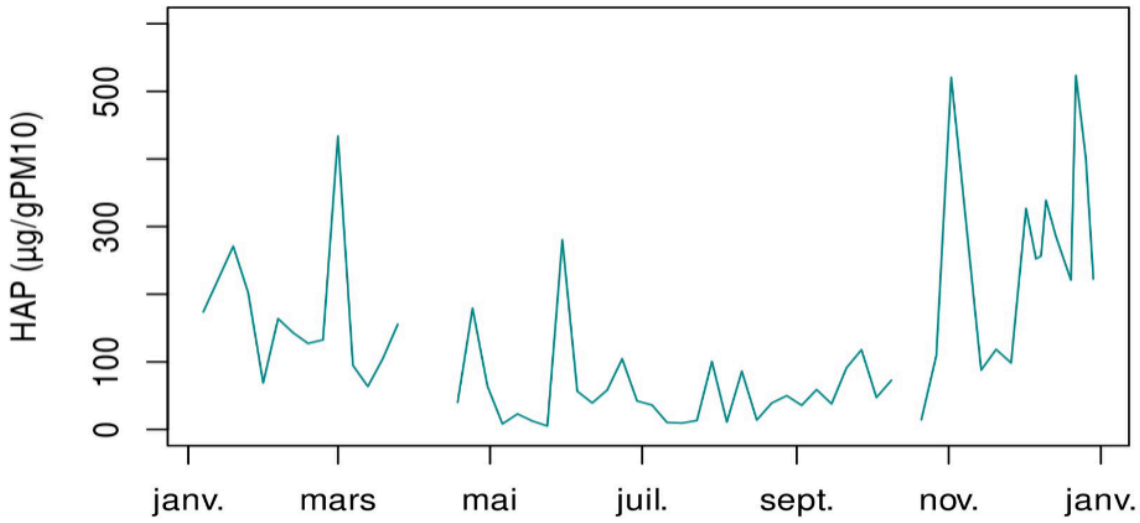


Figure 16 : Quantités de HAPs contenus dans les PM10 (en µg HAP/g particules) du 07/01/20 au 31/12/20 prélevées à la station AtmoSud de Port-Saint-Louis-du-Rhône

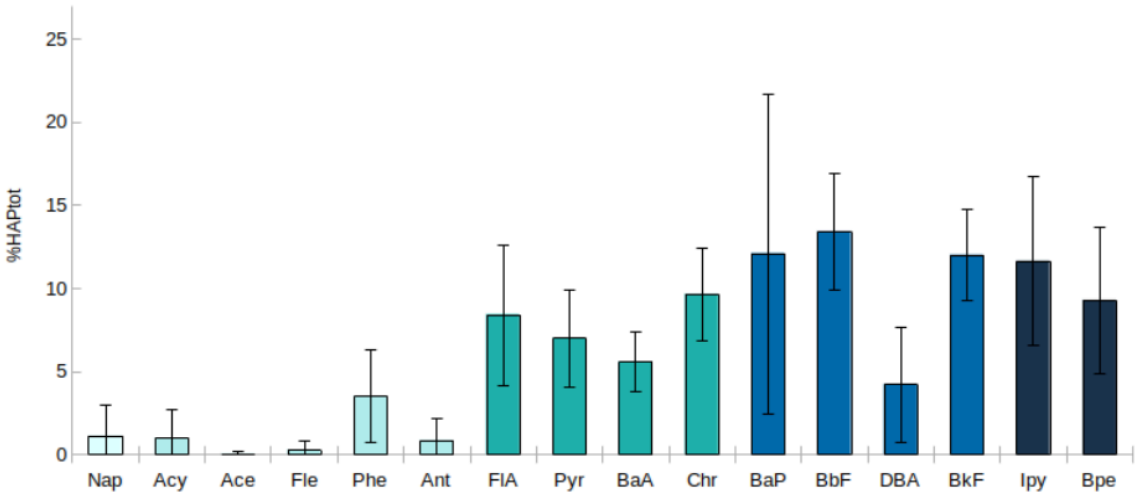


Figure 17 : Profil moyen des HAPs en pourcentage de HAPs totaux récoltés sur les filtres PM10 du 07/01/20 au 31/12/20

Les concentrations moyennes des 16 HAPs retrouvées dans les filtres ont ensuite permis de déterminer la contribution de chaque congénère HAP dans les concentrations totales mesurées (Figure 17). Ainsi, l'ensemble des congénères HAP étaient rencontrés. Les HAPs lourds étaient majoritaires avec notamment des HAPs à 5 et 6 cycles aromatiques représentant respectivement 42 et 21 % des HAPs totaux en moyenne. Cette répartition des HAPs, avec une prédominance des HAPs de 4 à 6 cycles, indique qu'ils proviendraient de sources de combustion (de combustibles fossiles ou de biomasse) (Vane *et al.*, 2007, Wang *et al.*, 2015). Toutefois, la faible présence des HAPs à faible poids moléculaire peut être la conséquence de leur sensibilité aux conditions atmosphériques et de leur solubilité aqueuse plus élevée (Marynowski *et al.*, 2011).

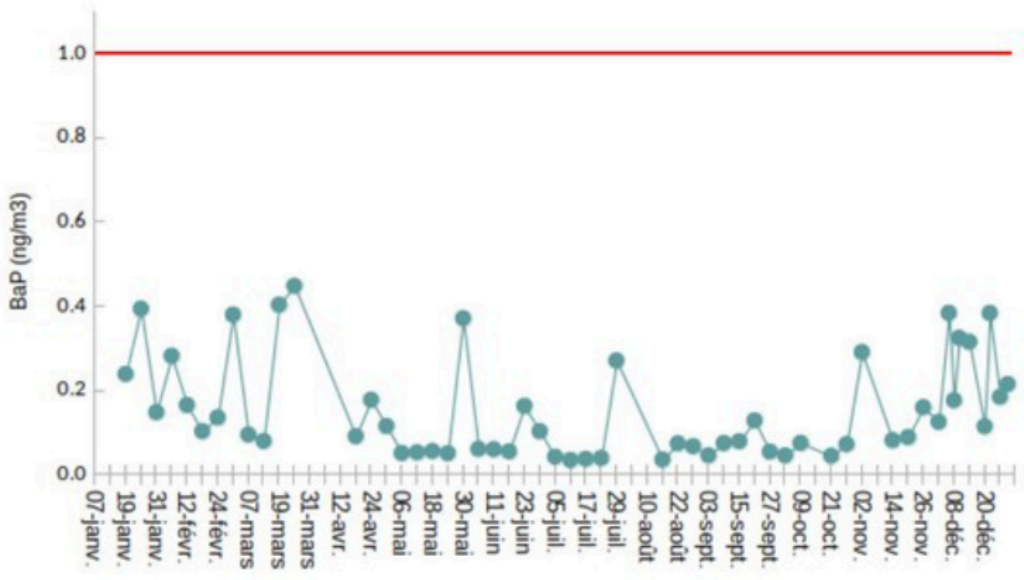


Figure 18 : Concentrations en BaP mesurées dans les filtres PM10 du 07/01/20 au 17/06/20

A noter, que les teneurs en BaP ne dépassaient pas, au cours de l'année 2020, la valeur cible fixée à une moyenne annuelle de 1 ng/m³ du contenu total de la fraction PM10 selon l'article R221-1 du Code de l'environnement (Figure 18). Là encore, les plus fortes concentrations étaient mesurées en période hivernale avec plusieurs pics supérieurs à 0,4 ng/m³.

III.6. Apports et origines des HAPs

III.6.1. Cartographie de l'exposition aux HAPs

Les mesures de bioimprégnation lichénique effectuées dans le cadre de cette étude ont souligné une exposition marquée de la commune aux HAPs atmosphériques, avec des niveaux élevés des teneurs en HAPs dans les lichens, souvent supérieurs aux niveaux relevés dans le reste du territoire métropolitain (Ratier, 2015 ; Ratier *et al.*, 2018) ou sur d'autres zones industrielles en Europe (Augusto *et al.*, 2010). Les zones les plus exposées de la commune se concentrent autour du Canal Saint-Louis, regroupant un grand nombre d'anciennes friches industrielles non réhabilitées, sur le centre-ville qui jouxte celles-ci, et sur la Presqu'île du Mazet au sud de la ville. Ces niveaux élevés de HAPs dans les lichens se déclinent au niveau des sols avec des concentrations élevées au nord du Canal Saint-Louis ainsi que sur la Presqu'île du Mazet, qui sont des territoires résidentiels où se concentrent une densité de population relativement importante. Ainsi, la cartographie des sols, de l'exposition atmosphérique en HAPs par les mesures de bioimprégnation lichénique, ainsi que des apports de particules sédimentables sur la ville ont permis de mettre en évidence des niveaux élevés de HAPs atmosphériques, apportés par un empoussièrement relativement fort de la ville notamment en bordure du Canal Saint-Louis et une pollution diffuse des sols.

III.6.2. Sources et origines des HAPs atmosphériques

Des niveaux élevés de HAPs dans les PM10 ont été relevés au cours de l'année 2020, comparables voire supérieurs aux concentrations rencontrées dans les grandes métropoles comme Paris ou Marseille (AirParif, 2013, AtmoSud, 2021) et proches de celles enregistrées à Fos-Carabin ces dernières années par AtmoSud. Ces concentrations ont mis en avant la contamination diffuse de la ville aux HAPs, pouvant être la conséquence de multiples sources.

Pour déterminer plus précisément l'origine de ces HAPs (locale ou régionale, type) et quantifier les apports annuels sur la ville, les données atmosphériques recueillies lors des jours de prélèvements des HAPs (PM10, BCff, BCwb, SO_2, direction et vitesse du vent) ont été intégrées avec les teneurs en HAPs dans les PM10 dans une Analyse factorielle multiple des correspondances (AFCM – Figure 19). Il s'agit d'une méthode factorielle de réduction de dimension pour le traitement statistique de données qualitatives et quantitatives complexes. Les deux axes de cette AFCM expliquent 65,5 % de la variance. Sur le premier axe, représentant 42,0 % de la variabilité des données, les variables SO_2, PM10, teneurs en HAPs, BCff et Bcwb sont associées à des conditions de vents de sud-est et aux brises de mers et anti-corrélées avec la vitesse du vent et des conditions sous Mistral. L'axe 2, qui représente 23,5 % de la variabilité des données, différencie les paramètres BCff et BCwb, présentant des valeurs positives, des variables SO_2, PM10 et teneurs en HAPs

semblant là aussi être associées à des conditions de vent de sud-est. La distribution des jours de prélèvements, regroupés par mois pour faciliter la lecture, semble être influencée par les deux axes en suivant une répartition temporelle.

Pour compléter cette AFCM, des coefficients de corrélations de Pearson ont été calculés entre les teneurs en HAPs enregistrées sur l'ensemble des jours de prélèvements et les différents paramètres atmosphériques étudiés (PM10, SO_2, BCff, BCwb) et réalisés en distinguant période hivernale (01/01/20 – 21/03/20 et 01/11/20 – 31/12/20) et estivale (22/03/20 - 30/10/20) et sont présentés en Figure 20. Enfin, pour certains jours de prélèvements des polarplots et des graphiques d'évolution en fonction du temps pour chacun des paramètres étudiés (PM10, SO_2, BC) et la rose des vents ont été réalisés et sont présentés en Annexes.

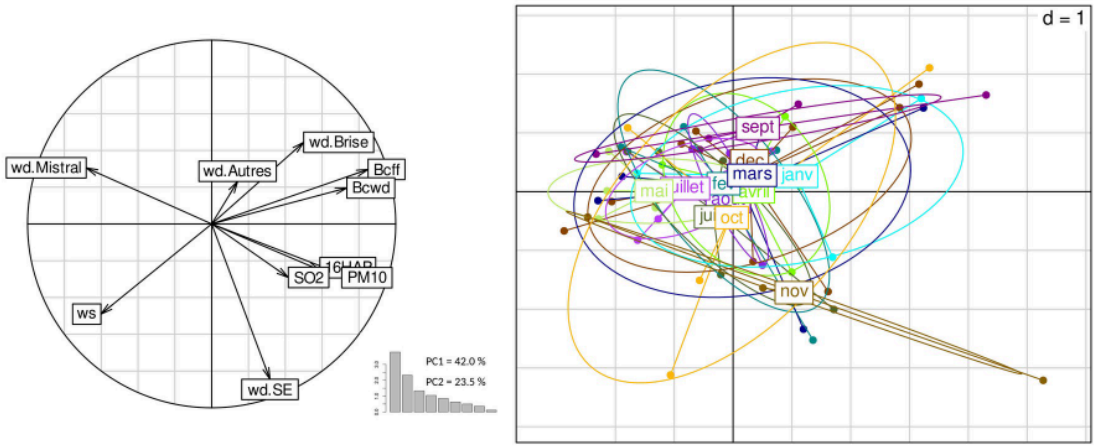


Figure 19 : Analyse factorielle multiple des correspondances (AFCM) réalisée sur les données atmosphériques (SO_2, PM10, BC), les teneurs en HAPs et les conditions de vents avec la répartition des jours de prélèvements regroupés par mois (n = 60).

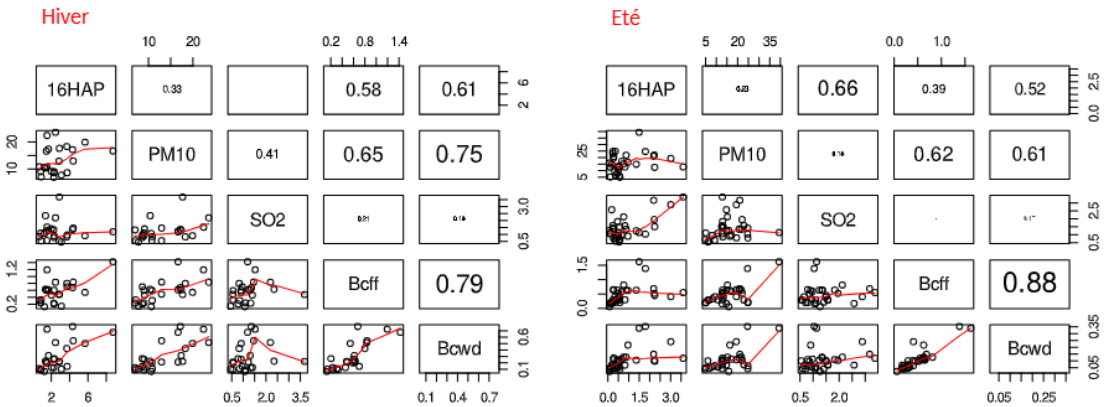


Figure 20 : Coefficients de corrélation de Pearson calculés à partir des mesures atmosphériques effectuées les jours de prélèvements des HAPs (n = 60) (R > 0,5, p < 0,01).

Emissions domestiques

L'analyse de l'AFCM montre que les mois d'hiver (décembre, janvier, février et mars) et dans une moindre mesure septembre et novembre sont associés au carbone suie (BC), traceur de combustions locales et incomplètes de combustibles fossiles (BCff) ou biomassiques (BCwb), et aux teneurs en HAPs et PM10 mettant en évidence l'influence des émissions domestiques sur les niveaux de HAPs mesurés sur la ville pendant la période hivernale. Le suivi temporel des données atmosphériques (PM10, SO_2, BC) et des teneurs en HAPs dans les PM10 ont montré des variations saisonnières des concentrations en HAPs et des différents polluants suivis. Les concentrations en BC et HAPs étaient plus élevées en hiver (décembre-mars) qu'en période estivale (mai-septembre) au contraire du SO_2 et des PM10 pour lesquels aucune variation saisonnière claire n'est enregistrée. La différence d'exposition saisonnière peut s'expliquer par les modifications des paramètres météorologiques, tels que la température et l'humidité relative, qui ont des effets sur la pollution de l'air (Qiu *et al.*, 2013). En effet, en hiver, les processus de dégradation sont ralentis et les basses couches de l'atmosphère sont plus stables et plus basses, ce qui favorise l'accumulation des polluants tels que les HAPs (LCSQA, 2003). Ce résultat est en accord avec les données publiées par le CITEPA (2020) qui relève des émissions en HAPs plus élevées en hiver à cause des émissions domestiques, notamment le chauffage au bois. En 2018, en France, après le gaz naturel (41 %), le bois était la 2e source d'énergie utilisée pour le chauffage des ménages (28 %) suivi du fioul domestique (13 %) (CEREN, 2018). Cette source d'émission est d'autant plus présente que la densité de logements est importante, son influence est donc plus marquée au niveau des zones urbaines. Par ailleurs, les processus de combustion à basses températures tels que la combustion de bois forment généralement des HAPs de fortes masses moléculaires contrairement à la combustion de carburants fossiles (Mostert *et al.*, 2010). Les appareils à combustion de bois émettent notamment, en priorité, des FlA, Pyr, Phe, Ace et Nap (Tissari *et al.*, 2007). Ces congénères sont principalement relevés dans les échantillons de lichens en hiver sur les sites du centre-ville (sites 1, 3, 5) semblant mettre en évidence l'influence des émissions domestiques dans l'exposition atmosphérique en HAPs sur Port-Saint-Louis-du-Rhône en hiver, observée par la réalisation de polarplot les jours de prélèvements des HAPs en hiver (Annexes 3, 4, 12, 13, 14).

Influence de la pratique de l'écobuage

Le site de prélèvement n°2, et dans une moindre mesure le site 7, étaient placés à proximité des zones agricoles dominées par la riziculture où est pratiqué l'écobuage en période hivernale. Or, ces points sont ceux où les concentrations en HAPs totaux sont les plus faibles quelle que soit la matrice étudiée. La distribution des congénères au sein des échantillons de sols comme de lichens présente les plus faibles coefficients de corrélation avec les profils rencontrés en zone urbaine, mettant ainsi en avant une origine différente. Sur le site 2, dans les lichens comme dans les jauges Owen, le profil des congénères relevé

montre une plus forte proportion de HAPs lourds en hiver qu'en été avec une dominance de congénères à 4 cycles semblant cibler la combustion de biomasse comme principale origine pyrolitique des apports en HAPs (Chen et Chen, 2011). Cela pourrait correspondre aux écobuages dont les influences seraient locales puisqu'elles ne sont pas visibles au niveau du reste de la ville et dont les apports semblent faibles au regard des concentrations enregistrées sur ces deux sites notamment dans les lichens et dans les sols. Les polarplots réalisés le 12/02 semblent confirmer la faible influence des écobuages sur les apports de HAPs atmosphériques sur la ville lorsque celle-ci est sous des vents de secteur nord ou ouest en hiver (Annexe 4), les vents d'ouest n'ayant aucune incidence sur les niveaux de HAPs en été (Annexe 9).

Emissions industrielles et trafic maritime

D'après les résultats de l'AFCM, les teneurs en HAPs atmosphériques semblent impactées par les niveaux de SO_2, marqueur de l'activité industrielle, et les teneurs en PM10 mesurés sur la ville et associés à des conditions de vent de sud-est fort. En effet, au-delà de l'aspect saisonnier, les apports en HAPs atmosphériques les plus importants sont mesurés principalement par vent d'est pouvant être orienté sud-est correspondant au Levant (Annexes 3, 5, 7, 8, 10, 12, 14) ou dans certains cas par un léger vent de nord (Annexe 11). Dans ces conditions de vent, la ville se retrouve exposée aux émissions du trafic maritime et des zones industrielles de Lavéra et Fos, qui concentrent de nombreux sites pétrochimiques mais aussi des industries de l'acier et les cockeries dont la forte contribution aux HAPs atmosphériques a été mise en évidence dans de nombreux travaux (El Haddad *et al.*, 2011, 2013 ; Sylvestre *et al.*, 2017). Ainsi, l'activité industrielle et maritime autour du Golfe de Fos contribue aux apports en HAPs atmosphériques sur la ville. Les profils des congénères HAP dans les sols des sites 4 et 10, les plus proches de la ZIP, qui possèdent une part plus importante de HAPs légers que les autres sites, témoignent d'une contamination récente de ceux-ci (Wu *et al.*, 2006) et semblent confirmer l'influence de l'activité industrielle et maritime sur la pollution diffuse de la ville aux HAPs. De même, les teneurs en HAPs mesurées dans les lichens sont influencées par la proximité de la ZIP de Fos-sur-Mer et de Lavéra. En effet, Dron *et al.* (2016) et Ratier *et al.* (2018) ont montré que les teneurs en contaminants, dont les HAPs, augmentaient fortement avec la proximité industrielle. Réalisées à partir de la même méthodologie que celle employée pour ce travail, ces études ont montré que les mesures dans les villes au voisinage de la ZIP étaient élevées et variaient de 568 à 1431 µg/kg. Les teneurs en HAPs relevées dans les lichens lors de cette étude étaient comprises dans cette gamme de valeur, les sites 1 et 5 étant plus élevés en hiver, semblant mettre en évidence l'influence des émissions industrielles sur le niveau de HAPs à Port-Saint-Louis-du-Rhône, excepté sur les sites 2 et 7, excentrés au nord-ouest de la ville dans la plaine du Rhône, où des teneurs plus faibles sont observées.

Les coefficients de corrélations calculés entre les différents paramètres (Figure 20) mettent en évidence une très faible corrélation entre les niveaux de PM10 et SO_2 et les teneurs en HAPs en hiver, les

HAPs présentant par contre une corrélation significative avec le carbone suie formé par combustion de combustibles fossiles ($R = 0,58$, $p < 0,01$) ou de biomasse ($R = 0,61$, $p < 0,01$). Au contraire, en été, où les émissions domestiques sont moins importantes, une corrélation significative est relevée entre les teneurs en SO_2 et les teneurs en HAPs enregistrées sur la ville ($R = 0,66$, $p < 0,01$) mettant en évidence l'impact de l'activité industrielle du pourtour du Golfe de Fos sur l'exposition aux HAPs de Port-Saint-Louis-du-Rhône. Les faibles corrélations relevées en hiver ($R = 0,33$, $p > 0,01$) et en été ($R = 0,23$, $p > 0,01$) entre les teneurs en HAPs et les PM10 semblent indiquer que les PM10 ne sont pas la principale phase particulaire à l'origine des apports en HAPs (Annexe 6). Alors que l'étude de la contribution des particules ultrafines (PM1) ainsi que des PM2,5 apporterait des précisions sur les apports atmosphériques des HAPs et leur origine, une autre source de HAPs semble impacter la ville.

Influence de l'envol des poussières de sol

Comme indiqué précédemment, une contamination diffuse en HAPs des sols de surface est observée à Port-Saint-Louis-du-Rhône avec des concentrations atteignant 31 000 µg/kg au niveau du site 1 installé sur une des friches industrielles en bordure du Canal Saint-Louis. Selon BASIAS, cette friche était un lieu de raffinage, distillation et rectification du pétrole et/ou stockage d'huile minérale responsable de cette contamination ponctuelle, sa date de fin d'activité n'est pas précisée. Un gradient de concentrations depuis cette friche industrielle est nettement visible et ce, malgré la faible mobilité des HAPs dans les sols (Rollin *et al.*, 2005). Ce gradient est aussi observé pour les teneurs en HAPs mesurées dans les lichens, considérés comme de très bons indicateurs de la qualité de l'air (Boucheron et Martin, 2019). Une remise en suspension des poussières de sols, riches en HAPs, présentes dans les sols du site 1, contaminés historiquement, est donc à supposer. D'autres résultats sont en accord avec cette hypothèse. En effet, les résultats de jauges Owen permettent de constater que la distribution des HAPs au niveau des sites 1 et 3 est proche, avec une majorité de HAPs lourds témoignant d'une contamination historique et dont l'envol de poussières de sol pourrait être identifié comme une source de contribution importante aux HAPs sur le centre-ville. Enfin, des coefficients de corrélations positifs et significatifs ($R > 0,6$, $p < 0,05$, $n = 16$) ont été mesurés entre les profils HAP enregistrés sur les matrices lichens-sols et jauges Owen-sols de chaque station semblant là aussi témoigner de l'influence des poussières de sol sur la composition des retombées atmosphériques et sur la bioimprégnation lichénique. Les conditions météorologiques de ce secteur, caractérisées par des vents forts une partie de l'année, peut expliquer ce phénomène marqué de remise en suspension des poussières de sol. Pour limiter l'envol des poussières et réduire les apports en HAPs sur les zones les plus exposées (Canal Saint-Louis, centre-ville et Presqu'île du Mazet), il serait pertinent d'étudier la possibilité de revégétaliser les sols contaminés nus des friches industrielles situées sur le pourtour du Canal Saint-Louis afin de limiter les envols de poussières de sol contaminées (Heckenroth, 2017) et faciliter

la dégradation des HAPs (Denys *et al.*, 2006). Ce principe permettrait la stabilisation et la fixation de nombreux contaminants dans l'attente de la dépollution et de la réhabilitation de ces sites pollués.

Ces prélèvements de sols ont été réalisés en partie sur des terrains privés. Il est donc important d'informer et de sensibiliser les populations. En effet, bien que le transfert sol-plantes des HAPs semble faible par voie racinaire (Kipopoulou *et al.*, 1999 ; Austruy et Roulier, 2016), les travaux tels que le jardinage peuvent remettre en suspension ces HAPs présents dans les sols de surface, faciliter les envols de poussières et ainsi favoriser l'exposition par voie aérienne.

Périodes de confinement

Enfin, cette année 2020 a été traversée par une crise sanitaire lié à la pandémie de Covid-19 entraînant le confinement des populations et une restriction de déplacement et d'activité professionnelle au cours de deux périodes, du 17 mars au 11 mai 2020 et du 30 octobre au 15 décembre 2020. Au regard de l'évolution des teneurs des différents polluants atmosphériques suivis au cours de cette étude, les conclusions de l'impact de cette situation ne sont pas claires.

Cependant, alors qu'une augmentation des moyennes de BC et SO_2 est enregistrée jusqu'au 15 avril, elle est suivie d'une diminution de ces paramètres jusqu'à la fin du premier confinement. Un niveau de PM10 relativement faible est mesuré à partir de fin avril jusqu'à la fin du confinement. Il est suivi d'une augmentation des concentrations journalières moyennes après le déconfinement semblant souligner les effets de la réduction du trafic routier et, plus généralement, des activités anthropiques sur les niveaux de PM10 dans l'air pendant le premier confinement. Il faut également noter des conditions météorologiques très contrastées, avec une situation très calme et ensoleillée en début de confinement favorisant l'accumulation des polluants, qui a laissé place mi-avril à des conditions plus perturbées avec des vents changeants et des précipitations favorisant au contraire la dispersion et la diminution des niveaux de particules notamment. Parallèlement, la diminution des niveaux de HAPs mesurée dans les lichens en période estivale pourrait également être la conséquence d'une diminution des émissions de HAPs consécutive à la période du premier confinement et à la réduction des activités anthropiques sur ce secteur. Au cours du deuxième confinement (30/10/20 au 15/12/20), où les restrictions étaient moins importantes, une augmentation des concentrations de l'ensemble des paramètres est constatée. Au-delà des émissions domestiques plus élevées en cette période hivernale, ce constat peut être une conséquence de la situation géographique de Port-Saint-Louis-du-Rhône exposé à un faible trafic routier au quotidien mais situé sous les vents dominants en provenance de la zone industrialo-portuaire de Fos-sur-Mer dont l'activité n'a que faiblement réduit durant le deuxième confinement.

IV. Conclusions

Le large champ d'application obtenu grâce aux différents types de prélèvements réalisés lors de cette étude et leur complémentarité, ont permis de mieux comprendre l'exposition aux HAPs atmosphériques de la ville de Port-Saint-Louis-du-Rhône. Ainsi, une contamination diffuse aux HAPs dans les différentes matrices environnementales prélevées a été mise en évidence. Un niveau moyen relativement élevé dans les sols et les lichens a été mesuré sur l'ensemble du territoire communal, notamment dans le centre-ville. Les émissions des activités industrielles recensées dans la ZIP de Fos-sur-Mer située à proximité ont impacté les niveaux de HAPs mesurés sur le territoire dont les mesures sont semblables à celles retrouvées lors d'autres études réalisées dans le Golfe de Fos.

De fortes variations saisonnières sont également observables sur l'ensemble des résultats avec des mesures plus élevées en période hivernale. Cela semble être la conséquence de l'influence des émissions domestiques sur les émissions de HAPs, notamment en centre-ville et des changements de propriétés de l'atmosphère.

Associées à la cartographie de la contamination des sols en HAPs, ces données ont permis de consolider les données sanitaires et environnementales de la ville et d'identifier les zones les plus exposées. Il s'agit du Canal Saint-Louis, qui regroupe un grand nombre d'anciennes friches industrielles non réhabilitées, de la presqu'île du Mazet, au sud de la ville, et du centre-ville. De plus, un gradient de concentrations des HAPs dans les sols est visible à partir de ces friches. La faible mobilité des HAPs dans les sols ainsi que les mesures de bioimprégnation lichénique permettent de supposer qu'il y aurait une remise en suspension des HAPs contenus dans les poussières de sols. La revégétalisation de ces friches industrielles, présentant souvent des sols nus, pourrait limiter ces envols de poussières et donc l'influence des friches industrielles sur l'exposition aux HAPs atmosphériques de la ville.

Cette exposition représente un risque sanitaire. Il est donc important d'informer et sensibiliser la population, notamment les propriétaires des terrains où ont été réalisés les prélèvements de sols.

Pour préciser les données et réduire l'exposition en HAPs de Port-Saint-Louis-du-Rhône, une prolongation de ce travail est envisagée avec le concours de la municipalité pour améliorer la connaissance sur l'état des sols et l'exposition atmosphérique par bioimprégnation lichénique suivant un maillage plus fin et recentré sur le centre-ville et la presqu'île du Mazet. Des travaux de revégétalisation sont également proposés sur les secteurs les plus impactés afin de réduire les envols de poussières contaminées et l'exposition atmosphérique en HAPs des zones résidentielles.

Par ailleurs, il serait intéressant de comparer les apports de HAPs via les particules en réalisant des dosages dans d'autres phases particulaires (PM2,5 et PM1). De plus, l'exposition atmosphérique générale de

l'année 2020 étant particulière du fait de la crise sanitaire et du confinement du pays, il serait pertinent de continuer à acquérir les données de bioimprégnation lichénique et de dosage des HAPs sur filtre, afin de vérifier les variations saisonnières observées sur un laps de temps plus long.

V. BIBLIOGRAPHIE

AFNOR, 2013. Norme NF X43-904 portant sur la biosuveillance passive de la qualité de l'air à l'aide des lichens autochtones, de la récolte à la préparation des échantillons. 17 p.

AFNOR, 2014. Norme NF EN16413 portant sur l'évaluation de l'impact d'une activité anthropique (notamment les effets de la pollution atmosphérique) à partir d'une étude de la diversité des lichens épiphytes. 34 p.

Agence Régionale pour l'Innovation et l'Internationalisation des entreprises de Provence-Alpes-Côte-d'Azur (ARII PACA), 2011. *Fiche : Zone industrialo-portuaire de Marseille Fos.*

Agnan, Y., 2013. *Bioaccumulation et bioindication par les lichens de la pollution atmosphérique actuelle et passée en métaux et en azote en France: sources, mécanismes et facteurs d'influence*. Thèse de Doctorat, Toulouse (Université Paul Sabatier), 306 p.

Air Parif, 2013. *Pollution atmosphérique au benzo(a)pyrène et hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) : cas de la région Île de France*.

Allen, J. O., 1997. *Atmospheric partitioning of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) and oxygenated PAH*. Ed: Massachusetts Institute of Technology, Department of Chemical Engineering, 347 p.

Association Calédonienne de Surveillance de la Qualité de l'Air (Scal Air), 2016. *Mesure des retombées atmosphériques à Nouméa et dans le Sud en 2014*. 50 p.

AtmoSud, 2018. *Bilan 2017 des mesures de Black Carbon*. 23 p.

AtmoSud, 2021. https://www.atmosud.org/donnees/acces-par-polluant. Consulté le 15/06/21.

Augusto, S., Máguas, C., Branquinho, C., 2009. *Understanding the performance of different lichen species as biomonitors of atmospheric dioxins and furans: potential for intercalibration*. Ecotoxicology, 18(8), 1036-1042.

Augusto, S., Maguas, C., Matos, J., Pereira, M..J., Branquinho, C., 2010. *Lichens as an integrating tool for monitoring PAH atmospheric deposition: A comparison with soil, air and pine needles.* Environmental Pollution, 158, 483-489.

Austruy, A., Dron, J., Charbonnier, E., Babaguela, N., Miche, H., Keller, C., Chamaret, P. 2016. *Teneurs naturelles et apports anthropiques en éléments traces dans les sols à l'ouest de l'étang de Berre.* Étude et gestion des sols, 23, 125-141.

Austruy, A., Roulier, M. 2016. *Qualité des sols et végétaux produits sur le Territoire Istres-Ouest-Provence: Évaluation des risques environnementaux et sanitaires.* Rapport d'étude, Institut Ecocitoyen pour la Connaissance des Pollutions, 66 p.

Austruy, A., Yung, L., Ambrosi, J. P., Girardclos, O., Keller, C., Angeletti, B., Chalot, M., 2019. *Evaluation of historical atmospheric pollution in an industrial area by dendrochemical approaches.* Chemosphere, 220, 116-126.

Austruy, A. Roulier, M., Angeletti, B., Dron, J., Dauphin, C.E., Ambrosi, J.P., Keller, C., Chamaret, P., 2021. *Concentrations and transportation of metal and organochlorine pollutants in vegetables and risk assessment of human exposure in rural, urban and industrial environments (Bouches-du-Rhône, France)*. Envion. Sc. Pollut. Res., DOI: 10.1007/s11356-021-14604-z.

BASIAS, 1998. *Fiche détaillée PAC1301933 : Arthur Armand.* https://fiches-risques.brgm.fr/georisques/basias-detaillee/PAC1301933 Consulté le 27/03/2020.

Boucheron, C., Martin, N., 2019. *Estimation de la qualité de l'air par l'étude des lichens épiphytes bio-indicateurs sur le Pays du Bocage Vendéen*. CPIE Sèvre et Bocage, 102 p.

Brignon, J.M., Soleille, S., 2006. *Données technico-économiques sur les substances chimiques en France: HAP.* Institut national de l'environnement industriel et des risques (Ineris).

Chen, C.W., Chen, C.F., 2011. *Distribution, origin, and potential toxicological significance of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in sediments of Kaohsiung Harbor, Taiwan.* Marine pollution bulletin, 63 (5-12), 417-423.

CITEPA, 2020. *Rapport SECTEN : Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques.* https://www.citepa.org/fr/2020-hap/ Consulté le 12/04/2020.

Code de l'environnement. Article R221-1 portant sur la surveillance de la qualité de l'air ambiant.

Denys, S., Rollin, C., Guillot, F., Baroudi, H., 2006. *In-situ phytoremediation of PAHs contaminated soils following a bioremediation treatment.* Water, Air, & Soil Pollution: Focus, 6(3-4), 299-315.

Dron, J., Austruy, A., Agnan, Y., Ratier, A., Chamaret, P., 2016. *Utilisation de la biosurveillance lichénique sur la zone industrialo-portuaire de Fos-sur-Mer: retour sur trois ans de suivi à l'échelle d'un territoire intercommunal*. 2268-3798.

Dron, J., Revenko, G., Chamaret, P., Chaspoul, F., Wafo, E., Harmelin-Vivien, M., 2019. *Contaminant signatures and stable isotope values qualify European conger (Conger conger) as a pertinent bioindicator to identify marine contaminant sources and pathways*. Ecological Indicators, *107*, 105562.

Dron, J., Ratier, A., Austruy, A., Revenko, G., Chaspoul, F., Wafo, E., 2021. *Effects of meteorological conditions and topography on the bioaccumulation of PAHs and metal elements by native lichen (Xanthoria parietina)*. J. Environ. Sc., 109, 193-205. https://doi.org/10.1016/j.jes.2021.03.045

El Haddad, I., Marchand, N., Dron, J., Temime-Roussel, B., Quivet, E., Wortham, H., Gille, G., 2009. *Comprehensive primary particulate organic characterization of vehicular exhaust emissions in France*. Atmospheric Environment, 43(39), 6190-6198.

Eva, L. G., 2000. *Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques dans l'air ambiant (HAP)*. INERIS - Direction des Risques Chroniques.

Goix, S., Periot, M., Douib, K., 2018. *Etude d'imprégnation de la population aux polluants atmosphériques de la zone industrialo-portuaire de Fos-sur-Mer.* Institut Ecocitoyen (IECP), Rapport d'étude, 296 p.

Grand Port Maritime de Marseille. *Présentation du port*. https://www.marseille-port.fr/fr/Page/16404 Consulté le 14/05/2020.

Girard, M. C., Walter, C., Rémy, J. C., Berthelin, J., Morel, J. L., 2011. *Sols et environnement-2e édition*. Dunod Ed., Paris, 896 p.

Grand, C., Faure, O., Harris-Hellal, J., Hedde, M., Le Guédard, M., Pauget, B., De Vaufleury, A., 2012.. *Quels bioindicateurs, pour quels besoins en sites contaminés?*. Journées Techniques Nationales Bioindicateurs & Phytotechnologies, p. 1-22.

Heckenroth, A., Rabier, J., Monsara, P., Pecheux, L. L. M., Prudent, P., Sastre-Conde, M. I., Laffont-Schwob, I., 2017. *Mise en place d'une approche intégrée pour la restauration écologique des milieux pollués du Parc national des Calanques*. Naturae, 9, 1-14.

INSEE. (29/06/2020). *Commune de Port-Saint-Louis-du-Rhône (13078)*. https://www.insee.fr/fr/statistiques/1405599?geo=COM-13078 Consulté le 18/08/2020

Jeanjean, M., Goix, S., Periot, M., Douib, K., Dron, J., Etienne, M.P., Marchand, P., Austruy, A., Revenko, G., Chamaret, P., 2021. Environmental and Dietary Exposures Near a Major Industrial Harbour (Fos-sur-Mer, France) Identified as a Significant Pathway for PCBs and PCDD/Fs Accumulation in Residents' Blood Serum. Exposure and Health, https://doi.org/10.1007/s12403-021-00395-8

Neff, J.M., Stout, S.A., Gunster, D.G., 2005. *Ecological risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in sediments: Identifying sources and ecological hazard*. Integrated Environmental Assessment and Management, 1, 22-33. DOI: 10.1897/ieam_2004a-016.1.

Khedim, N., 2018. *Contamination aux HAP d'un sol de culture et phytodégradation*. Institut Écocitoyen pour la Connaissance des Pollutions (IECP). 45 p.

Krauss, M., Wilcke, W., Martius, C., Bandeira, A. G., Garcia, M. V., Amelung, W., 2005. *Atmospheric versus biological sources of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in a tropical rain forest environment*. Environmental Pollution, 135(1), 143-154.

Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air (LCSQA), 2003. *Programme pilote national de surveillance des Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques*. 36 p.

Lebaron, K., Mechiri, L., Richard, S., Austruy, A., Boudenne, J.L., Coupé, S., 2019. *Assessment of individual and mixed toxicity of bromoform, tribromoacetic-acid and 2,4,6 tribromophenol, on the embryo-larval development of Paracentrotus lividus sea urchin*. Environ. Sc. Pollut. Res., 26(20), 20573-20580. DOI:10.1007/s11356-019-05279-8.

Lemière, B., Seguin, J. J., Le Guern, C., Guyonnet, D., Baranger, P., Saada, A., Hubé, D., 2001. *Guide sur le comportement des polluants dans les sols et les nappes*. BRGM éditions, Orléans, 300, 132p.

Loppi, S., Pozo, K., Estellano, V. H., Corsolini, S., Sardella, G., Paoli, L., 2015, *Accumulation of polycyclic aromatic hydrocarbons by lichen transplants: comparison with gas-phase passive air samplers.* Chemosphere, 134, 39-43.

Mairie de Port-Saint-Louis-du-Rhône. (2020). *100 ans d'histoire.* http://www.portsaintlouis.fr/100-ans-d-histoire Consulté le 18/08/2020.

Marynowski, L., Kurkiewicz, S., Rakociński, M., & Simoneit, B. R., 2011. *Effects of weathering on organic matter: I. Changes in molecular composition of extractable organic compounds caused by paleoweathering of a Lower Carboniferous (Tournaisian) marine black shale.* Chemical Geology, 285(1-4), 144-156.

Météo Blue. *Climat de Port-Saint-Louis-du-Rhône : Rose des vents.* https://www.meteoblue.com/fr/meteo/historyclimate/climatemodelled/port-saint-louis-du-rh%c3%b4ne_france_2985934 Consulté le 11/05/2020.

Météo France. *Données climatiques de la station de Istres.* http://www.meteofrance.com/climat/france/istres/13047001/normales Consulté le 11/05/2020.

Météo France. *Le climat en métropole.* http://www.meteofrance.fr/climat-passe-et-futur/climat-en-france/le-climat-en-metropole Consulté le 18/05/2020.

Météo France. *Phénomènes météo: Les vents régionaux.* http://www.meteofrance.fr/prevoir-le-temps/phenomenes-meteo/les-vents-regionaux Consulté le 11/05/2020.>

Ministère de la Transition écologique et solidaire. *Fiches thématiques : La pollution de l'air par les HAP.* https://ree.developpement-durable.gouv.fr/themes/risques-nuisances-pollutions/pollution-de-l-air-exterieur/qualite-de-l-air/article/la-pollution-de-l-air-par-les-hydrocarbures-aromatiques-polycycliques-hap Consulté le 15/04/2020.

Ministère de la Transition écologique et solidaire. *Fiches thématiques : Le dispositif de surveillance de a qualité de l'air en France.* https://ree.developpement-durable.gouv.fr/themes/risques-nuisances-pollutions/pollution-de-l-air-exterieur/dispositif-de-surveillance/article/le-dispositif-de-surveillance-de-la-qualite-de-l-air-en-france Consulté le 15/04/2020.

Mostert, M. M., Ayoko, G. A., Kokot, S., 2010. *Application of chemometrics to analysis of soil pollutants*. TrAC Trends in Analytical Chemistry, 29(5), 430-445.

Organisation Mondial de la Santé (OMS), 2020. *Agents Classified by the IARC. Monographs*, p. 1-127.

Parc Naturel Régional de Camargue. *Le site Ramsar.* http://www.parc-camargue.fr/ramsar.html Consulté le 15/05/2020

Parc Naturel Régional de Camargue. *Découvrir la Camargue : carte touristique.* http://www.parc-camargue.fr/visitez_la_camargue.html Consulté le 15/05/2020.

Qiu, H., Yu, I. T. S., Wang, X., Tian, L., Tse, L. A., Wong, T. W., 2013. *Season and humidity dependence of the effects of air pollution on COPD hospitalizations in Hong Kong*. Atmospheric environment, 76, 74-80.

Ratier, A., Dron, J., Revenko, G., Austruy, A., Dauphin, C. E., Chaspoul, F., Wafo, E., 2018. *Characterization of atmospheric emission sources in lichen from metal and organic contaminant patterns.* Environmental Science and Pollution Research, 25(9), 8364-8376.

Rehwagen, M., Müller, A., Massolo, L., Herbarth, O., Ronco, A., 2005. *Polycyclic aromatic hydrocarbons associated with particles in ambient air from urban and industrial areas*. Science of the total Environment, *348*(1-3), 199-210.

Réserves Naturelles de France. (2015, Juin). *Carte des réserves naturelles*. http://www.reserves-naturelles.org/carte-des-reserves Consulté le 14/04/2020.

Rollin, C., Quiot, F., Denys, S., 2005. *Hydrocarbures aromatiques polycycliques – Acquisition des données d'entrée des modèles analytiques ou numériques de transfert dans les sols et les eaux souterraines : Guide méthodologique*, INERIS, DRC – 66244 – DESP – R01, 99 p.

Roulier, M., 2016. *Qualité des sols et végétaux produits sur le Territoire Istres-Ouest-Provence : Evaluation*

des risques environnementaux et sanitaires. Institut Ecocitoyen (IECP), 66 p.

Service d'Information du Gouvernement (SIG), 2020. *Prévention des risques majeurs : pollution de l'air.* https://www.gouvernement.fr/risques/pollution-de-l-air Consulté le 25/03/2020.

Sylvestre A, Mizzi A, Mathiot S, Masson F, Jaffrezo JL, Dron J, Mesbah B, Wortham H, Marchand N (2017) Comprehensive chemical characterization of industrial PM 2.5 from steel industry activities. Atmos. Environ., 152, 180–190. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2016.12.032

Tarantini, A., 2009. *Modulation de la génotoxicité des hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) en mélanges.* Thèse de Doctorat Université Joseph Fourier-Grenoble I, 175 p.

Tiévant, P., 2001. *Guide des lichens*. Delachaux et Niestlé Ed., Paris, 304 p.

Tissari, J., Hytönen, K., Lyyränen, J., Jokiniemi, J., 2007. *A novel field measurement method for determining fine particle and gas emissions from residential wood combustion.* Atmos. Environ., 41(37), 8330-8344.

Tobiszewski, M., Namieśnik, J., 2012. *PAH diagnostic ratios for the identification of pollution emission sources.* Environ. Pollut., 162, 110-119.

Van Haluwyn C, Cuny D, Garrec J-P., 2011. *Introduction générale – Définitions, concepts et enjeux généraux de la biosurveillance de la qualité de l'air*. Pollution Atmosphérique, Numéro spécial : 7-13.

Van Haluwyn, C., Asta, J., 2014. *Guide des lichens de France : Lichens des arbres*. Belin Ed., Paris, 239 p.

Vane, C.H., Harrison, I., Kim, A.W., 2007. *Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) and polychlorinated biphenyls (PCBs) in sediments from the Mersey Estuary, UK*. Sc. Tot. Environ., 374(1), 112-126.

Vitali, M., Antonucci, A., Owczarek, M., Guidotti, M., Astolfi, M. L., Manigrasso, M., Protano, C., 2019. *Air quality assessment in different environmental scenarios by the determination of typical heavy metals and Persistent Organic Pollutants in native lichen Xanthoria parietina*. Environmental Pollution, 254, 113013.

Wang, Y.B., Liu, C.W., Kao, Y.H., Jang, C.S., 2015. *Characterization and risk assessment of PAH-contaminated river sediment by using advanced multivariate methods.* Sc. Tot. Environ., 524, 63-73.

Wu, S.P., Tao, S., Liu, W.X., 2006. *Particle size distributions of polycyclic aromatic hydrocarbons in rural and urban atmosphere of Tianjin, China.* Chemosphere, 62(3), 357-367.

Yang, H.H., Lai, S.O., Hsieh, L.T., Hsueh, H.J., Chi, T.W., 2002. *Profiles of PAH emission from steel and iron industries*. Chemosphere, *48*(10), 1061-1074.

Zhang, W., Zhang, S., Wan, C., Yue, D., Ye, Y., Wang, X., 2008. *Source diagnostics of polycyclic aromatic hydrocarbons in urban road runoff, dust, rain and canopy throughfall.* Environmental Pollution, 153(3), 594-601.

VI. Annexes

Annexe 1 : Vents dominants et conditions météorologiques de la zone d'étude

Annexe 2 : Conditions météorologiques lors de la pose des jauges Owen

Annexe 3 : Polarplots et rose des vents du 06/02/20

Annexe 4 : Polarplots et rose des vents du 12/02/20

Annexe 5 : Polarplots et rose des vents du 25/03/20

Annexe 6 : Polarplots et rose des vents du 18/04/20

Annexe 7 : Polarplots et rose des vents du 30/04/20

Annexe 8 : Polarplots et rose des vents du 30/05/20

Annexe 9 : Polarplots et rose des vents du 05/06/20

Annexe 10 : Polarplots et rose des vents du 23/06/20

Annexe 11 : Polarplots et rose des vents du 29/07/20

Annexe 12 : Polarplots et rose des vents du 02/11/20

Annexe 13 : Polarplots et rose des vents du 10/12/20

Annexe 14 : Polarplots et rose des vents du 14/12/20

Annexe 15 : Compte rendu de la réunion publique HAPSIS du 21/09/21

. Annexe 1 : Vents dominants et conditions météorologiques de la zone d'étude

Description des vents



Le **Mistral** est un vent froid et généralement sec, soufflant en moyenne à 50km/h avec des rafales supérieures à 100km/h.

En région marseillaise, le mistral vient du nord-ouest.



Le **Marin** est un vent de sud-est soufflant sur toute la zone littorale méditerranéenne accompagné généralement de fortes pluies.

Il s'agit d'un vent fort et régulier, très humide et doux, plus fréquent au printemps et en automne.



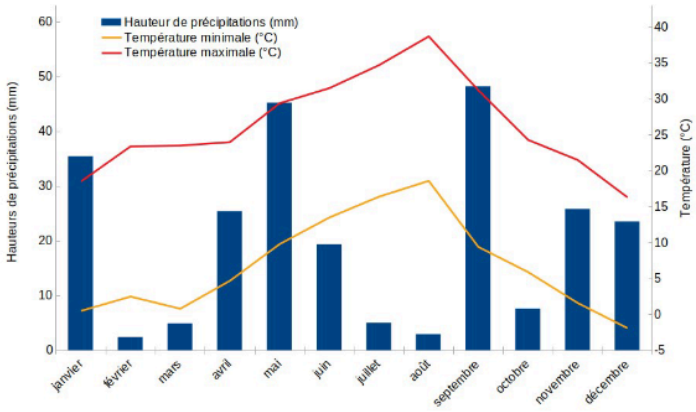
Le **Levant** est un vent pouvant être modéré à fort, généralement doux, très humide, associé à un ciel nuageux et un temps pluvieux.

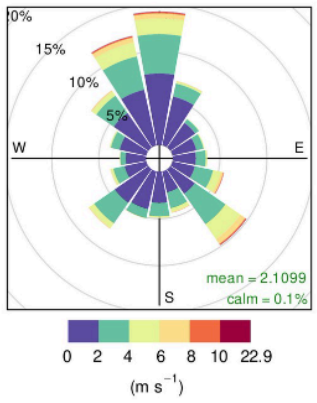
Il est plus fréquent en fin d'automne, en hiver et au printemps.



Le **Sirocco** est un vent venant du sud, chaud et sec, accompagnant les températures caniculaires. Assez rare, en France il ne souffle généralement pas plus que quelques heures d'affilées. Il provient du Sahara et transporte donc du sable.

Diagramme ombro-thermique annuel moyen (station IECP Fos-Carabin) et roses des vents (station AtmoSud de Port-Saint-Louis) pour l'année 2020



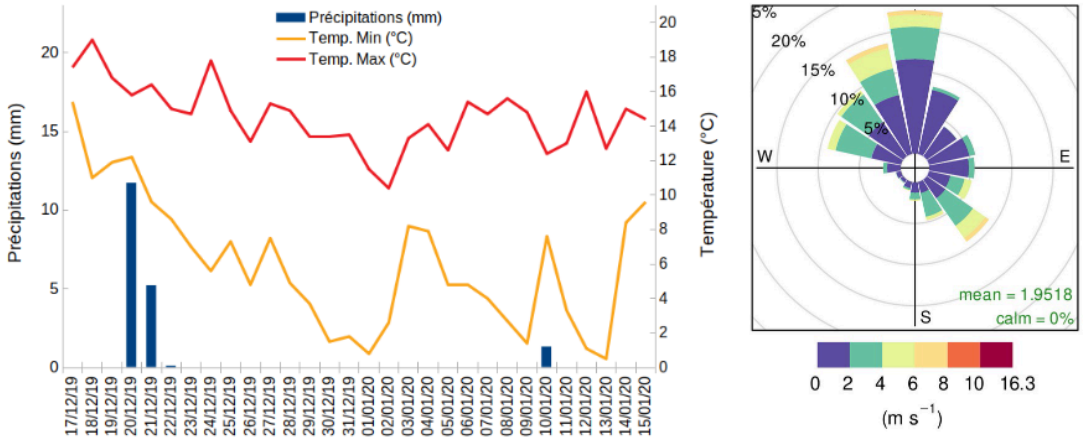


. Annexe 2 : Conditions météorologiques lors de la pose des jauges Owen

Diagrammes ombro-thermiques et roses des vents lors des campagnes de mesures des retombées atmosphériques totales avec les jauges Owen

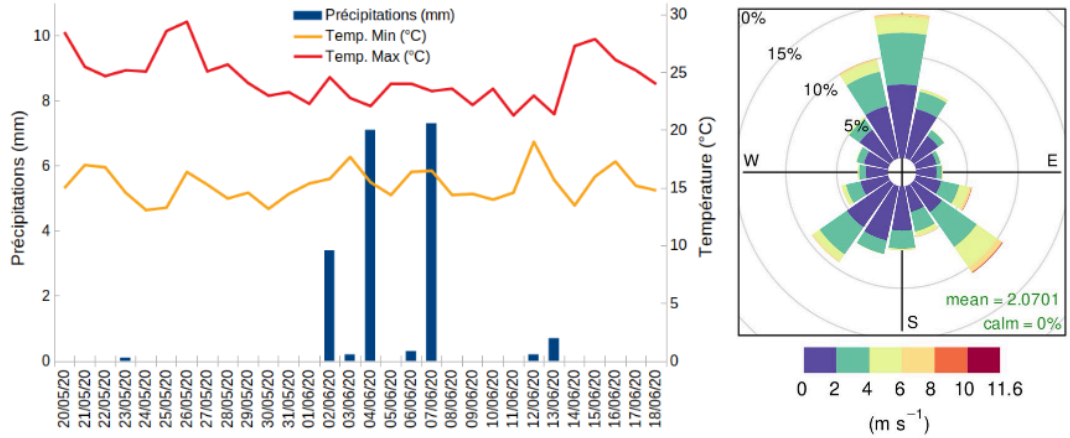
Données de température et pluviométrie enregistrées à la station Fos-Carabin de l'IECP
Vitesse et direction enregistrés à la station AtmoSud par l'IECP

Campagne hivernale (17/12/2019 – 15/01/2020)



Cumul précipitations : 18,3 mm
Température moy min : 6,02 °C
Température moy max : 14,58 °C

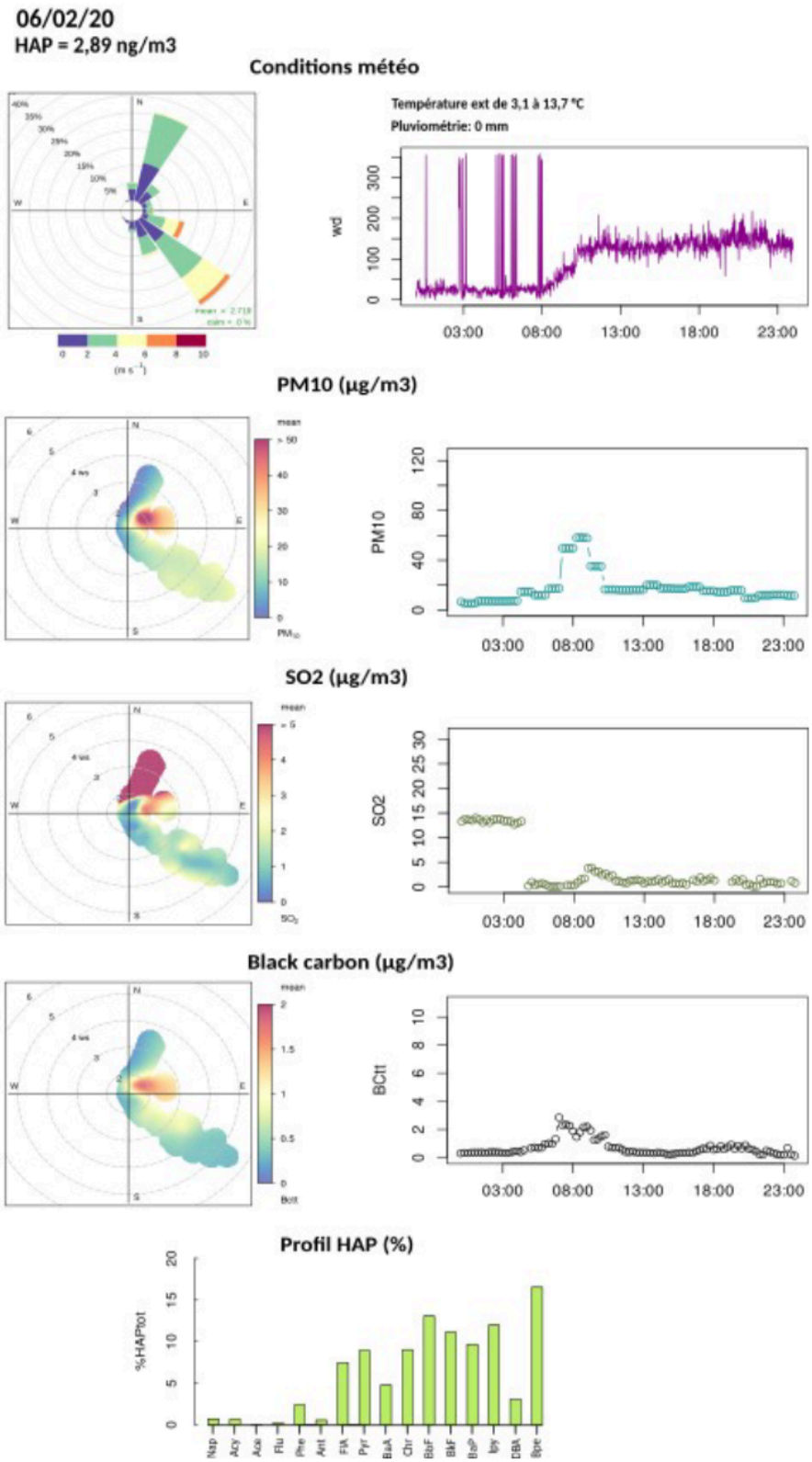
Campagne estivale (20/05/20 – 19/06/20)



Cumul précipitations : 19,3 mm
Température moy min : 15,29 °C
Température moy max : 24,57 °C

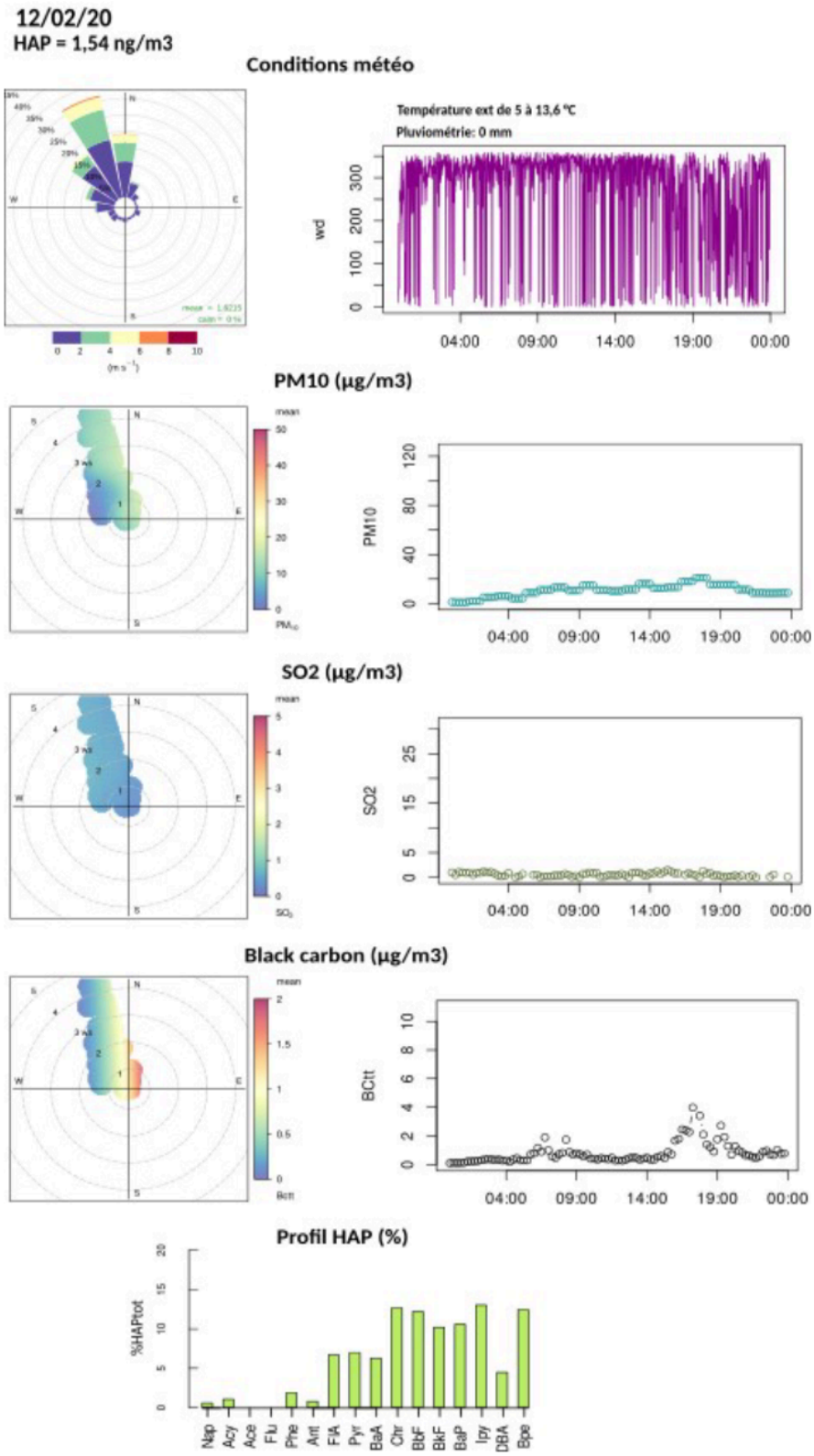
. Annexe 3 : Polarplots et rose des vents du 06/02/20

Polarplots et graphiques d'évolution des concentrations en PM10, BC et SO_2 ; Rose des vents et graphique d'évolution de la direction des vents ; réalisés à partir des données du 06/02/20.



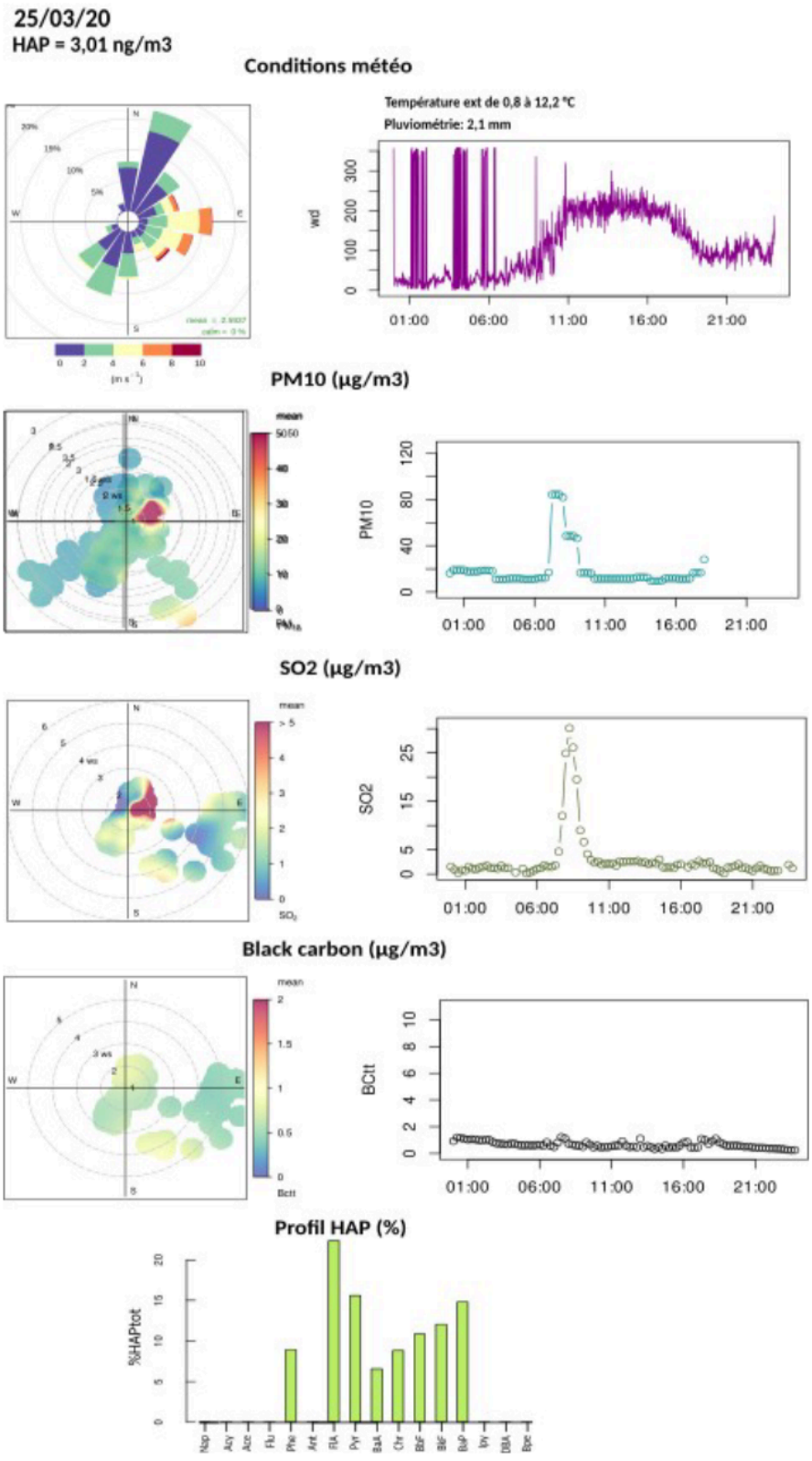
Annexe 4 : Polarplots et rose des vents du 12/02/20

Polarplots et graphiques d'évolution des concentrations en PM10, BC et SO_2 ; Rose des vents et graphique d'évolution de la direction des vents ; réalisés à partir des données du 12/02/20.



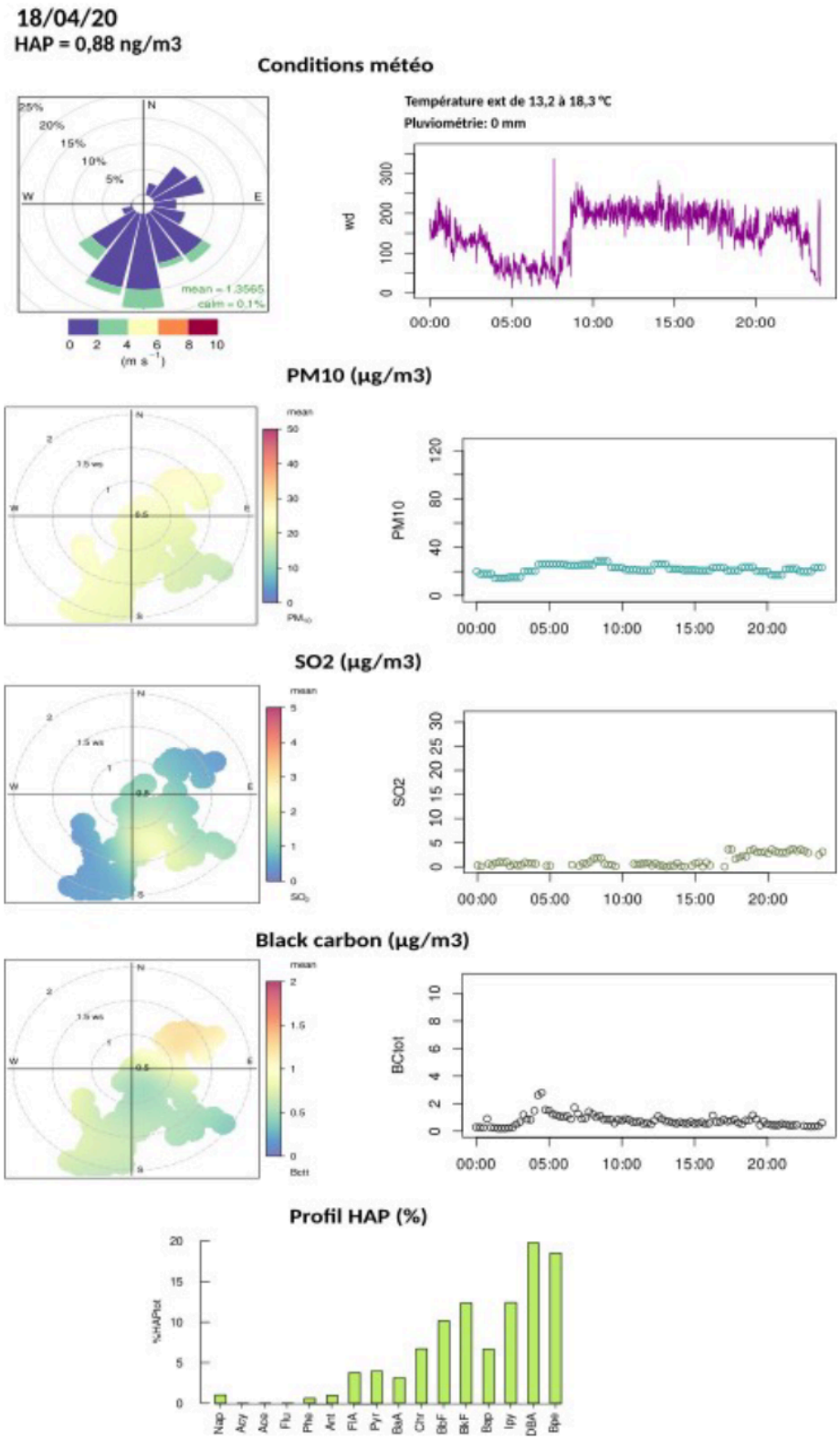
Annexe 5 : Polarplots et rose des vents du 25/03/20

Polarplots des concentrations en PM10, BC et SO_2 ; Rose des vents et graphique d'évolution de la direction des vents ; réalisés à partir des données du 25/03/20.



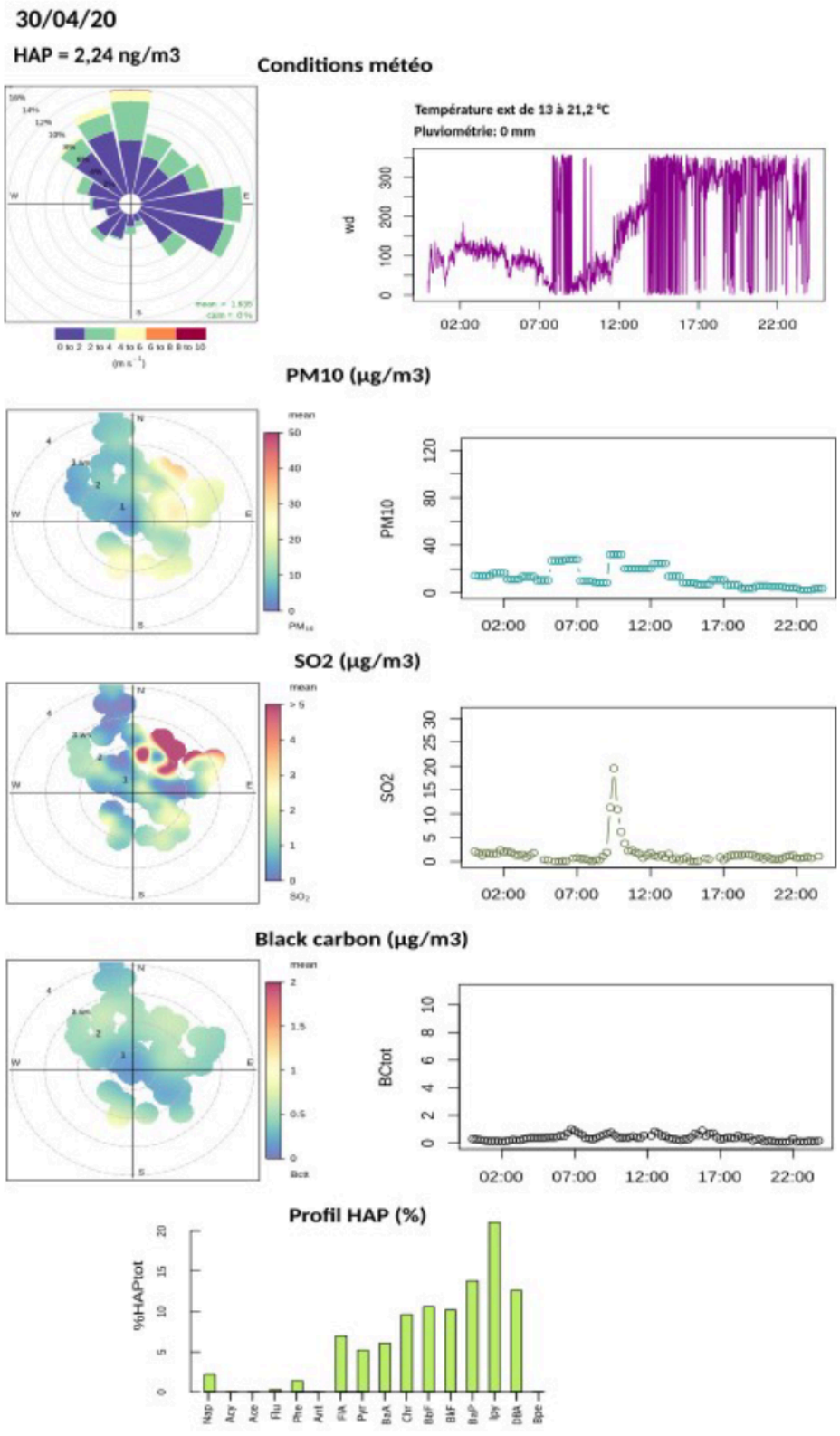
Annexe 6 : Polarplots et rose des vents du 18/04/20

Polarplots des concentrations en PM10, BC et SO_2 ; Rose des vents et graphique d'évolution de la direction des vents ; réalisés à partir des données du 1804/20.



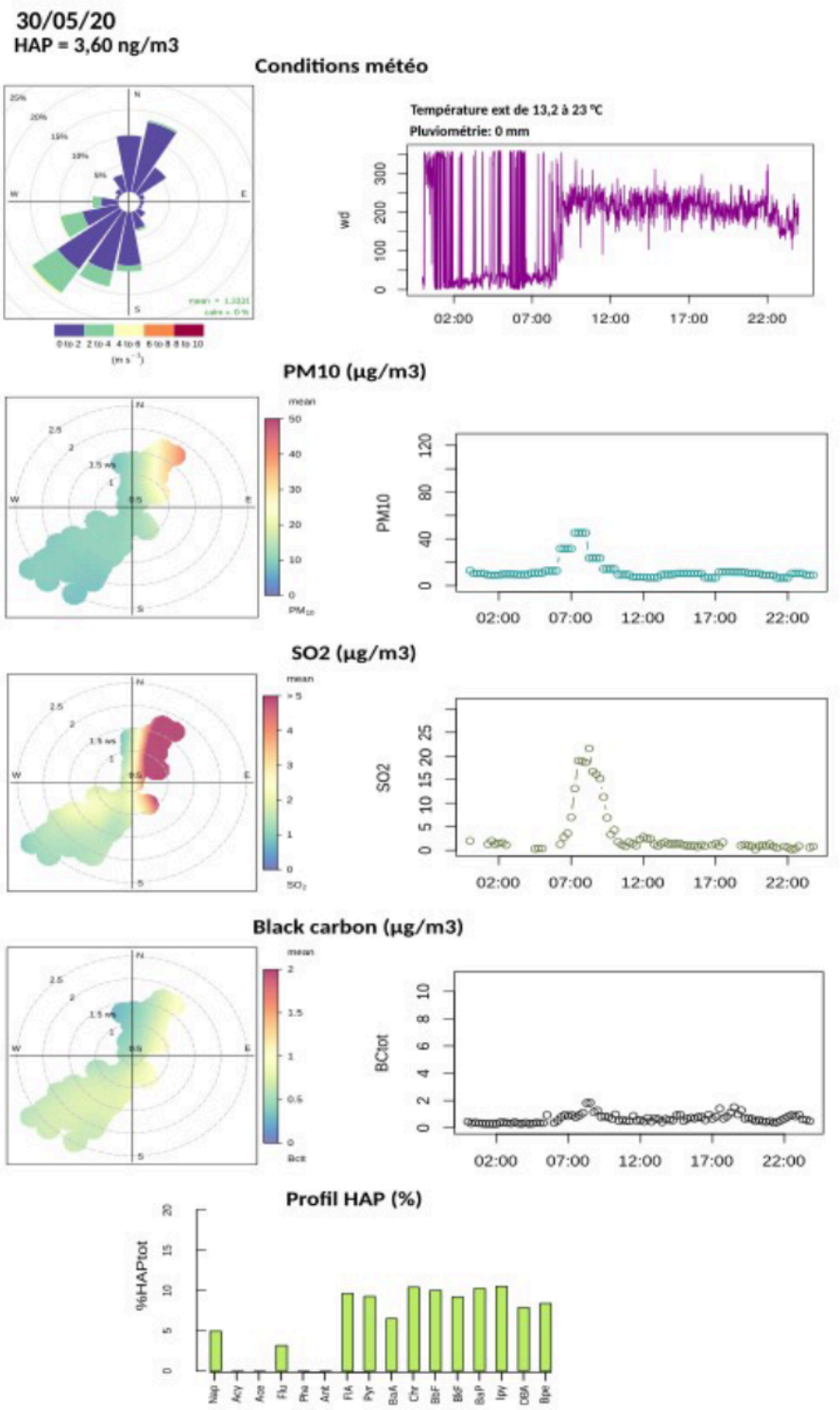
Annexe 7 : Polarplots et rose des vents du 30/04/20

Polarplots des concentrations en PM10, BC et SO_2 ; Rose des vents et graphique d'évolution de la direction des vents ; réalisés à partir des données du 30/04/20.



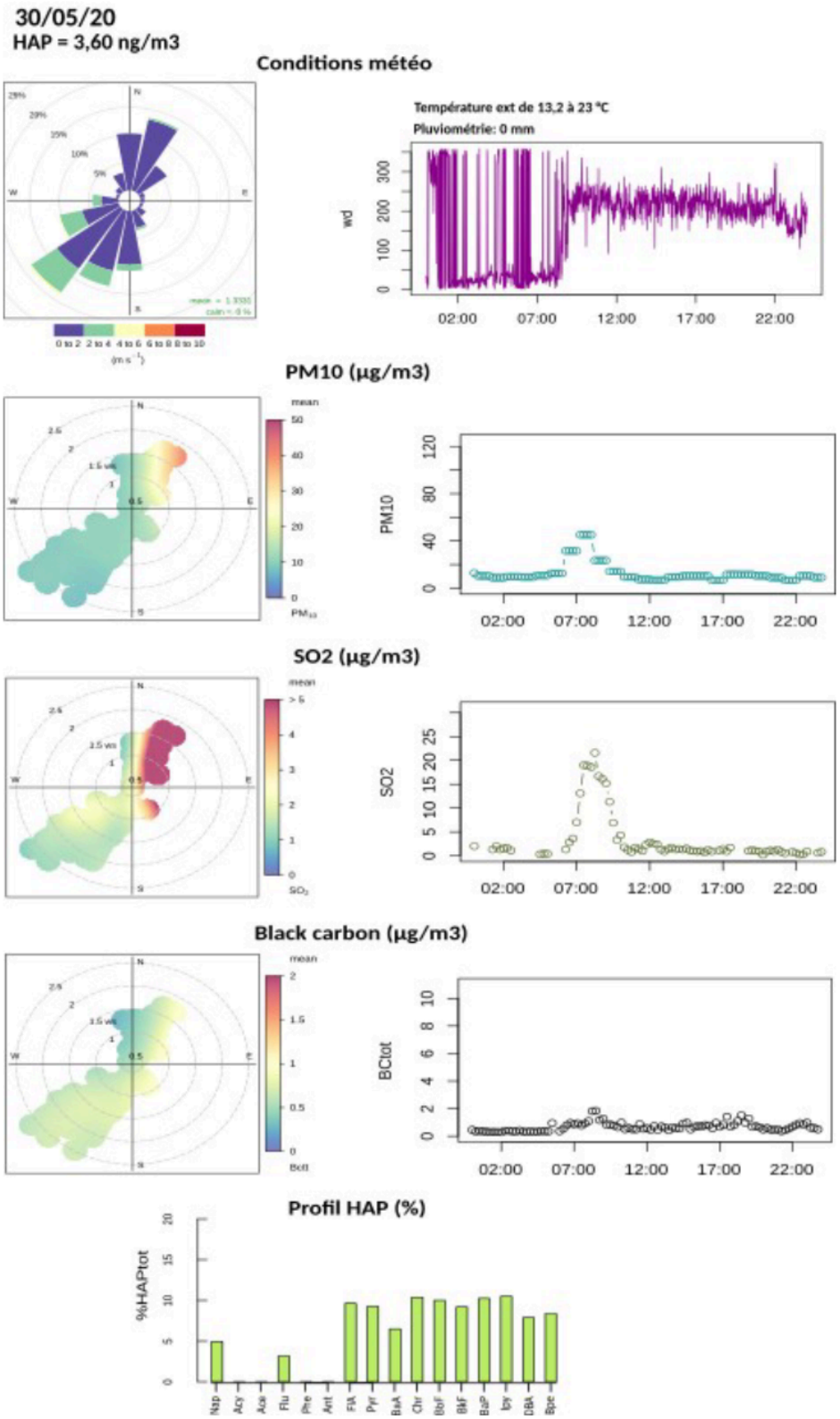
Annexe 8 : Polarplots et rose des vents du 30/05/20

Polarplots des concentrations en PM10, BC et SO_2 ; Rose des vents et graphique d'évolution de la direction des vents ; réalisés à partir des données du 30/05/20.



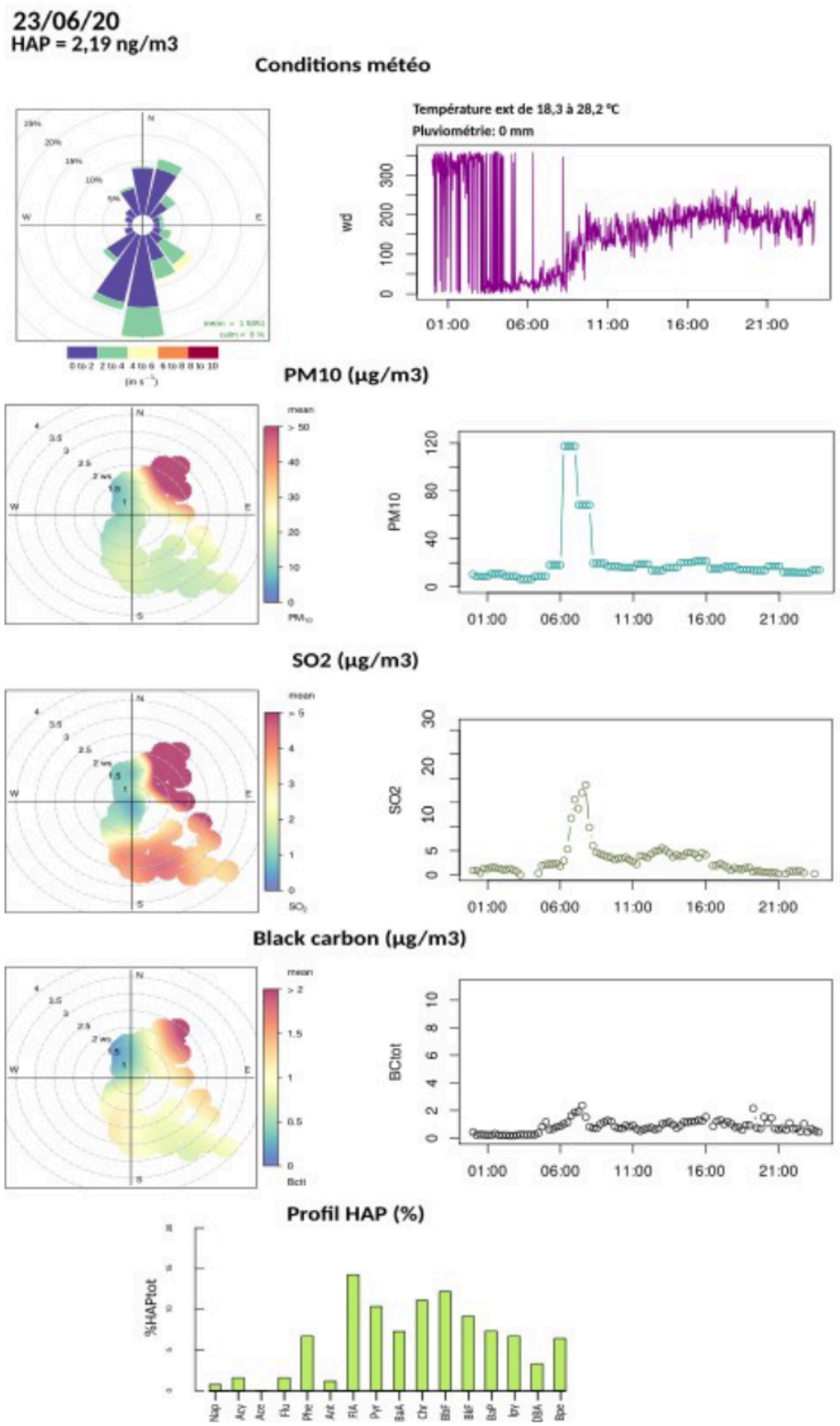
Annexe 9 : Polarplots et rose des vents du 05/06/20

Polarplots des concentrations en PM10, BC et SO_2 ; Rose des vents et graphique d'évolution de la direction des vents ; réalisés à partir des données du 05/06/20.



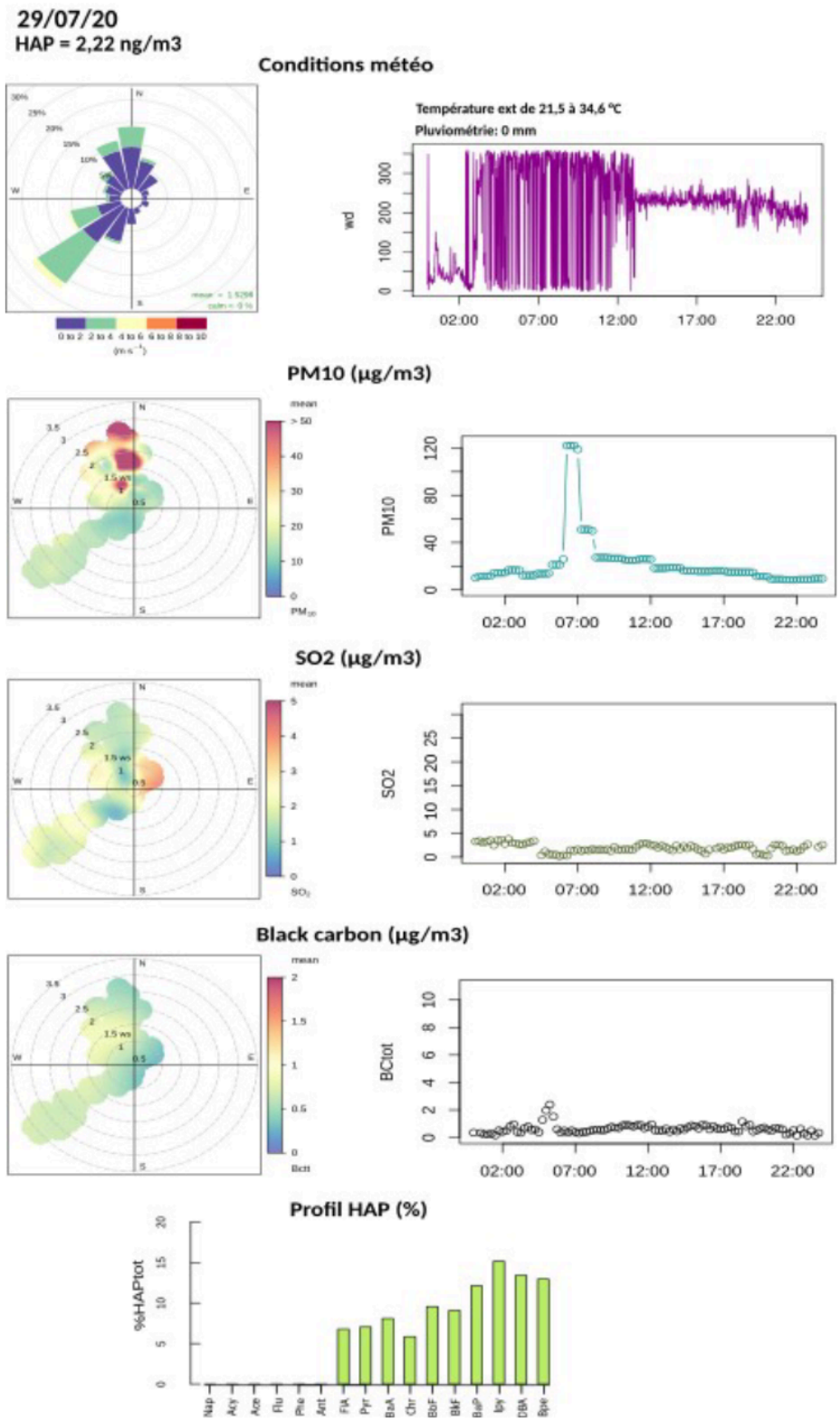
Annexe 10: Polarplots et rose des vents du 23/06/20

Polarplots des concentrations en PM10, BC et SO_2 ; Rose des vents et graphique d'évolution de la direction des vents ; réalisés à partir des données du 23/06/20.



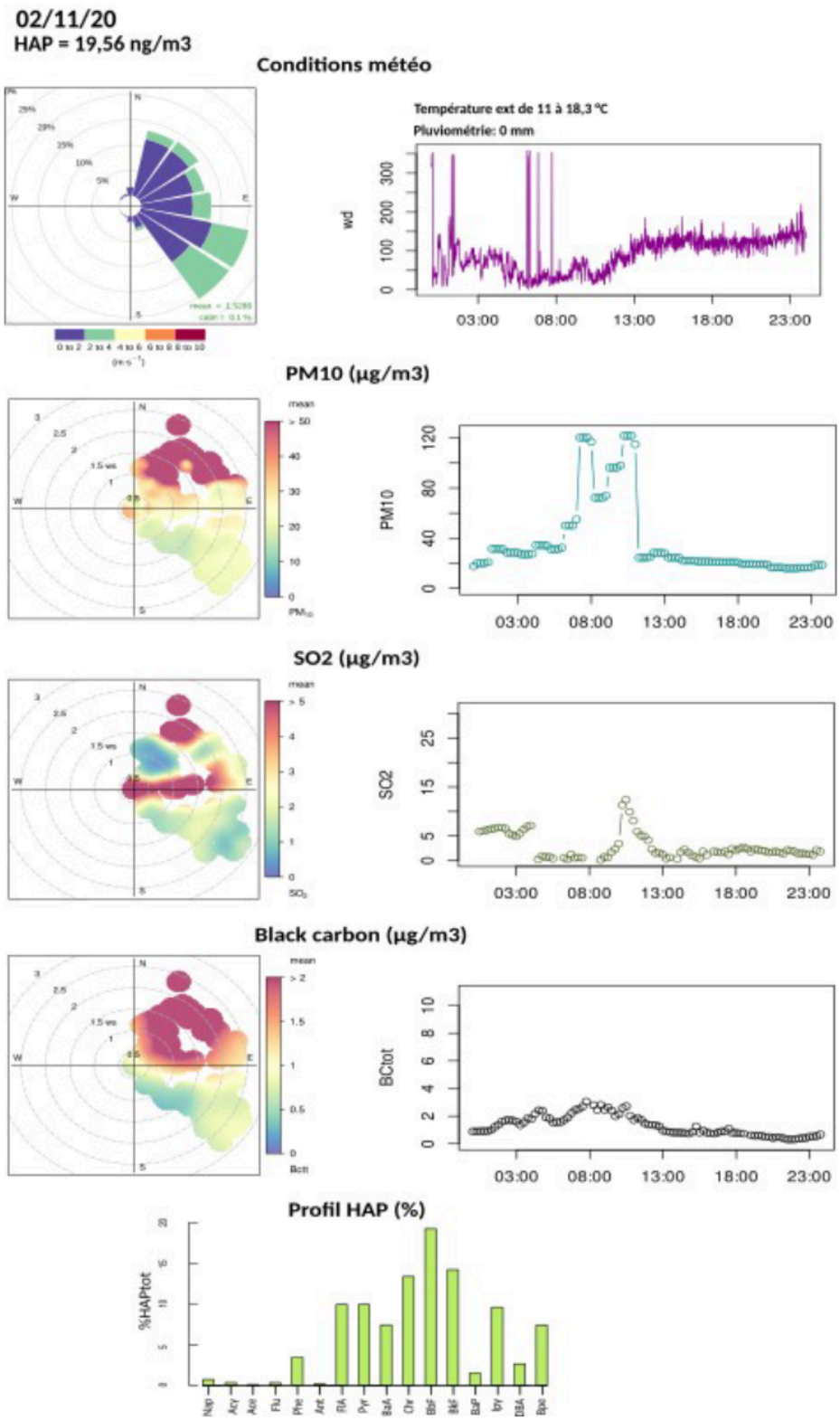
Annexe 11: Polarplots et rose des vents du 29/07/20

Polarplots des concentrations en PM10, BC et SO_2 ; Rose des vents et graphique d'évolution de la direction des vents ; réalisés à partir des données du 29/07/20.



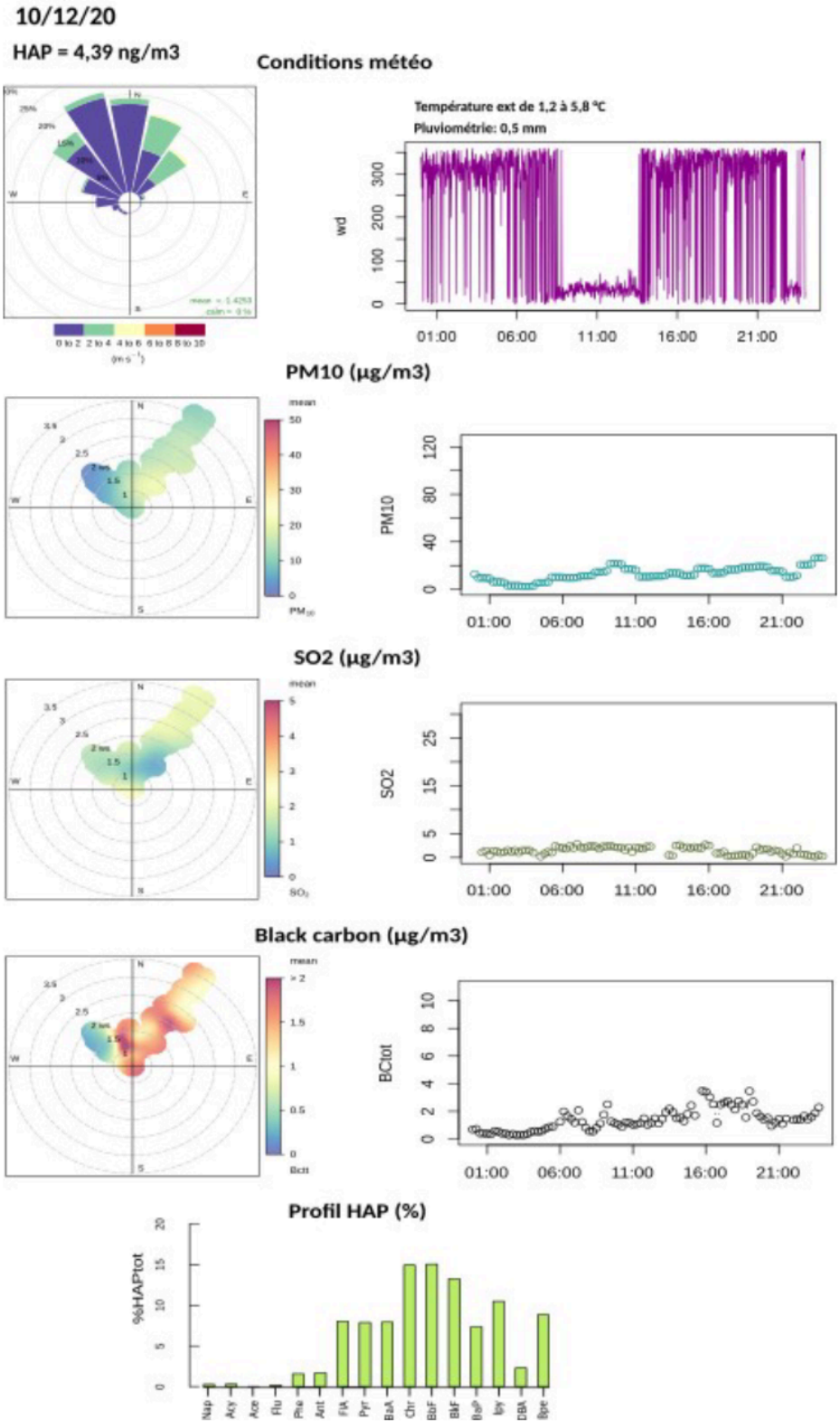
Annexe 12: Polarplots et rose des vents du 02/11/20

Polarplots des concentrations en PM10, BC et SO_2 ; Rose des vents et graphique d'évolution de la direction des vents ; réalisés à partir des données du 02/11/20.



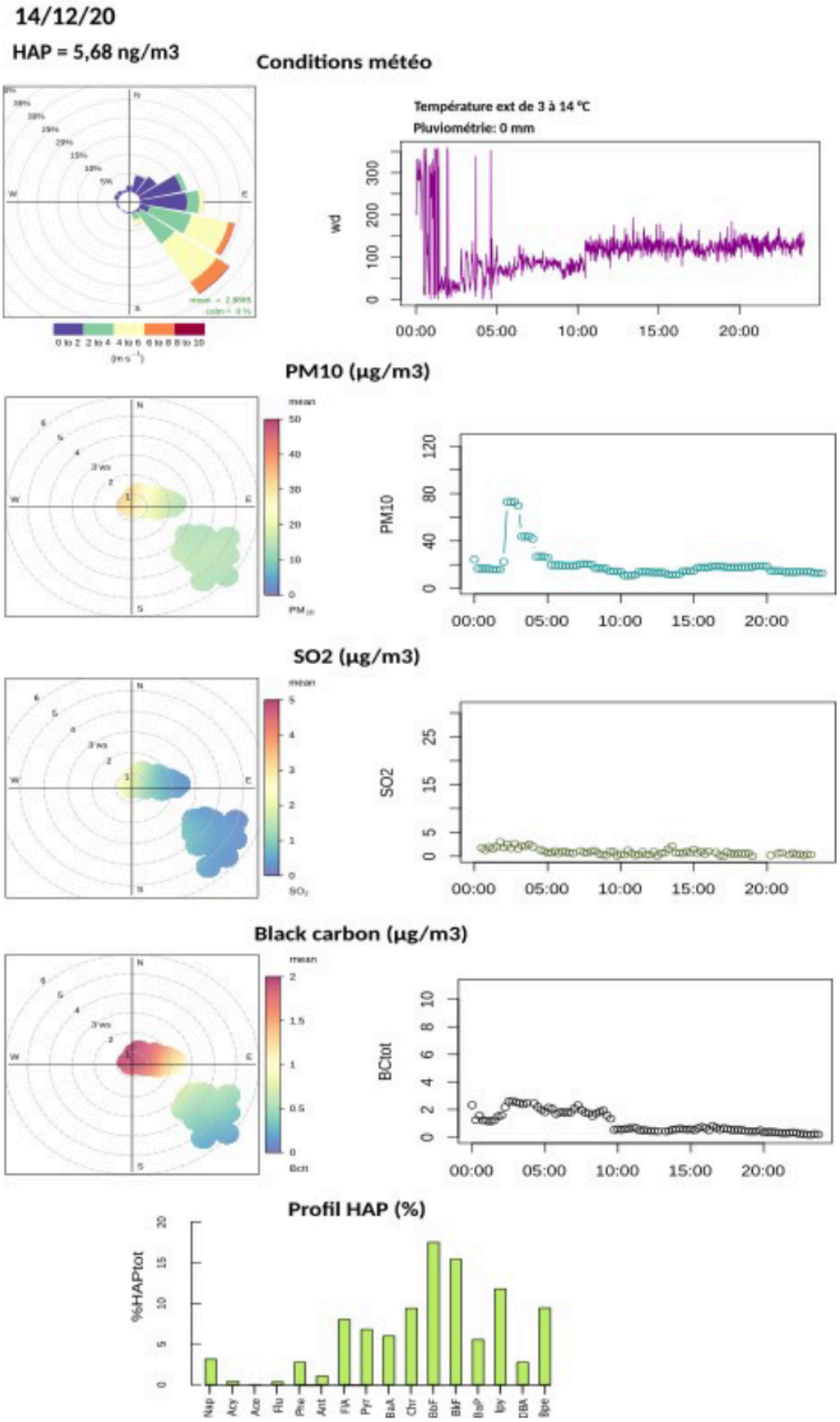
Annexe 13 : Polarplots et rose des vents du 10/12/20

Polarplots des concentrations en PM10, BC et SO_2 ; Rose des vents et graphique d'évolution de la direction des vents ; réalisés à partir des données du 10/12/20.



Annexe 14 : Polarplots et rose des vents du 14/12/20

Polarplots des concentrations en PM10, BC et SO_2 ; Rose des vents et graphique d'évolution de la direction des vents ; réalisés à partir des données du 14/12/20.



Annexe 15 : Compte rendu de la réunion publique HAPSIS

Organisée le mardi 21/09/21 à 18 heures

Salle Marcel Pagnol – Port-Saint-Louis-du-Rhône.

Public concerné

Réunion grand public – 45 participants.

Présence de l'équipe de l'Institut Ecocitoyen et de l'ensemble des partenaires : ATMOSUD (représenté par S. Mathiot) et le Laboratoire Chimie Environnement (représenté par H. Wortham).

Présence d'élus à la Mairie de Port-Saint-Louis-du-Rhône, d'administrateurs de l'Institut, d'associations locales et de représentants de la Métropole Aix-Marseille-Provence.

Déroulé de la réunion

Introduction par l'Institut Ecocitoyen et Henri Wortham (LCE).

Prise de parole de Monsieur Jean-Paul Gay, délégué à l'environnement et adjoint au Maire de Port-Saint-Louis-du-Rhône.

Présentation en 30 minutes de l'étude et des résultats d'HAPSIS par l'Institut Ecocitoyen :

- Présentation du contexte de l'étude.
- Présentation des objectifs de l'étude, des partenaires impliqués et du financement de l'action.
- Présentation de la méthodologie mise en œuvre.
- Présentation des résultats des mesures effectuées sur l'année 2020.
- Présentation des principales conclusions et perspectives.
- Remerciements.
- Intervention de Sébastien Mathiot (Atmosud).
- Echanges avec la salle.

Supports de communication

50 affiches au format A3 mises en place sur la commune de Port-Saint-Louis-du-Rhône dans les espaces recevant du public.

Publications dans le MAG de Port-Saint-ouis-du-Rhône.

Communication à travers les réseaux sociaux.

Dossier de presse

Transmis aux médias locaux (Maritima info, La Provence, La Marseillaise) et nationaux (20 minutes).

Articles parus dans chacun de ces médias les jours qui ont précédé et suivis la réunion.