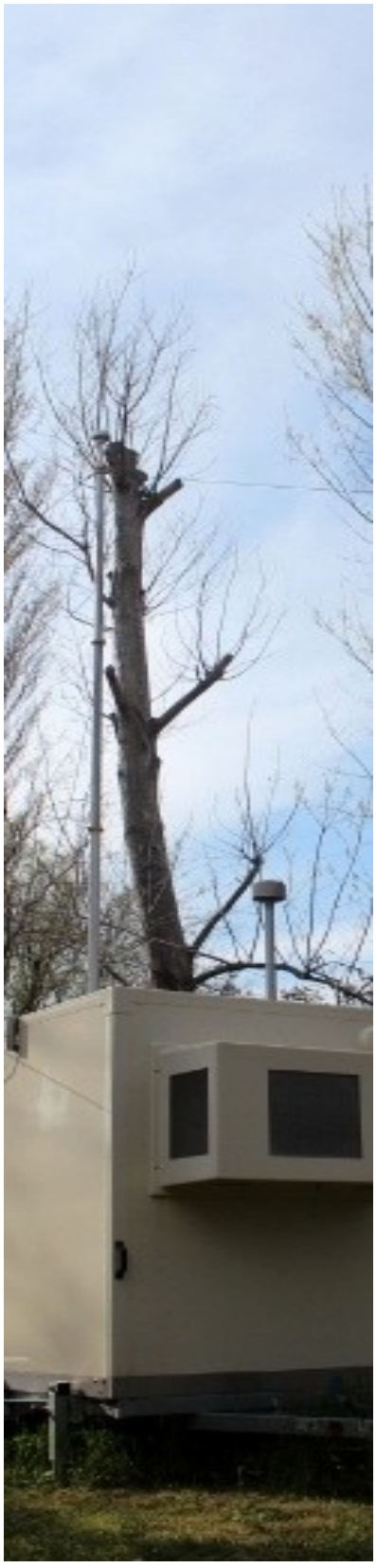
Rapport Technique

Nombre et taille des particules
en périphérie de zone industrialo-portuaire :

Essai de l'instrumentation SMPS

2014



Julien Dron
Institut Écocitoyen pour la Connaissance des Pollutions
Centre de Vie La Fossette
RD 268, 13270 Fos-sur-Mer
julien.dron@institut-ecocitoyen.fr
04 90 55 49 97

L'Institut Écocitoyen tient à remercier tout particulièrement Mr Vincent Pétisi et sa famille *pour avoir accueilli les moyens de mesures de l'Institut Écocitoyen avec un accès électrique sur leur lieu d'habitation.*

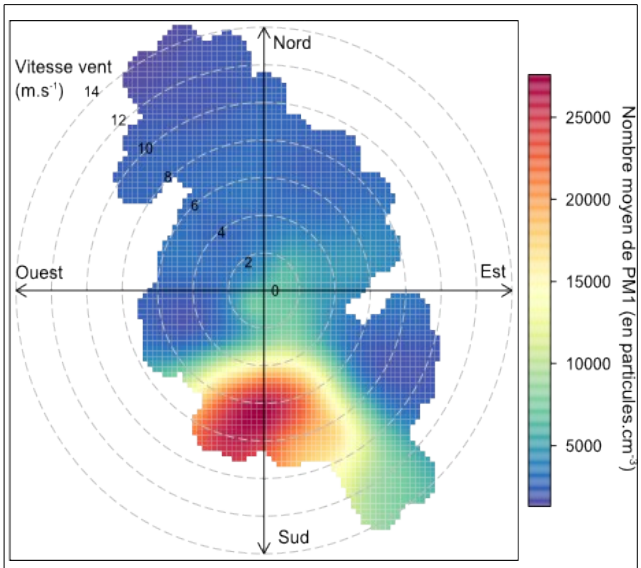
L'Institut remercie également Sébastien Mathiot et l'Association Agréée pour la Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA) AirPaca *pour nous avoir mis à disposition leurs données de surveillance et de météorologie.*

La mise en place du matériel a été réalisée avec l'aide d'Alexandre Sylvestre et Gautier Revenko, lequel a également grandement participé au suivi et aux relevés des mesures.

Dron J. (2014). *Mesure du nombre et de la taille des particules en périphérie de zone industrialo-portuaire.* Rapport Technique, Institut Écocitoyen pour la Connaissance des Pollutions, 21 p.

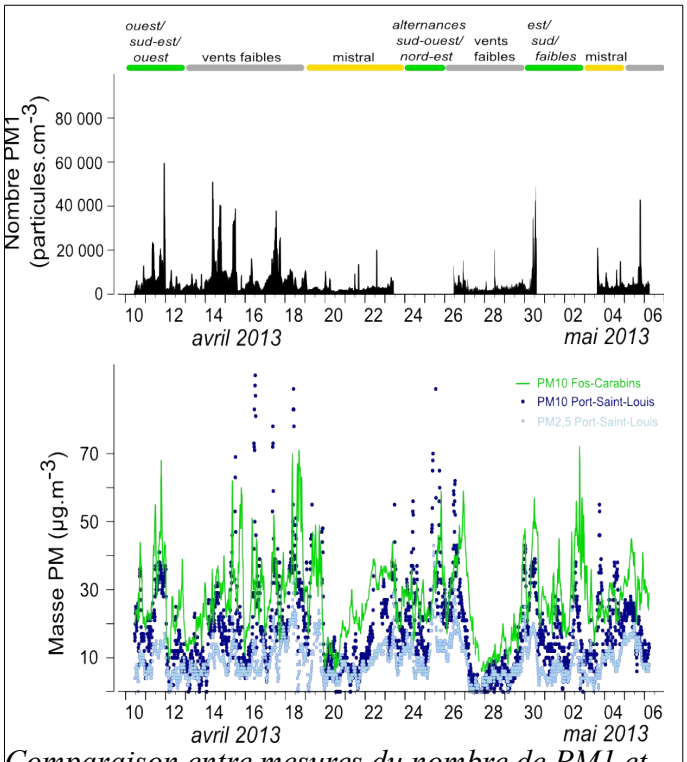
SYNTHESE

Suite aux résultats de la campagne de mesures atmosphériques CAMESCOP en juin 2011, il est apparu que la ville de Fos-sur-Mer et ses environs étaient soumis à une qualité de l'air fortement impactée par les émissions industrielles locales, situées au sein de la zone industrialo-portuaire (ZIP) de Fos et sur le pourtour de l'Étang de Berre. Cette particularité expose la zone à des aérosols spécifiques, dont les caractéristiques sont notamment des particules ultra-fines et très nombreuses, difficiles à mesurer par les techniques classiques employées par les AASQA. En conséquence, l'Institut Écocitoyen s'est doté d'un instrument de mesure du nombre et de la taille des particules dans l'air (système SMPS) afin d'assurer leur suivi long-terme à proximité de la ZIP de Fos.



Rose des pollutions en nombre de PM1 (p. 7)

Ici sont présentés les résultats des essais qui ont été réalisés au Mas de Gonon (à proximité du Mas des Bannes, commune de Fos-sur-Mer), effectués afin de préparer une campagne de mesures long-terme. Dans l'ensemble, les performances du système installé dans le dispositif SMOCCA (Système Mobile pour la Caractérisation Chimique de l'Air) ont été très satisfaisantes. Le principal problème rencontré est dû à des coupures de courant, provoquant des interruptions dans l'acquisition des données. Il est donc apparu nécessaire à l'avenir de brancher le matériel sur un onduleur, afin d'éviter les interruptions dans les séries de données mais aussi pour protéger le matériel des surtensions notamment. Le logiciel libre R utilisé avec un package dédié aux études de qualité de l'air (openair) a permis l'exploitation et l'interprétation de la série de données obtenue, et semble à même d'être utilisé sur des séries temporelles longues de plusieurs années.



Comparaison entre mesures du nombre de PM1 et des masses de PM10 et PM2,5 (p12)

Les conditions météorologiques ont été très perturbées au cours des mois d'avril et mai 2013. Malgré tout, l'origine des particules au Mas de Gonon apparaît clairement au sud pointant la ZIP et le complexe de Lavéra au-delà. Le nombre de particules a atteint 75 000 particules.cm^{-3} alors qu'aucune véritable source urbaine n'existe à moins de 10 km. La médiane est d'ailleurs de seulement 3 300 particules.cm^{-3} et caractérise cet isolement. Son exposition est donc très liée aux émissions industrielles et la plus haute moyenne quotidienne (13 600 particules.cm^{-3}) est d'ailleurs apparue un dimanche.

La taille des particules semble également caractériser l'influence industrielle, avec plus de 80 % d'entre elles dont la taille est inférieure à 100 nm de diamètre et un maximum de leur distribution à 56 nm. On constate que les pics apparaissent là encore de façon brusque et intense. Ils semblent corrélés aux niveaux de SO_2, mais très peu aux concentrations de PM10.

SOMMAIRE

INTRODUCTION 1

I- CONDITIONS EXPERIMENTALES 3

1. Localisation et environnement du site de mesures 3
2. Mesure du nombre et de la taille des particules 4
3. Conditions météorologiques 5

II- RÉSULTATS DES MESURES 7

1. Nombre de PM1 7

a) Valeurs mesurées 7

b) Évolution en fonction du temps et des conditions météo 7

c) Nombre de PM1 et direction du vent 10

2. Granulométrie des particules 11

3. Données SMPS et mesures de surveillance PM, O3, SO2 12

a) Données de surveillance 12

b) Comparaison avec le nombre de PM1 13

3 Problèmes rencontrés 15

CONCLUSIONS 17

RÉFÉRENCES 19

INDEX DES FIGURES 20

INDEX DES TABLEAUX 21

INTRODUCTION

Le territoire du SAN Ouest-Provence, et notamment le littoral du Golfe de Fos sont marqués par une forte industrialisation, avec la présence d'usines sidérurgiques, chimiques et pétrochimiques, ou encore d'incinérateurs à ordures ménagères et industrielles. Il faut également rappeler que le Golfe de Fos accueille une grande partie de l'activité du Grand Port Maritime de Marseille-Fos (GPMM), d'envergure internationale que ce soit au niveau du trafic pétrolier, méthanier, minéralier, ou conteneurs. Il est de plus indispensable de prendre en compte l'ensemble des autres activités industrielles du pourtour de l'Étang de Berre, notamment les complexes pétrochimiques de Lavéra, de La Mède, et de Berre-Rognac, qui peuvent également apporter une contribution non-négligeable à la dégradation de la qualité de l'air de Fos-sur-Mer et des autres communes de l'intercommunalité. L'ensemble de ces activités conduit à de nombreux questionnements des acteurs locaux mais aussi des scientifiques sur leur impact sanitaire et environnemental, auxquels il est devenu essentiel de répondre.

En 2011, la campagne de mesures atmosphériques des composés organiques volatiles et des particules (CAMESCOP) conduite par l'Institut Écocitoyen a fourni un état des lieux complet sur les caractéristiques physico-chimiques de l'air sur le site de Fos/Carabins, avec les moyens de la recherche scientifique (Dron et Chamaret, 2013). Par exemple, des données importantes sur les évolutions en temps réel des teneurs en COV ou de la composition chimique des particules ont pu être obtenues pour la durée de la campagne (mois de juin 2011), permettant ainsi une grande amélioration des connaissances des aérosols sur le territoire. Elle a notamment mis en évidence une grande complexité induite principalement par le grand nombre de sources fixes que sont les émissaires atmosphériques des installations industrielles (cheminées, émissions diffuses...). Celles-ci semblent très diversifiées et entraîner des élévations importantes du nombre de particules, des COV, ainsi que des modifications marquées de la composition chimique de ces aérosols.

Le nombre de particules a dépassé plusieurs fois 100 000 particules.cm^{-3} lors de l'étude CAMESCOP, et présenté une moyenne de 12 000 particules.cm^{-3}. Ce niveau moyen est considéré comme typique d'un fond urbain de grande ville telle que Marseille par exemple, et des pics aussi intenses sont rarement observés même en ville si l'on s'écarte des grands axes routiers (Jaffrezo et Marchand, 2008). La granulométrie des particules a aussi présenté des caractéristiques particulières avec une forte contribution des particules ultra-fines (diamètres inférieur à 100 nm) comparé à ce qui peut être obtenu en milieu urbain notamment (Putaud, 2010). Pourtant, ces particules sont généralement considérées comme les plus dangereuses d'un point de vue sanitaire car elles sont les plus à même de pénétrer profondément dans l'arbre bronchique ou de franchir les barrières cellulaires au niveau des voies respiratoires supérieures.

Suite à ces observations concernant la taille et le nombre de particules, l'Institut Écocitoyen a prévu la mise en place d'un programme de suivi à long-terme de la taille et du nombre de particules (SULTTAN), impliquant l'installation d'un appareillage de type SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer) pendant plusieurs années à proximité de la zone industrialo-portuaire de Fos. La campagne de mesures dont les résultats sont présentés ici constitue la première utilisation de ce matériel, et avait pour but de tester les capacités de l'appareillage en conditions réelles et les possibilités d'interprétation des résultats obtenus. Il s'agissait aussi de vérifier l'ensemble des problèmes pouvant intervenir dans l'optique d'une mise en place sur le long-terme. L'appareil SMPS a ainsi été placé du 10 avril au 6 mai 2013 au sein du dispositif SMOCCA (Système Mobile de Caractérisation Physico-chimique de l'Air) de l'Institut Écocitoyen stationné à cette période au Mas de Gonon, sur la commune de Fos à proximité de la zone des Bannes.

I- CONDITIONS EXPÉRIMENTALES

1- Localisation et environnement du site de mesures

Le site retenu pour les mesures de nombre et taille de particules dans le cadre de cette étude technique est localisé au lieu-dit Mas de Gonon. Le site hébergeait au moment de l'acquisition du matériel de mesure le moyen mobile de mesures atmosphériques de l'Institut Écocitoyen (SMOCCA, Système mobile pour la caractérisation chimique de l'aérosol) dans le cadre de l'étude de faisabilité d'un dispositif de prélèvements amont/aval simultanés pour la campagne ESTAMPE (Estimation des sources par les traceurs dans les aérosols pour la mesure des profils d'émission). Il était donc indiqué pour réaliser les divers essais du matériel, et effectuer les premières mesures, à proximité de la zone industrialo-portuaire (ZIP) de Fos-sur-Mer.

L'environnement du site de mesure est représenté sur la Figure 1. On peut remarquer son éloignement des différentes zones urbanisées alentour, en particulier au nord (Saint-Martin de Crau à 20 km, Arles à 30 km) et à l'ouest (Port-Saint-Louis-du-Rhône à 10 km au sud-ouest). Dans ces directions on trouve respectivement la plaine de Crau et la Camargue, zones principalement naturelles très peu habitées et en partie cultivées (cultures maraîchères en Crau, riziculture en Camargue notamment). Les villes les plus proches se situent toutes à l'est du site, Fos-sur-Mer à 5 km, Istres et Port-de-Bouc à environ 10 km. Au sud s'étend la zone industrialo-portuaire de Fos, d'envergure internationale et comprenant notamment un complexe sidérurgique (éloigné seulement de 2 à 5 km du site), une raffinerie (5 km), deux incinérateurs à ordures (6 km), ainsi qu'un terminal conteneur important au sud-ouest et le complexe pétrochimique de Lavéra (14 km au sud-est). Il

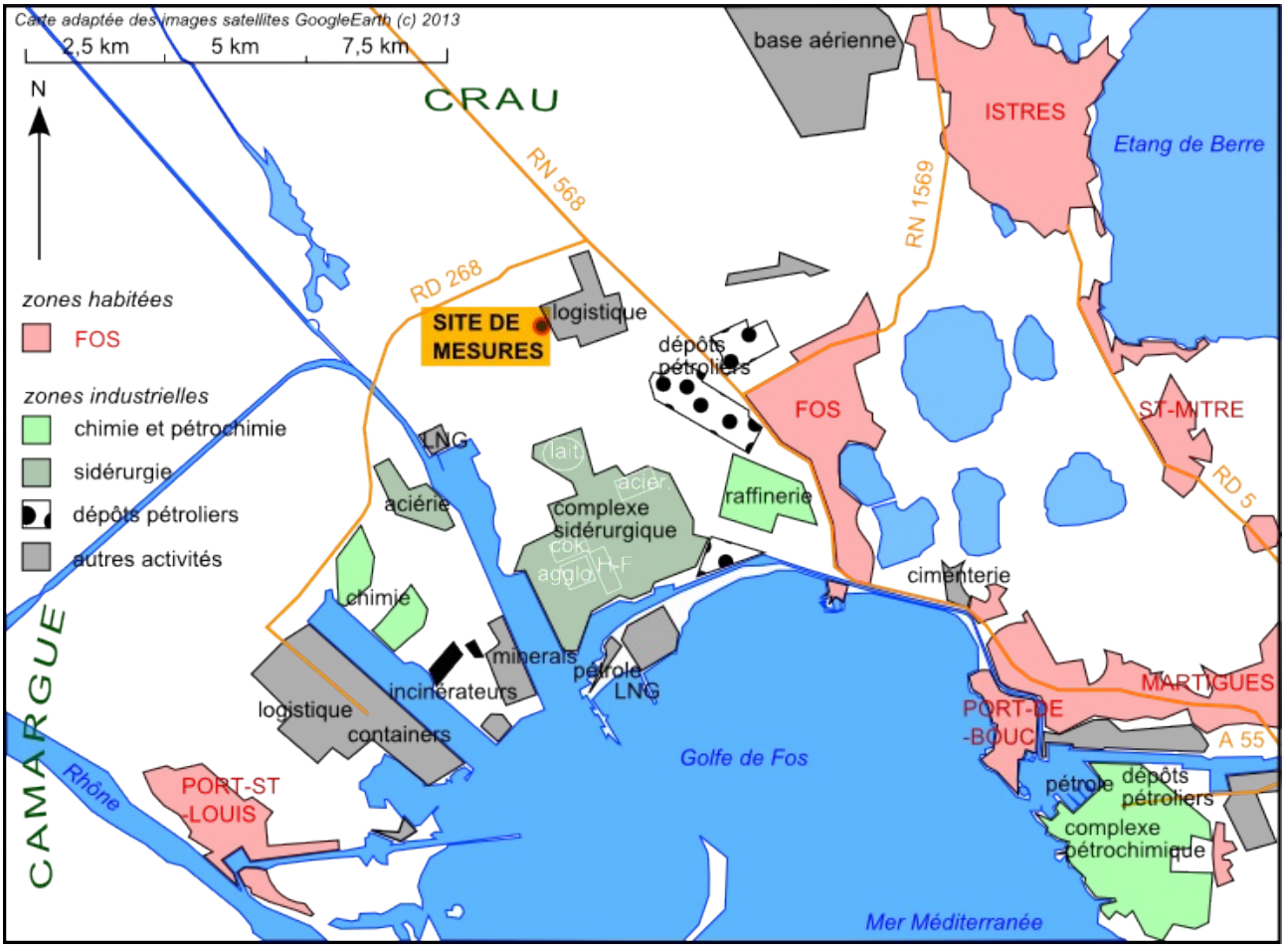


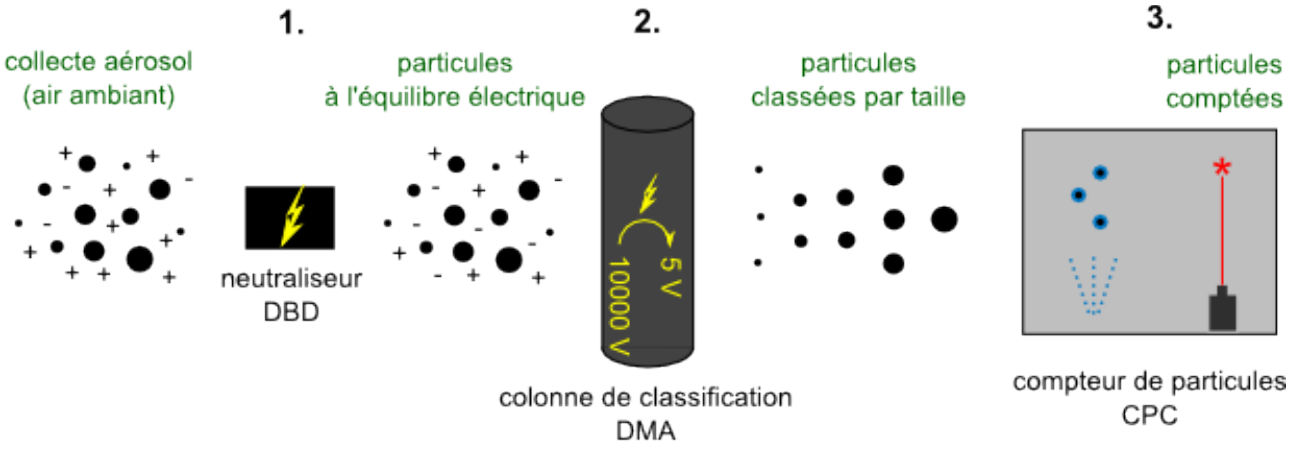
Figure 1. Localisation du site de mesures.

faut de plus noter la présence de nombreux dépôts pétroliers dans cette zone (2 à 5 km pour les plus proches) qui représente le 3ème port pétrolier mondial, ainsi que plusieurs centres logistiques dont le plus proche est à seulement 200 m du site de mesures. Pour conclure, il s'agit donc d'un site éloigné des zones urbaines, mais proche de nombreuses activités industrielles diverses, qu'on peut qualifier d'industrie lourde dans l'ensemble.

2- Mesure du nombre et de la taille des particules

La mesure du nombre et de la taille des particules est assurée par un compteur de particules à condensation (CPC) équipé d'une colonne permettant de séparer les particules selon la taille (analyseur différentiel par mobilité électrique, DMA). Un neutraliseur bipolaire électrique (DBD, dielectric barrier discharge) permet de placer les particules à l'équilibre de Boltzmann avant leur séparation en fonction de la taille. Le neutraliseur DBD commercialisé depuis peu permet de s'affranchir de la source radioactive utilisée jusqu'à présent dans ce type d'appareil.

L'ensemble, schématisé sur la Figure 2, est généralement nommé SMPS (Scanning mobility particle sizer). L'appareil utilisé ici est un modèle CPC 5416 (Grimm, Allemagne) équipé d'une longue DMA de type « Vienna ». Il permet la mesure du nombre de particules sur une gamme allant de 0,01 à 150 000 particules.cm^{-3} par classe de taille. Ici, on sépare les particules selon 45 classes de tailles entre 10 et 1 100 nm, mais l'appareil peut aller jusqu'à séparer 128 classes ce qui allonge en revanche notablement le temps de mesure. Avec 45 classes de tailles, configuration classiquement utilisée en mesure atmosphérique environnementale, le pas de temps de la mesure est de 7 min. Enfin, l'air a ici été échantillonné au moyen d'un tuyau en polypropylène de 4,8 mm de diamètre, classiquement utilisé pour les appareils de mesures des gaz, connecté à une tête de prélèvement gaz simplement protégée des intempéries par un chapeau en inox.



1. L'air collecté est d'abord placé à l'équilibre de Boltzman (équilibre des charges électriques), pour s'assurer la classification par taille de toutes les particules dans des conditions contrôlées.

2. Les particules sont classées en fonction de leur taille par le principe de mobilité électrique. Chargées électriquement, la tension appliquée dans la colonne DMA permet de ne laisser passer que les particules d'une certaine taille. Par exemple, pour une tension de 10 000 V, seules les particules entre 900 et 1093 nm peuvent traverser la colonne, alors qu'à 5 V seules les plus fines sont susceptibles de le faire (10,3 à 11,1 nm).

3. Pour chaque classe de taille l'une après l'autre, les particules sont vaporisées de butanol afin de les grossir et permettre leur détection par laser. L'application de facteurs correctifs permet ensuite au logiciel de recalculer le nombre de particules pour chacune des classes de tailles.

Figure 2. Schéma du principe de fonctionnement d'un SMPS.

Le dispositif SMOCCA de l'Institut Écocitoyen, au sein duquel a été installé l'appareil, dispose également de l'enregistrement des données météorologiques de vent au moyen d'un capteur ultrasonique à deux dimensions WMT 520 (Vaisala, Finlande) utilisé pendant la période de mesure sur un pas de temps de 5 min et connecté à un préleveur HVS DA-80 (Digitel, Suisse) pour l'enregistrement des données. L'ensemble du dispositif SMOCCA a été climatisé à 20 °C.

Enfin, l'exploitation et l'interprétation des données ont été réalisées au moyen du logiciel R (R Core Team, 2012) et du package openair (Carslaw, 2012).

3- Conditions météorologiques

La campagne de mesures a eu lieu du 10 avril au 6 mai 2013, dans des conditions météorologiques perturbées. Météo-France a notamment relevé à Istres 11 jours de pluie en avril et 10 en mai, soit des nombres de jours de pluie proches des records enregistrés depuis 30 ans (qui sont de 12 et 11 jours respectivement, Météo-France 2013).

La campagne a toutefois débuté par une semaine ensoleillée avec des vents faibles plutôt favorables à l'accumulation des polluants atmosphériques autour de leurs zones d'émission. Ces conditions ont ensuite laissé place à une période de fort mistral précédant une semaine de pluie intense (59 mm en 5 jours, soit plus que la normale pour l'ensemble d'un mois d'avril, Météo-France 2013). Enfin, la fin du mois et les premiers jours de mai ont présenté des conditions très changeantes. La température n'a pratiquement pas excédé 25 °C au cours de cette période, montrant des valeurs légèrement en dessous des normales calculées sur les 30 dernières années (Météo-France 2013).

II- RÉSULTATS DES MESURES

1- Nombre de PM1

a) Valeurs mesurées

Les valeurs mesurées sont résumées dans le Tableau 1. La valeur médiane montre que la moitié des mesures sont inférieures à 3 300 particules.cm^{-3}, situant le site à priori dans des niveaux de zones rurales (Putaud, 2010). La moyenne sur l'ensemble de l'étude est de 5 200 particules.cm^{-3}. Elle est nettement supérieure au niveau médian, indiquant que la moyenne est tirée vers le haut par des pics très supérieurs aux valeurs habituellement mesurées. En effet, on trouve un maximum à près de 75 000 particules.cm^{-3} ou encore une moyenne horaire pouvant atteindre plus de 35 000 particules.cm^{-3}, soit des niveaux très inhabituels pour un site aussi isolé. On retrouve de tels écarts dans les moyennes journalières, qui vont de 1 900 particules.cm^{-3} caractéristiques d'un site rural à 13 600 particules.cm^{-3} typiques d'un grand centre urbain. Enfin, il faut rappeler que les conditions météo ont été très perturbées et dans l'ensemble peu propices à l'accumulation des polluants dans l'air (voir I-3).

À titre indicatif, on rappelle qu'en fond urbain on rencontre en moyenne entre 10 000 et 20 000 particules.cm^{-3} et qu'un niveau moyen de 12 000 particules.cm^{-3} a été observé lors de la campagne CAMESCOP réalisée à Fos-Carabins pendant tout le mois de juin 2011 (Dron et Chamaret, 2013). Cette dernière qui présentait une médiane trois fois plus élevée (10 200 particules.cm^{-3}) avait également vu le nombre de PM1 dépasser 100 000 particules.cm^{-3} à plusieurs occasions associées à des épisodes dont l'origine industrielle était corroborée par l'ensemble des paramètres analysés.

b) Évolution en fonction du temps et des conditions météo

L'évolution du nombre de PM1 en fonction du temps est présentée dans la Figure 3, avec en parallèle les principaux indicateurs météo (précipitations, températures maximales, régimes de vent). On peut y remarquer plusieurs épisodes relativement intenses en début de campagne jusqu'au 17 avril, suivis d'une période de mistral (19 au 23 avril) et de fortes pluies (25 au 29 avril) où les niveaux enregistrés dépassent rarement 10 000 particules.cm^{-3}. On retrouve plusieurs pics en fin de campagne (notamment les 30 avril et 5 mai). Il faut également noter l'absence de mesures pendant deux périodes de 3 jours (23 au 26 avril, et 1er au 3 mai), dues à des coupures électriques et malheureusement coïncidant avec des régimes de vent présentant des composantes sud marquées.

Tableau 1. Résultats des mesures SPMS du nombre total de PM1 au cours de la campagne du 10 avril au 6 mai 2013 conduite au Mas de Gonon.

Nombre total PM1 (.cm^{-3}, pas de temps 7 min)					
min.	1er quartile	médiane	moyenne	3ème quartile	max.
407	2183	3285	5222	5784	74540
Moyennes horaires (nb total PM1 .cm^{-3})					
min.	1er quartile	médiane	moyenne	3ème quartile	max.
821	2250	3416	5249	5972	35190
Moyennes journalières (nb total PM1 .cm^{-3})					
min.	1er quartile	médiane	moyenne	3ème quartile	max.
1868	2995	3938	5243	5790	13610

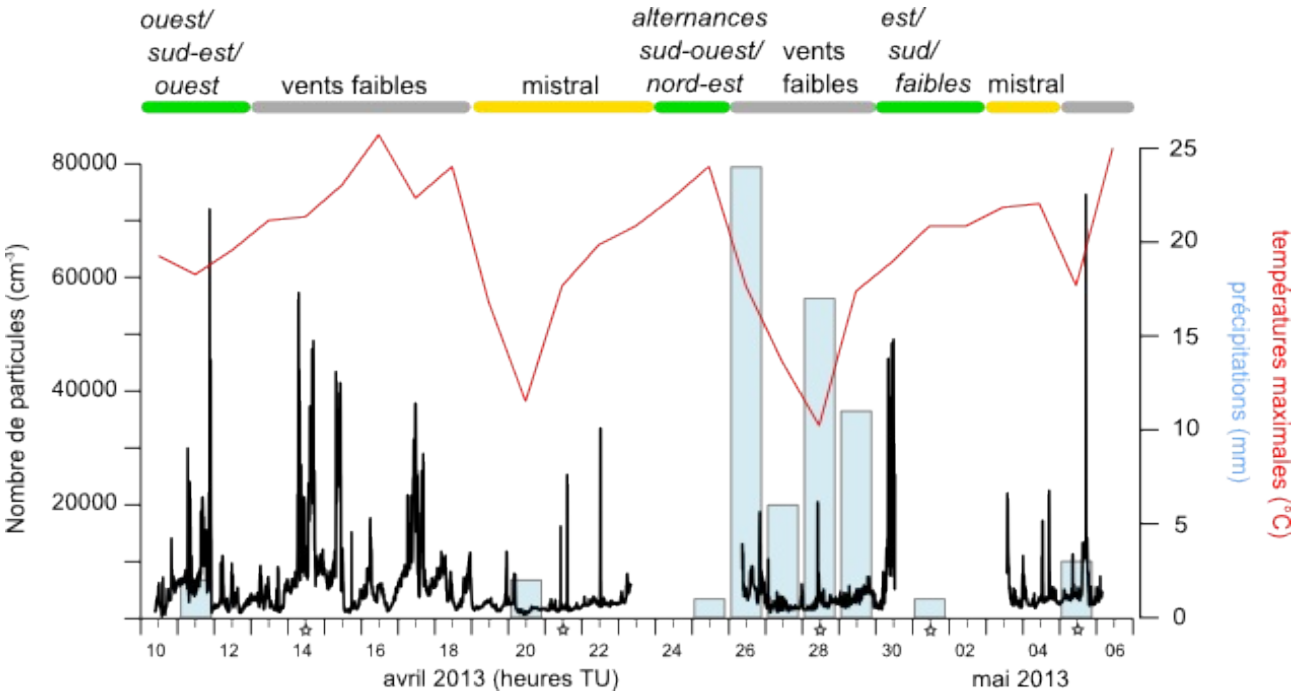


Figure 3. Évolution du nombre de PM1 au cours de la campagne, régimes de vent déduits des données AirPaca (station de Crau), et hauteurs de précipitations et températures maximales enregistrées quotidiennement par la station Météo-France d'Istres (Météo-France, 2013).

Données SMPS au pas de temps 7 min, exprimées en heures TU (ajouter 2h pour l'heure locale).
Les ☆ marquent les dimanches et jours fériés.

Si les périodes de fortes pluies sont globalement associées à des niveaux peu élevés du nombre de PM1, on trouve aussi des épisodes de pollution en nombre de PM1 alors que 2 et 3 mm de précipitations ont été enregistrés les 11 avril et 5 mai, respectivement. La résolution temporelle des hauteurs de précipitations n'est pas suffisante pour étudier la corrélation entre les deux paramètres lors de ces journées, mais pourrait constituer une piste d'étude intéressante sur des séries de données à long terme intégrant d'autres paramètres de précipitations (vitesses, tailles des gouttes).

D'autre part, on peut noter que la moyenne journalière la plus élevée (13 600 particules.cm^{-3}) a été relevée un dimanche (14 avril), tout comme le pic le plus intense (5 mai). Aucune corrélation avec les jours ouvrés ne peut être établie, écartant à priori toute influence directement imputable à l'augmentation du trafic routier aux horaires de travail.

De manière comparable à l'étude CAMESCOP (Dron et Chamaret, 2013), on observe l'apparition de nombreux pics très intenses en nombre de PM1, notamment hors-mistral. Ces épisodes apparaissent le plus souvent de manière brutale, pour disparaître aussi brusquement. Ils peuvent durer quelques minutes (5 mai par exemple) ou plusieurs heures (début de campagne ou 30 avril). On peut également noter une élévation sur plus de 24 heures du niveau de base qui atteint presque 10 000 particules.cm^{-3} les 10-11, 14-15 et 17-18 avril notamment.

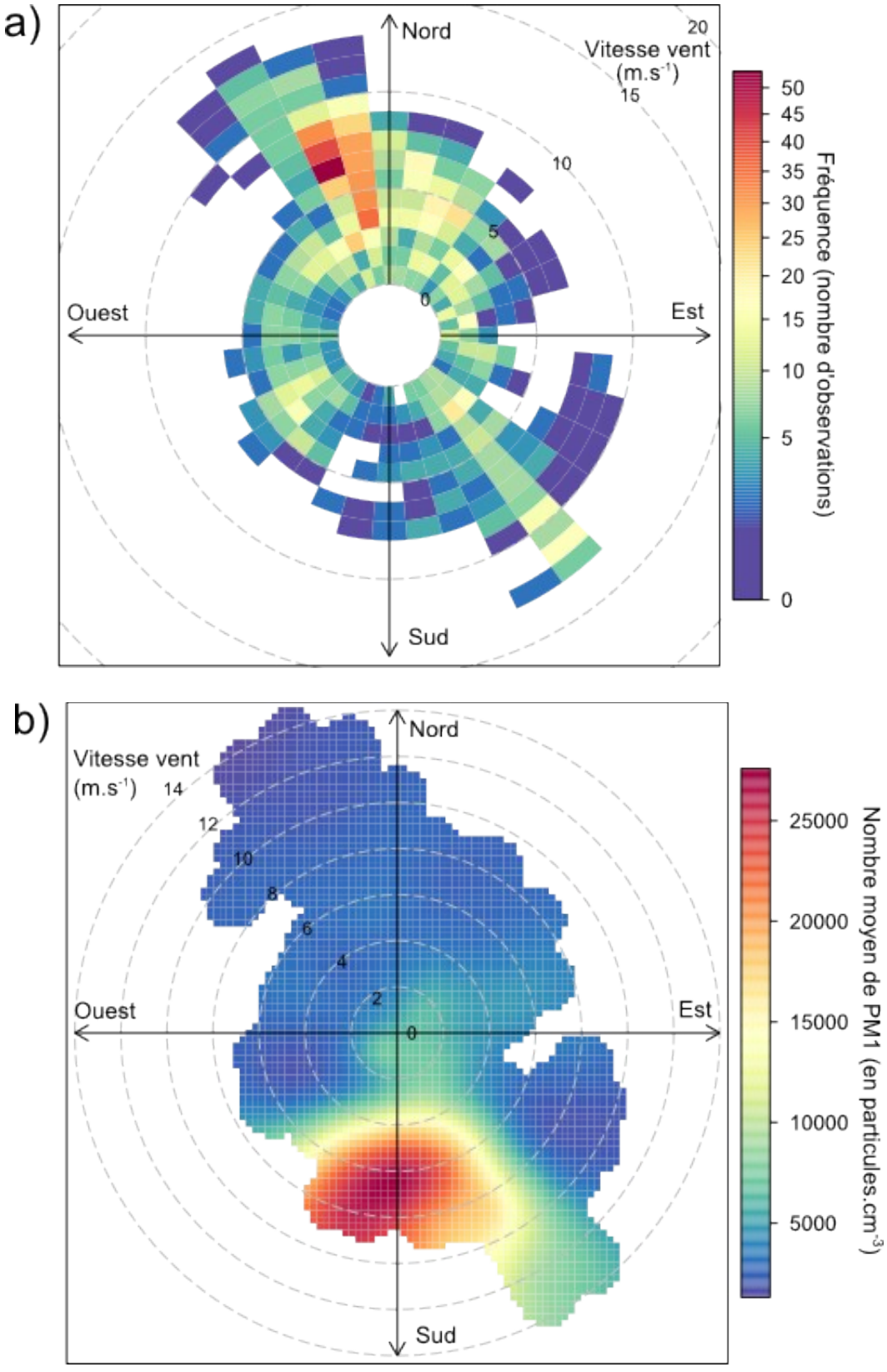


Figure 4. a) fréquence des observations selon les directions de provenance et de vitesse du vent enregistrées par la station AirPaca de Crau, et b) nombre de PM1 mesuré moyen en fonction de la direction de provenance du vent et sa vitesse.

Graphes réalisés au moyen des fonctions a) polarFreq, et b) polarPlot utilisant la fonction moyenne pour l'interpolation, avec le package « openair » du logiciel R (R Core Team, 2012 ; Carslaw, 2012).

c) Nombre de PM1 et direction du vent

En plus des précipitations lorsqu'elles sont intenses, les conditions de vent sont généralement considérées comme les principaux paramètres influant sur les niveaux de PM1 journaliers dans l'air. On peut en effet considérer que la production de PM1 est constante dans la zone de Fos, et semble du moins non impactée par les horaires de travail. La Figure 3 montre par exemple lors de la campagne au Mas de Gonon que les jours de mistral du 19 au 23 avril ont présenté les plus bas niveaux en nombre de PM1.

L'origine du vent et la répartition du nombre de PM1 en fonction des conditions de vent sont représentées sur la Figure 4. On peut d'abord remarquer que les conditions ont été dominées par des vents de nord relativement forts (notamment nord-nord-ouest entre 5 et 10 $m.s^{-1}$), et des composantes sud-est et ouest importantes (Figure 4a). Au contraire, on remarque immédiatement sur la Figure 4b que le nombre de particules est en moyenne nettement plus élevé lorsque le vent provient du sud, en particulier par une vitesse supérieure à 4 $m.s^{-1}$ (environ 15 $km.h^{-1}$). On peut également noter un niveau moyen d'environ 10 000 $particules.cm^{-3}$ par vent nul, et lorsqu'il provient de la direction est-nord-est. Cette dernière avait également été relevée lors de l'étude CAMESCOP, et semble une direction relativement privilégiée pour les PM1 alors qu'elle comporte à priori peu de sites industriels proches (Dron et Chamaret, 2013). Plusieurs hypothèses peuvent être avancées, comme une provenance plus éloignée située autour de l'Étang de Berre (Berre-Rognac par exemple) ou le résultat de mouvements de masses d'air plus complexes.

Les conditions de vent les plus représentées pendant cette campagne sont donc des conditions de mistral, notamment de provenance nord-nord-ouest à une vitesse comprise entre 5 et 10 $m.s^{-1}$ (Figure 4a). Aussi, on peut voir sur la Figure 4b que lors de cette campagne, les conditions de mistral ont montré un niveau moyen du nombre de PM1 inférieur à 5 000 $particules.cm^{-3}$ et même les mesures les plus basses enregistrées lorsque la vitesse a dépassé 10 $m.s^{-1}$. Des mesures très basses ont également été observées par vent d'ouest (en provenance de Camargue à priori).

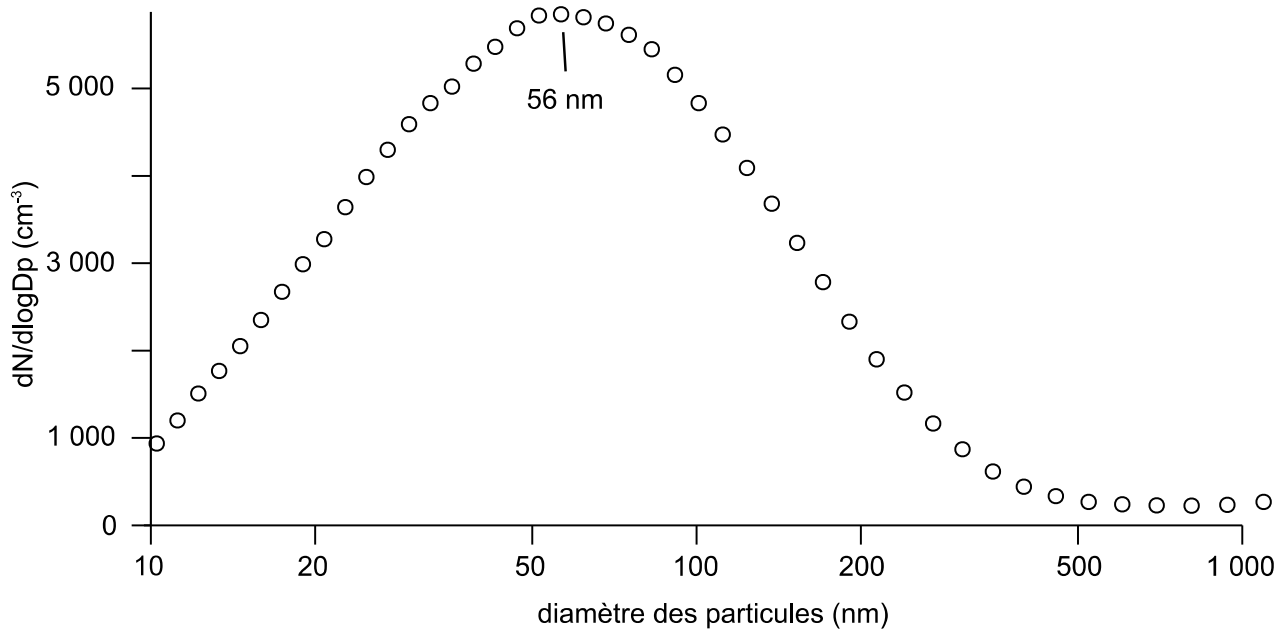


Figure 5. Distribution granulométrique des particules au cours de la période de mesure.

L'axe des abscisses (diamètres) est représenté en échelle logarithmique. L'axe des ordonnées est une mesure du nombre de particules normalisée.

2- Granulométrie des particules

La granulométrie des particules décrit le nombre de particules en fonction de leur taille, indiquée par leur diamètre en considérant les particules comme sphériques. C'est l'un des atouts du système SMPS qui permet de compter le nombre de particules pour chaque classe de taille prédéfinie, ici 45 classes de taille entre 10 nm et 1 100 nm. L'estimation de la taille des particules est particulièrement intéressante d'un point de vue sanitaire car ce sont les particules les plus fines qui pénètrent le plus profondément dans l'appareil respiratoire et donc les plus dangereuses. De plus, la taille des particules est une notion essentielle dans l'étude des aérosols car elle est liée aux sources des particules, à leur âge, ou encore à leur processus de formation.

Au cours de la campagne de mesure, 80,2 % des particules ont montré une taille inférieure à 100 nm (autrement dit PM0,1) ce qui représente un chiffre élevé par rapport à ce qui est généralement observé en milieu rural ou même urbain (Putaud, 2010). La Figure 5 montre la distribution en taille moyenne des particules mesurées au cours de la campagne sur le site de Gonon. Celle-ci présente une forme classique (de type gaussienne) avec un seul mode (maximum). Les modes enregistrés tout au long de la campagne ont varié entre 10 et 240 nm, avec le premier quartile, la médiane et le 3ème quartile situés à 35 nm, 62 nm, et 91 nm, respectivement.

L'évolution de la taille des particules au cours du temps peut également fournir des indications sur la nature des phénomènes mis en jeu. La Figure 6 montre l'évolution du nombre de particules en fonction de leur taille pendant le début de la campagne d'avril-mai 2013, qui présentait les pics les plus intenses en nombre de particules. Cette représentation confirme bien que la grande majorité des particules se situe autour d'un diamètre de 50 nm, que l'on soit en période de pic ou non. Comme cela avait été observé à Fos/Carabins en juin 2011 (Dron et Chamaret, 2013), on assiste à des augmentations brutales et souvent brèves mais répétées. Aussi, aucune période de la journée ne semble privilégiée et aucun épisode photochimique caractéristique n'a pu être identifié. Le site semble donc atteint régulièrement par des masses d'air chargées en particules ultrafines, et les conditions météo n'ont pas été favorables à des épisodes de formation de particules par des processus photochimiques.

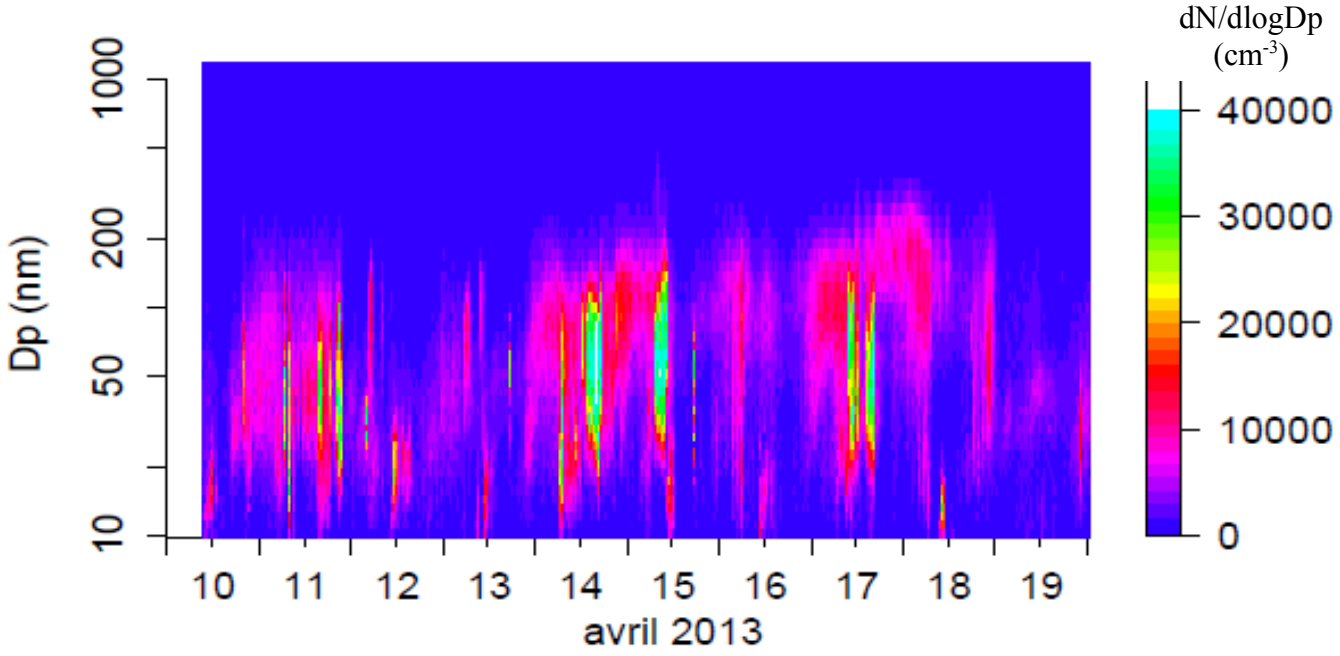


Figure 6. Évolution de la distribution en taille (Dp) des particules PM1 entre le 10 et le 19 avril 2013 (heures TU, ajouter 2h pour l'heure locale).

L'échelle de couleurs représente une mesure normalisée du nombre de particules (dN/dlogDp), et l'axe des ordonnées (diamètres Dp) figure en échelle logarithmique.

3- Données SMPS et mesures de surveillance PM, O3, SO2

a) Données de surveillance

Il est essentiel de comparer les mesures du nombre de particules PM1 avec les paramètres de surveillance de l'AASQA AirPaca sur ses stations proches du site de mesure, afin d'en déduire des informations pour interpréter l'origine des particules ou les phénomènes mis en jeu. Les données de surveillance en masse de PM10 ou de PM2,5 revêtent un intérêt particulier, car on a pu voir qu'elles sont insuffisantes en milieu industriel marqué tel que la zone de Fos-Berre d'un point de vue tant sanitaire que physico-chimique (Dron et Chamaret, 2013). Elles sont cependant des données complémentaires des mesures en nombre de PM1 réalisées par le SMPS.

Il faut noter que le site est relativement éloigné des stations AirPaca, à 5 km de Fos/Carabins et à 10 km de Port-Saint-Louis. Étant donné les nombreuses sources fixes présentes dans les environs par les activités industrielles, il ne sera donc pas possible de comparer directement les données ici, mais uniquement de dégager d'éventuelles tendances communes et d'évaluer l'état général de la qualité de l'air sur la zone.

L'ensemble des données quart-horaires relevées sur la période sont résumées dans le Tableau 2, pour les stations de Fos/Carabins et Port-Saint-Louis. Elles confirment que la période a montré des conditions météorologiques favorables à la dispersion des polluants atmosphériques, notamment sur Port-Saint-Louis avec pratiquement pas de pics de SO_2, et des moyennes à seulement 19 $\mu g.m^{-3}$ et 9 $\mu g.m^{-3}$ en PM10 et PM2,5, respectivement. Ces valeurs paraissent faibles à Port-Saint-Louis, mais il faut rappeler que le mode de mesure et d'interprétation des données a été récemment modifié et reste en cours de validation suite à des questionnements sur la nature de pics extrêmement intenses en PM10 (Airfobep, 2010). La tendance est toutefois similaire sur le site de Fos/Carabins, avec une moyenne en PM10 de 28 $\mu g.m^{-3}$ relativement faible par rapport aux moyennes annuelles habituelles autour de 35 $\mu g.m^{-3}$. On relève aussi seulement 25 % des mesures de SO_2 au-dessus de 4 $\mu g.m^{-3}$ avec tout de même des pics atteignant 100 $\mu g.m^{-3}$.

Tableau 2. Résumé des mesures de surveillance aux stations AirPaca de Fos/Carabins et Port-Saint-Louis (données quart-horaires).

Fos/Carabins						
	min.	1er quartile	médiane	moyenne	3ème quartile	max.
Ozone	0	42	65	63	86	129
SO2	0	2	3	5	4	102
PM10	6	20	27	28	34	72
Port-Saint-Louis-du-Rhône						
	min.	1er quartile	médiane	moyenne	3ème quartile	max.
SO2	0	0	1	1	2	34
PM10	0	10	16	19	25	156
PM2,5	0	5	8	9	13	43

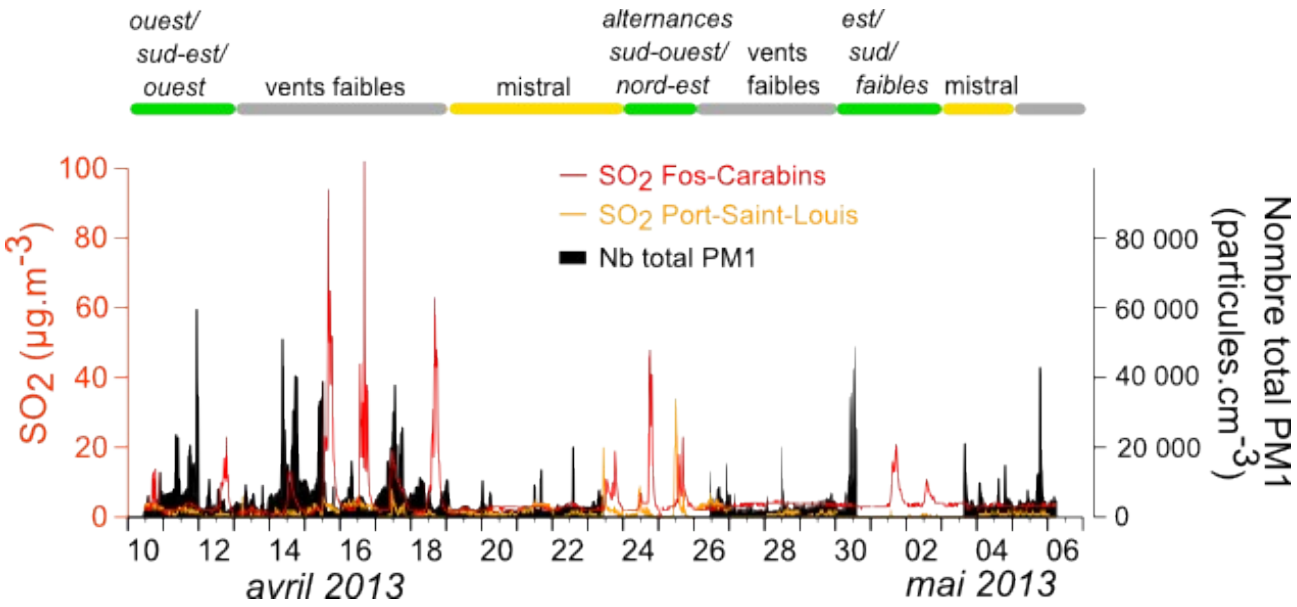


Figure 7. Nombre de PM1, et mesures de SO_2 à Fos/Carabins et Port-Saint-Louis pendant la campagne d'avril-mai 2013 (heures TU).

Le nombre de PM1 a été agrégé sur un pas de temps quart-horaire avec l'aide de la fonction timeAverage basée sur un calcul de moyennes (package openair du logiciel R, Carslaw, 2012). Données SO_2 : AirPaca.

b) Comparaison avec le nombre de PM1

L'évolution des niveaux de SO_2 au cours de la période d'étude confirme que la première semaine a été marquée par des épisodes de pollution importants avec des pics dépassant les 10 µg.m^{-3} presque tous les jours à Fos/Carabins. Il est intéressant de noter que la période correspond avec celle relevée sur le nombre de PM1, mais que les pics ne sont en général pas observés simultanément (Figure 7). Cette observation corrobore l'influence forte des émissions industrielles proches. Les masses d'air qui présentent des teneurs élevées en SO_2 et en particules peuvent atteindre Fos/Carabins sans toucher au même moment d'autres sites situées à seulement quelques km. Le Mas de Gonon est à son tour touché quelques heures plus tard ou le lendemain, suivant les conditions de vent. Il est également possible que les deux sites (Mas de Gonon et Fos/Carabins) soient soumis à des émissions d'origines différentes.

On peut noter aussi la corrélation entre les faibles niveaux de SO_2 et de nombre de PM1 lors des deux périodes de mistral et les jours de fortes pluies (26-29 avril), même si quelques pics en nombre de particules apparaissent tout de même par mistral début mai. Enfin on peut malheureusement constater que deux périodes montrant des pics de SO_2 correspondent à des jours d'arrêt du SMPS suite à des coupures de courant.

L'évolution temporelle des mesures de surveillance des particules à Fos et Port-Saint-Louis est représentée sur la Figure 8. Les mesures de PM10 dans les deux stations suivent des variations remarquablement proches, indiquant à priori une forte influence du fond régional. À Port-Saint-Louis, les niveaux de PM2,5 suivent également la même évolution, avec toutefois très peu de pics comparé aux PM10. D'autre part, ces évolutions paraissent relativement monotones, avec seulement 3 périodes de 24 à 48 h de baisse importante, les 13, 20-21, et 28-29 avril. Les deux dernières correspondent à des périodes déjà identifiées comme peu polluées, par mistral et par fortes pluies, respectivement, mais avec une durée nettement plus brève que celle observée sur le nombre de PM1. Autrement, les mesures de PM10 varient autour de 20 à 30 µg.m^{-3}, et semblent plutôt suivre une alternance journalière avec des niveaux plus élevés en journée.

Hormis quelques jours où les valeurs s'accordent sur des niveaux bas, on observe donc une forte contradiction entre les deux types de mesures. Même si l'éloignement entre les stations AirPaca et le dispositif SMOCCA ne permet pas de comparer directement ces données, on observe très clairement une plus grande corrélation entre mesures de PM10 à Fos et Port-Saint-Louis-du-Rhône pourtant également éloignés de presque 15 km. Comme lors de l'étude CAMESCOP (Dron et Chamaret, 2013), les deux types de mesures apparaissent très différents. Ils sont probablement très complémentaires, toutefois la mesure du nombre de particules semble plus appropriée à la périphérie de la zone industrialo-portuaire de Fos car elle permet de mieux suivre l'impact des émissions de particules ultra-fines d'origine industrielle.

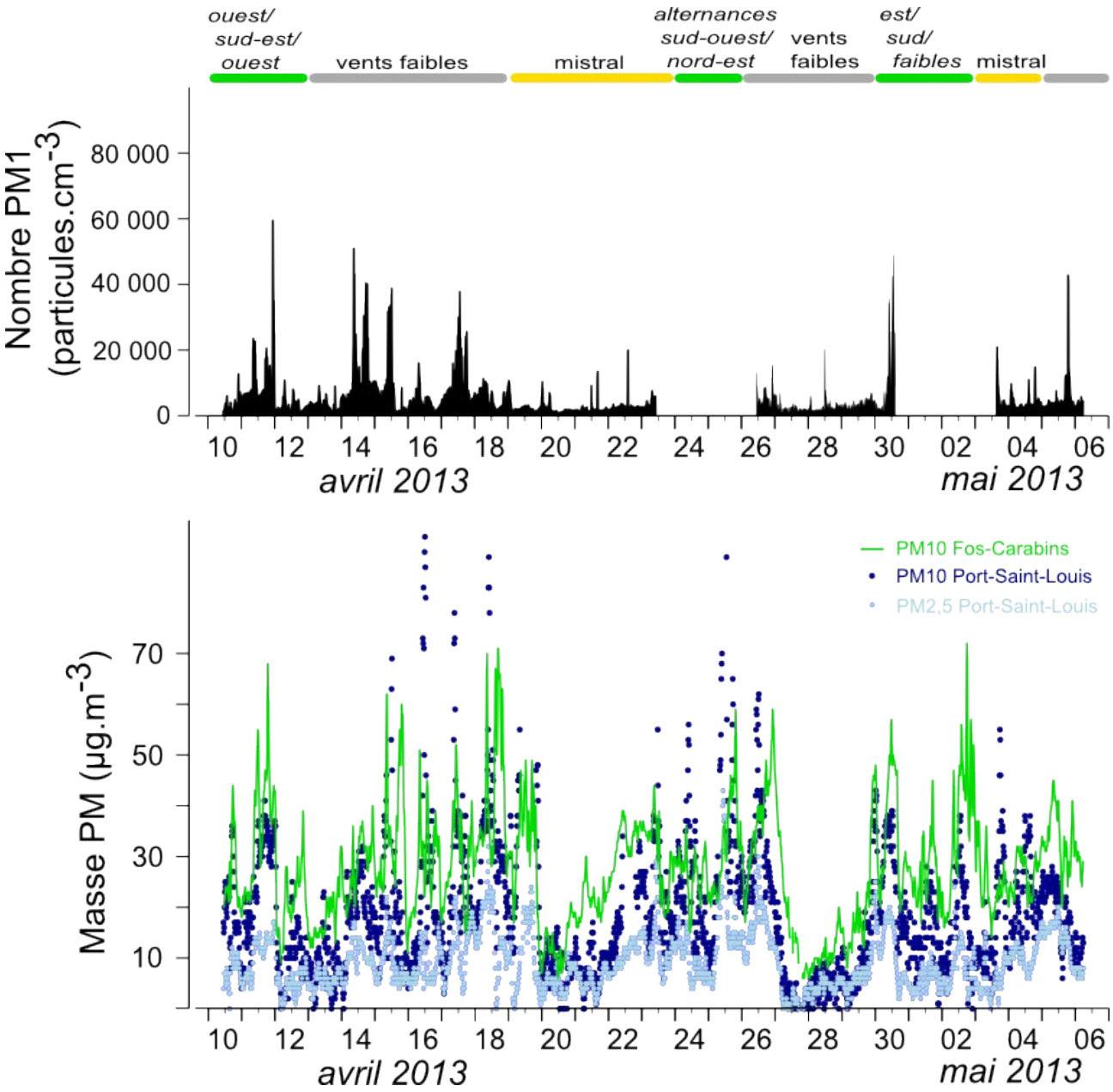


Figure 8. Évolution des niveaux en masse de particules à Fos/Carabins (PM10) et Port-Saint-Louis (PM10 et PM2,5), et en nombre de PM1 durant la campagne au Mas de Gonon (heures TU).

Le nombre de PM1 a été agrégé sur un pas de temps quart-horaire avec l'aide de la fonction timeAverage basée sur un calcul de moyennes (package openair du logiciel R, Carslaw, 2012). Données PM : AirPaca.

4- Problèmes rencontrés

Les mesures réalisées ici sont un préalable à l'utilisation du SMPS dans le cadre de l'étude ESTAMPE (étude des sources d'émission de particules) et plus particulièrement ensuite dans le programme SULTTAN (Suivi long-terme de la taille et du nombre de particules) auquel il est destiné. Par conséquent le principal objectif des travaux présentés ici est de prendre en main de l'appareillage, connaître les conditions de son utilisation, et identifier les éventuels problèmes pouvant être rencontrés.

- *Neutraliseur*. Le neutraliseur livré par le fournisseur était défaillant, aussi a-t-il été remplacé et les résultats présentés plus haut sont bien entendu issus de mesures réalisées avec un appareil fonctionnel. Pendant l'attente de cette pièce, des mesures réalisées sans neutraliseur ont montré une perte totale de signal pour les particules de diamètre inférieur à 100 nm. Au-delà, le signal semble normal avec en général plusieurs centaines de particules.cm^{-3} entre 100 et 1 100 nm de diamètre, mais cela n'a pu être vérifié.

  Le neutraliseur DBD s'est également montré sensible à l'humidité de l'air (panne en juillet suivant), aussi est-il envisagé d'installé un système de séchage de l'air en amont du système de mesure. Ce type de neutraliseur possède l'avantage de s'affranchir des contraintes d'une source radioactive mais reste encore aujourd'hui en développement chez le constructeur. On peut donc espérer des améliorations sur sa résistance et dans l'accès au nettoyage de certaines pièces par l'utilisateur notamment.

- *Impacteur*. L'impacteur est situé en amont du neutraliseur, et permet de sélectionner uniquement les particules de taille inférieure à 1 100 nm environ. Celui-ci n'a pas été vérifié pendant toute la durée des mesures, soit 1 mois environ. À la suite de cette campagne, il a montré un encrassement important pouvant avoir une influence sur les mesures. L'absence de surcharge de la pompe indique que le débit est toutefois resté constant et n'a pas été perturbé par un colmatage. Toutefois, il paraît recommandé de nettoyer la surface de l'impacteur une fois par semaine avec du butanol (ou de l'acétone par exemple), notamment lorsque l'air a été chargé en particules.

- *Coupures de courant*. Deux coupures sont intervenues entraînant l'arrêt de l'appareil pendant deux périodes de 3 jours au total. Quel que soit le site d'étude, les coupures de courant sont des événements relativement fréquents. Elles peuvent entraîner des dommages au niveau de l'électronique de l'appareil, notamment s'ils sont liés à des phénomènes orageux. Il semble donc recommandé d'équiper le SMPS d'un onduleur afin de le protéger des surtensions et d'éviter des pertes de données. On peut noter que l'ensemble du dispositif SMOCCA est également soumis à cette problématique, en particulier le préleveur sur filtre auquel est connecté le capteur météo. Au cours des mesures au Mas de Gonon, cela a conduit à l'absence de données de vent pendant plusieurs jours et à l'utilisation préférentielle des données AirPaca enregistrées à la station Crau/Retour des Aires distante de plusieurs kilomètres.

- *Nature du tuyau de prélèvement*. Après divers échanges avec des spécialistes des mesures atmosphériques (LCE-IRA, Université Aix-Marseille), il est apparu particulièrement indiqué d'utiliser des matériaux antistatiques et conducteurs pour le prélèvement des particules. En effet, cela évite que les particules chargées se collent aux parois sous l'effet de l'électricité statique qui entraînerait une sous-estimation des mesures. Dans le cas présent, la nature exacte du tuyau de prélèvement n'est pas connue (probablement polypropylène, ce qui est en accord avec les indications). Aussi, pour conforter la fiabilité des mesures à venir, l'assurance d'une nature antistatique est préférable.

CONCLUSIONS

Une étude préliminaire afin de mieux appréhender les conditions d'utilisation d'un appareillage pour la mesure du nombre et de la taille des particules (SMPS) à proximité de la zone industrialo-portuaire de Fos a été réalisée du 10 avril au 6 mai 2013 sur le site du Mas de Gonon (Fos-sur-Mer). Le site est particulièrement isolé de toute influence urbaine, et la période d'étude s'est révélée très perturbée du point de vue météorologique.

L'étude des résultats a bien montré que les vents de sud avaient nettement favorisé l'apparition d'épisodes de pollutions en particules, qui ont dépassé plusieurs fois 40 000 particules.cm^{-3}. Cette orientation indique assez clairement l'implication des émissions industrielles dans les PM1 mesurées. La direction est-nord-est et les périodes de vent nul ont également présenté des niveaux de nombre de PM1 relativement élevés (10 000 particules.cm^{-3} en moyenne). Au contraire, les conditions de mistral ont présenté des niveaux très faibles, notamment lorsqu'il est fort.

Il est important de noter également que la valeur médiane en nombre de PM1 se situe à seulement 3 300 particules.cm^{-3}, typique d'un site rural. On rencontre donc des pics intenses et brusques en nombre de particules par l'arrivée de masses d'air polluées sur le site de mesure, qui viennent perturber des conditions rurales classiques. Ces pics ont une incidence importante sur la distribution en taille de ces particules, dont 80 % ont un diamètre inférieur à 0,1 µm.

La comparaison entre le nombre de PM1, et les mesures de SO_2 et de masse de PM10 conduit à des conclusions similaires à celles observées lors de la campagne CAMESCOP réalisée en 2011. On observe une relative corrélation avec les mesures de SO_2, mais beaucoup moins avec celles de PM10. Cela traduit à nouveau la complémentarité des mesures en nombre et en masse des particules, et montre la nécessité de mesurer le nombre et la taille des particules à proximité d'une zone industrielle où ces paramètres sont si pertinents mais encore mal connus. D'autant plus que l'impact sanitaire y est intimement lié, les particules ultra-fines étant les plus dangereuses.

D'un point de vue technique, le matériel a parfaitement rempli son rôle. On a toutefois pu montrer l'importance de le protéger d'un point de vue électrique, autant pour réduire la perte de données que pour éviter les surtensions. De même le prélèvement d'un air séché au préalable devrait permettre de prolonger la durée de vie de certains éléments essentiels. Il peut donc être utilisé dans le cadre de l'étude des sources d'émissions (ESTAMPE) avant de trouver sa place à long terme pour plusieurs années de suivi continu à proximité de la ZIP de Fos (SULTTAN).

RÉFÉRENCES

Airfobep. (2010). Mesures complémentaires à Port-Saint-Louis-du-Rhône en 2009 et 2010. *Rapport de campagne de mesures, Airfobep 10 p.*

Carslaw D. et Ropkins K. (2012). openair: Open-source tools for the analysis of air pollution data. *R package version 0.7-0*.

Dron J., Chamaret P. (2013). Campagne de mesures atmosphériques des composés organiques volatils et des particules - CAMESCOP. *Rapport d'Étude, Institut Écocitoyen pour la Connaissance des Pollutions, 70 p.*

Jaffrezo J.-L. et Marchand N. (2010). FORMES : Fraction organique des aérosols, méthodologie d'estimation des sources. *Rapport Scientifique, programme PRIMEQUAL. 99 p*.
http://gsite.univ-provence.fr/gsite/document.php?pagendx=10529&project=lcp-ira

Météo-France. (2013). Relevés de la station Météo-France d'Istres pour les mois d'avril et mai 2013. *Site Météo-France consulté en juin 2013.*
http://climat.meteofrance.com/chgt_climat2/climat_france?89461.path=climatstation%252F13047001

Putaud J.-P., Van Dingenen R., Alastuey A., Bauer H., Birmili W., Cyrys J., Flentje H., Fuzzi S., Gehrig R., Hansson H., Harrison R., Herrmann H., Hitzenberger R., Hüglin C., Jones A., Kasper-Giebl A., Kiss G., Kousa A., Kuhlbusch T., Löschau G., Maenhaut W., Molnar A., Moreno T., Pekkanen J., Perrino C., Pitz M., Puxbaum H., Querol X., Rodriguez S., Salma I., Schwarz J., Smolik J., Schneider J., Spindler G., ten Brink H., Tursic J., Viana M., Wiedensohler A., and Raes F. (2010). A European aerosol phenomenology – 3: Physical and chemical characteristics of particulate matter from 60 rural, urban, and kerbside sites across Europe. *Atmospheric Environment 44, 1308-1320*.

R Development Core Team (2012). R: A language and environment for statistical computing. *R Foundation for Statistical Computing, Vienna, Austria. http://www.R-project.org/.*

INDEX DES FIGURES

Figure 1. Localisation du site de mesures. 3

Figure 2. Schéma du principe de fonctionnement d'un SMPS. 4

Figure 3. Évolution du nombre de PM1 au cours de la campagne, régimes de vent déduits des données AirPaca, et hauteurs de précipitations et températures maximales enregistrées quotidiennement par la station Météo-France d'Istres. 8

Figure 4. Fréquence des observations selon les directions de provenance et de vitesse du vent enregistrées par la station AirPaca de Crau, et nombre de PM1 mesuré moyen en fonction de la direction de provenance du vent et sa vitesse. 9

Figure 5. Distribution granulométrique des particules au cours de la période de mesure. 10

Figure 6. Évolution de la distribution en taille des particules PM1 entre le 10 et le 19 avril 2013. 11

Figure 7. Nombre de PM1, et mesures de SO2 à Fos/Carabins et Port-Saint-Louis pendant la campagne d'avril-mai 2013. 13

Figure 8. Évolution des niveaux en masse de particules à Fos/Carabins et Port-Saint-Louis , et en nombre de PM1 durant la campagne au Mas de Gonon. 14

INDEX DES TABLEAUX

Tableau 1. Résultats des mesures SPMS du nombre total de PM1 au cours de la campagne du 10 avril au 6 mai 2013 conduite au Mas de Gonon. 7

Tableau 2. Résumé des mesures de surveillance aux stations AirPaca de Fos/Carabins et Port-Saint-Louis. 12