Qualité de l'air

PROVENCE - ALPES - CÔTE D'AZUR

PM Sources

Pollution par les particules en suspension
Recherche des sources à l'aide de signatures chimiques et granulométriques

Application à la région industrielle de l'étang de Berre

www.airpaca.org

AirPACA
QUALITÉ DE L'AIR

Résumé :

PM Sources : Pollution par les particules en suspension
Recherche des sources à l'aide de signatures chimiques et granulométriques
Application à la région industrielle de l'Etang de Berre

Le projet PM **Sources** (PMS) s'inscrit dans les actions d'Air PACA menées pour une meilleure connaissance des sources de la pollution particulaire. Il participe à l''aide à la décision pour la planification des actions de réduction efficace de cette pollution.
Les résultats du projet permettent d'identifier les sources de pollution particulaire présentes dans la région industrielle de l'étang de Berre au travers de leurs signatures chimiques et granulométriques. Le projet contribue à :

- **la connaissance des sources de la pollution particulaire, notamment industrielles,**
- **la définition d'une méthodologie de recherche des sources de la pollution particulaire (PM).**

1- Les travaux sur la granulométrie montrent que :
- il existe des différences entre les sources industrielles considérées,
- les mesures granulométriques des particules fines sont un outil pertinent et utile dans la recherche de sources PM.

2- La spéciation chimique des particules et la modélisation CMB permettent de préciser la contribution des différentes sources de pollution à la concentration en PM2,5. Il apparait notamment que :
- La source de combustion de biomasse est, en moyenne annuelle la source principale.
- Les sources industrielles nécessitent d'autres investigations pour mettre en évidence leurs contributions.

Partenaires

- Laboratoire Chimie Environnement (LCE)
- Institut Eco-Citoyen (IEC)

Auteurs du document

- Air PACA
- LCE

Contact

BouAlem MESBAH

boualem.mesbah@airpaca.org

Parution

Octobre 2015

Sommaire

1 Introduction / Contexte 5
2 Éléments bibliographiques et réglementaires 6
2.1 Pollution particulaire 6
2.2 Éléments bibliographiques 7
2.2.1 Terminologie 7
2.2.2 Sources des particules (PM) 7
2.2.3 Taille des particules (PM) 8
2.2.4 Composition des particules (PM) 10
2.2.5 Impact des particules (PM) 11
2.3 Réglementation 12
2.3.1 Définitions 12
2.3.2 Principaux textes 13
2.3.3 Normes françaises et européennes 13
2.4 Bilan de la pollution PM dans la zone industrielle de l'étang de Berre 14
2.4.1 Emissions des particules (PM) 14
2.4.2 Niveaux de pollution en particules (PM) 16
3 Métrologie 17
3.1 Prélèvement pour la spéciation chimique 17
3.1.1 Equipement de prélèvement 17
3.1.2 Filtres de prélèvement 17
3.2 Mesure de la granulométrie 18
3.2.1 Equipement de mesure 18
3.2.2 Classes granulométriques 18
3.3 Campagnes de prélèvements et de mesures 19
3.3.1 Zone de l'étude 19
3.3.2 Stratégie de prélèvements 19
3.3.3 Réseau des sites de prélèvements 19
3.3.4 Planification 21
3.4 Références normatives et bibliographiques pour la partie métrologie 21
4 Résultats 22
4.1 Signatures granulométriques 22
4.1.1 Granulométrie de l'aérosol dans la zone d'investigation 22
4.1.2 Granulométrie de l'aérosol en aval des sources 23
4.1.2.1 Profils granulométriques 23
4.1.2.2 Signatures granulométriques des sources 25
4.1.3 Recherche de sources 26
4.1.4 Références 28
4.2 Signatures chimique 29
4.2.1 Réalisation des prélèvements 29
4.2.1.1 Prélèvements 29
4.2.1.2 Choix des filtres 29
4.2.2 Analyses chimiques 29
4.2.2.1 Chimie et enrichissement au cours des épisodes de pollution 29
4.2.2.2 Traitements Chemical Mass Balance (CMB) 30
5 Conclusions 34

Figure 1 : différents termes pour désigner les particules en suspension 7
Figure 2 : mécanismes de production des particules en suspension 7
Figure 3 : exemples de sources, naturelles et anthropiques des particules en suspension 8
Figure 4 : étendue des tailles des particules en suspension 9
Figure 5 : distribution granulométrique d'un aérosol atmosphérique 10
Figure 6 : exemples (composition et forme) de particules en suspension : carbone élémentaire, sel marin… 11
Figure 7 : pénétration des particules en suspension dans l'organisme. 11
Figure 8 : émissions des PM10 dans la zone de l'étang de Berre au cours de l'année 2007 14
Figure 9 : émissions des PM2.5 dans la zone de l'étang de Berre au cours de l'année 2007 14
Figure 10 : émissions des particules PM10 dans la zone de l'étang de Berre au cours de l'année 2012 15
Figure 11 : émissions des particules PM2.5 dans la zone de l'étang de Berre au cours de l'année 2012 15
Figure 12 : moyennes annuelles en particules en suspension PM10 en 2014 16
Figure 13 : nombre de jours avec une moyenne supérieure à 50 µg/m^3 en 2014 16
Figure 14 : moyennes annuelles en particules en suspension PM2.5 en 2014 16
Figure 15 : équipement à haut débit pour les prélèvements dans l'air ambiant 17
Figure 16 : Granulomètre (DMPS) TSI 3031 18
Figure 17 : classes granulométriques du TSI 3031 18
Figure 18 : zone de l'étude 19
Figure 19 : carte des sites de prélèvement sur filtre en milieu récepteur 20
Figure 20 : carte des sites pour la mesure de la granulométrie 20
Figure 21 : granulométrie « générale » des particules en suspension dans la zone d'investigation 22
Figure 22 : comparaison entre la granulométrie obtenue dans le cadre de l'étude et celles présentes dans la littérature 23
Figure 23: profils granulométriques des 4 sources investiguées 24
Figure 24: signatures granulométriques des 4 sources investiguées 25
Figure 25: roses de pollution PM 26
Figure 26: Cartes des Roses de pollution : concentrations numériques des particules ultrafines. 27
Figure 27 : concentration en OC, EC, SO42-, NO3-, NH4+ et autres ions pour les filtres collectés lors de jours sans dépassement (PM10 < 50µg.m3) en PM10 (gauche) et avec dépassement (PM10 > 50 µg/m3) en PM10 (droite) pour le site de Port-Saint-Louis-du-Rhône 29
Figure 28 : contribution des sources modélisées à la concentration d'OC en % pour le site de Fos-sur-Mer - SOA : sources secondaires 31
Figure 29 : contribution des sources modélisées à la concentration en PM2.5 en % pour le site de Fos-sur-Mer, ... 32
Figure 30 : contribution des sources primaires modélisées à la concentration en PM2.5 en % pour les 3 sites : 33

1 Introduction / Contexte

Démarche et résultats attendus

Le projet PM Sources (PMS) s'inscrit dans les actions d'Air PACA menées pour une meilleure connaissance des sources de la pollution particulaire. Il participe à l'aide à la décision pour la planification des actions de réduction efficace de cette pollution.
Les résultats du projet permettent d'identifier les sources de pollution particulaire au travers de leurs signatures chimiques et granulométriques. C'est une contribution :

- à la connaissance des sources de la pollution particulaire, notamment industrielles,
- à la définition d'une méthodologie de recherche des sources de la pollution particulaire.

Investigations

Le projet englobe 2 volets :

- Métrologie :

Définir et mettre en œuvre une métrologie pour caractériser la pollution particulaire en mesurant les paramètres suivants :

  - la granulométrie,
  - la spéciation chimique.

- Traitement des données :

Définir une méthodologie de constitution des signatures de la pollution particulaire à partir des paramètres granulométriques et chimiques.

Zone d'investigation

Les investigations seront réalisées dans plusieurs sites de la zone industrielle de l'étang de Berre :

- Des sites dits « récepteurs » : Trois sites sont choisis pour rendre compte de l'influence des différentes sources de pollution : industries et transports :
  - Port-Saint-Louis-du-Rhône,
  - Rognac les Brets,
  - Fos-sur-Mer.

- Des sites en aval de sources industrielles particulières dans la zone industrielle du golfe de Fos :
  - plateforme industrielle ARCELOR MITTAL,
  - port minéralier.

2 Éléments bibliographiques et réglementaires

2.1 *Pollution particulaire*

La matière particulaire (PM) ou aérosol est constituée de particules solides ou liquides en suspension dans l'air. De la physico-chimie complexe de ces aérosols résulte leurs effets sur l'environnement : santé, écosystème et patrimoine bâti.

L'impact de l'aérosol atmosphérique sur la santé est bien reconnu. Le lien entre mortalité et concentrations de particules a été souvent établi. L'étude CAFE[1] montre, par exemple, que la pollution par les particules est responsable, en Europe, d'une réduction moyenne de l'espérance de vie d'environ neuf mois. Ce qui correspond à l'équivalent de **350 000 décès prématurés par an**.

La concentration de la pollution par les particules est réglementée dans l'air ambiant. Cette réglementation concerne, notamment la concentration massique des particules de diamètre inférieur à 10 µm (PM10). Des limites sont fixées pour la moyenne annuelle (40 $\mu g.m^{-3}$) et pour la moyenne journalière (50 $\mu g.m^{-3}$ à ne pas dépasser plus de 35 jours par an).
Dans la région industrielle de l'étang de Berre, ces limites fixées pour les concentrations massiques sont fréquemment dépassées. C'est aussi le cas dans d'autres zones de la région PACA et en France. Ces dépassements sont d'ailleurs à l'origine de plusieurs contentieux européens vis-à-vis de la France en tant qu'Etat membre ne respectant pas la réglementation européenne relative à la qualité de l'air ambiant.

Partant de ces constats, la France travaille à la réduction des émissions de particules dans l'air. La finalité étant bien entendue : la diminution de l'exposition des populations à cette pollution nocive pour la santé.
Divers actions sont déjà entreprises ou prévues, notamment dans le cadre du « Plan Particules »[2] initié en 2010 dans le sillage du Grenelle de l'environnement. L'efficacité et la pertinence des actions de réduction de la pollution par les particules passent par une meilleure connaissance des sources émettrices.

C'est dans cette logique que s'inscrit le travail du projet PM Sources (PMS). Les moyens et méthodes qui y sont déployés ont pour objectif l'***évaluation de la contribution des différentes sources émettrices à la pollution particulaire présente dans la région industrielle de l'étang de Berre.***

[1] CAFE (clean air for Europe program). Thematic strategy on air pollution, *CAFE Report*, 2005
[2] Plan particules, 2010 : www.developpement-durable.gouv.fr

2.2 *Éléments bibliographiques*

2.2.1 Terminologie

Dans la vie courante comme dans les milieux professionnels, un vocabulaire très riche est utilisé pour désigner les particules en suspension : poussières, fumées, et d'autres termes repris dans la Figure 1.
Dans la définition scientifique, le substantif « **aérosol** » c'est-à-dire particules solides ou liquides en suspension dans un gaz est employé.

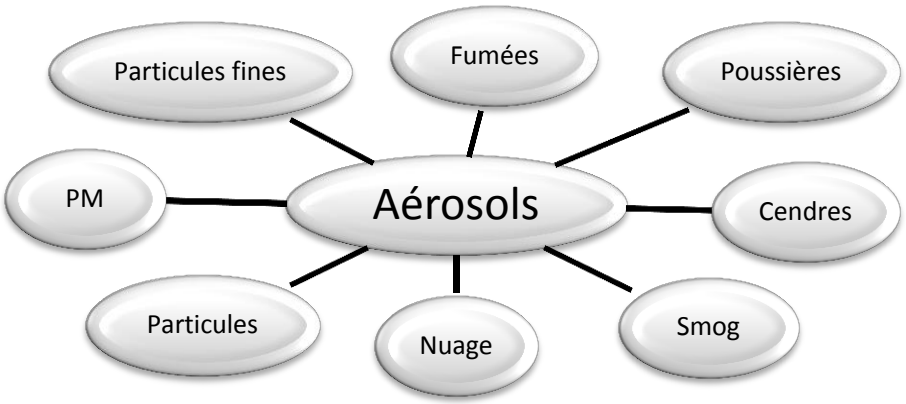


Figure 1 : différents termes pour désigner les particules en suspension

2.2.2 Sources des particules (PM)

On distingue :

- les particules primaires : produites et émises directement dans l'atmosphère,
- les particules secondaires : issues de transformations physicochimiques de polluants gazeux.

Dans les deux cas, l'origine des particules peut être naturelle ou anthropique liée aux activités humaines.
La Figure 2 illustre les principaux modes de production des particules.

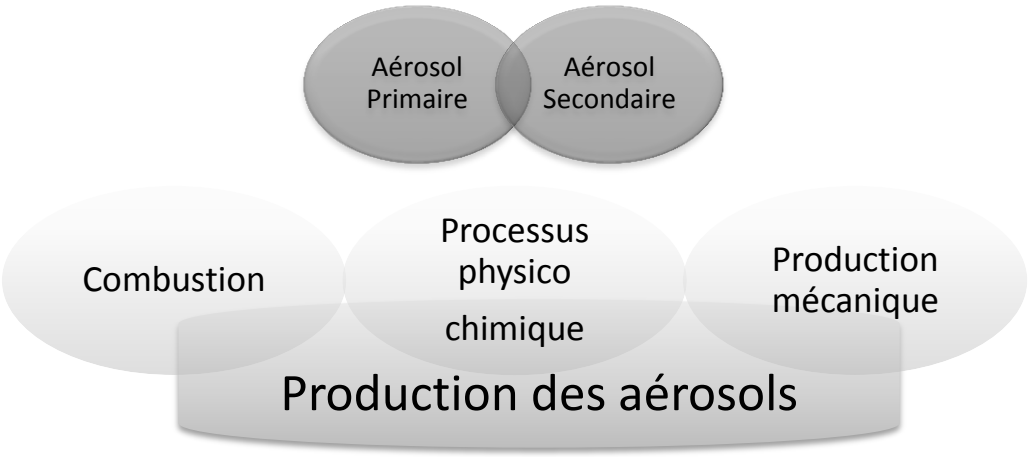


Figure 2 : mécanismes de production des particules en suspension

Pour les particules primaires, les sources anthropiques sont très variées et concernent aussi bien les activités industrielles que le trafic routier et l'agriculture.

Pour les particules secondaires, on distingue :

- **les particules inorganiques** : principalement issues de la transformation de polluants gazeux : dioxyde d'azote (NO_2), dioxyde de soufre (SO_2) et ammoniac (NH_3). Ainsi, parmi les particules secondaires inorganiques dans l'atmosphère, sont retrouvées essentiellement les nitrates et les sulfates d'ammonium.

- **les particules organiques** : particules sont issues de la transformation des composés organiques volatils (COV) au cours de réactions photochimiques complexes.

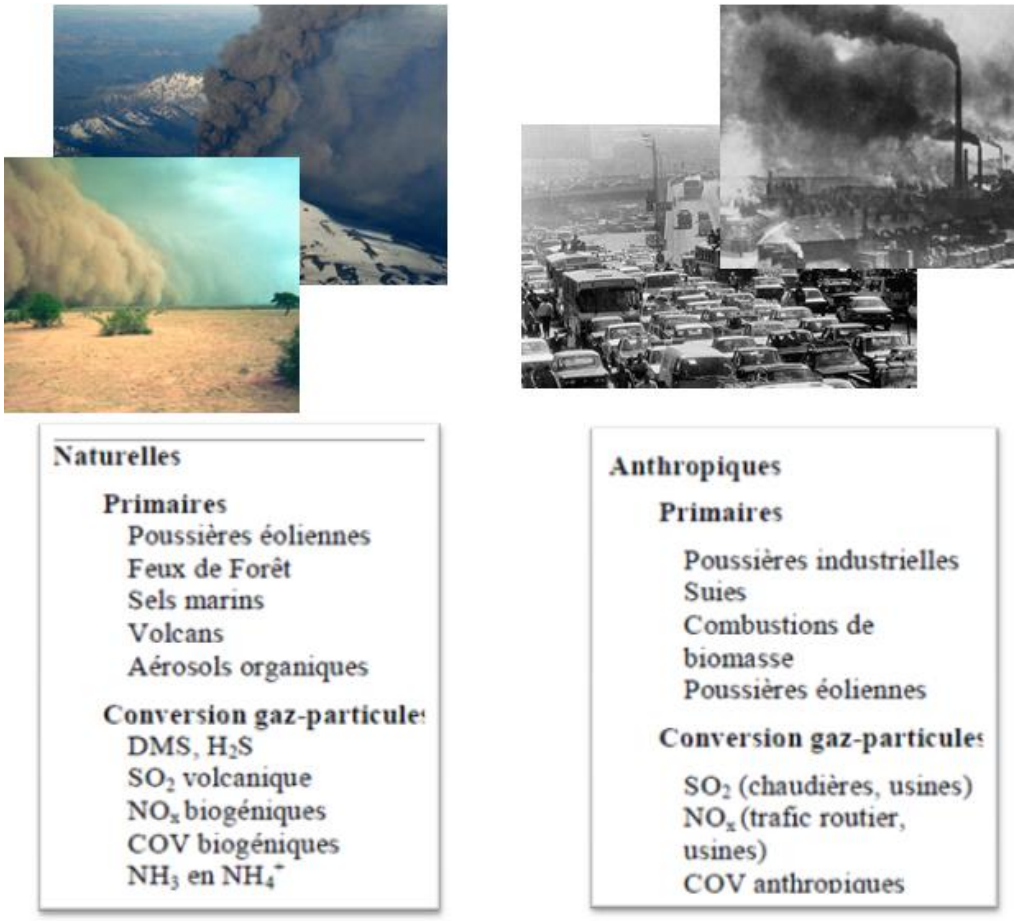


Figure 3 : exemples de sources, naturelles et anthropiques des particules en suspension

2.2.3 Taille des particules (PM)

Etendue :

La taille des particules en suspension s'étend sur plusieurs ordres de grandeur. Cette étendue est illustrée dans la Figure 4. Cette taille joue un rôle important dans leur physicochimie et donc dans leur impact sur l'environnement et la santé.

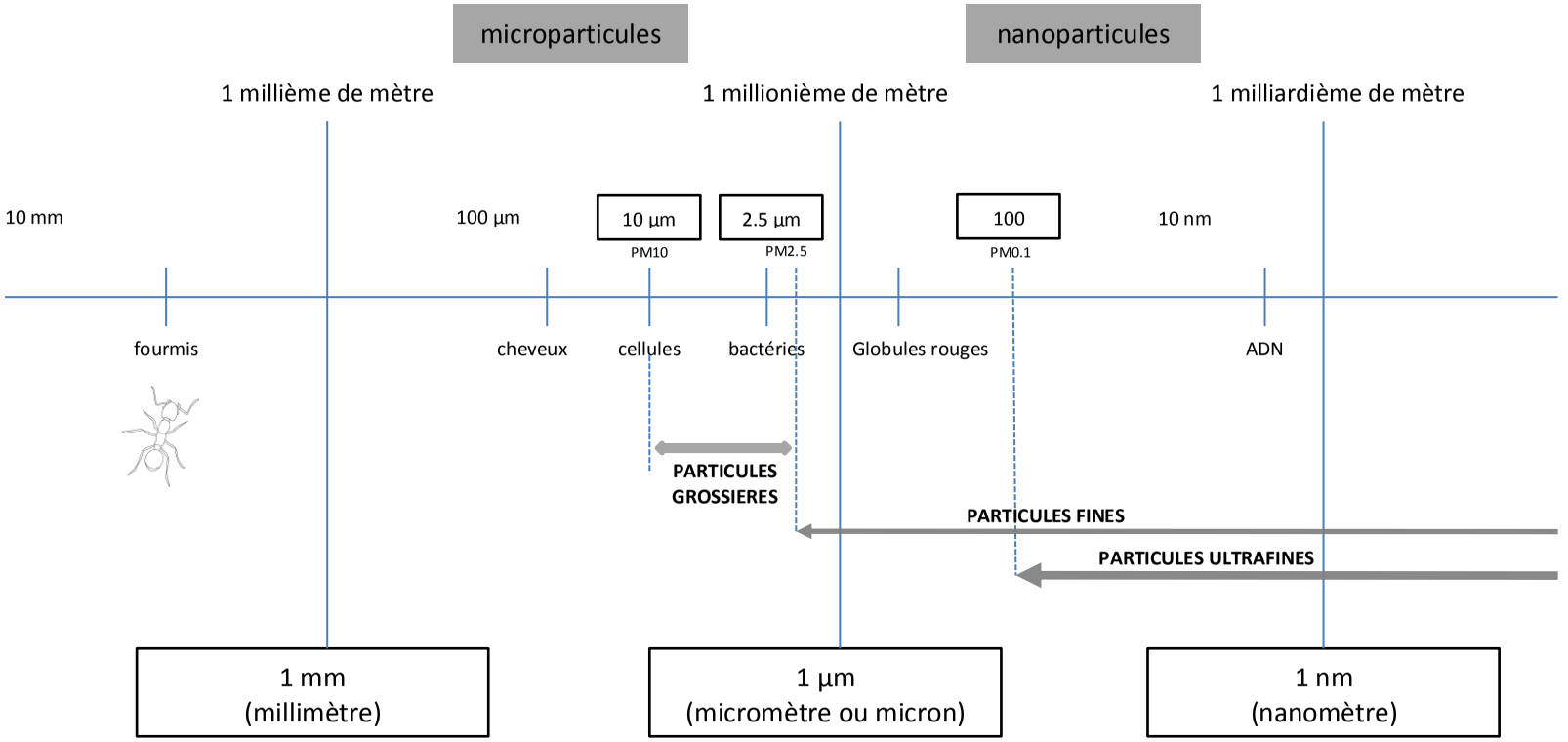


Figure 4 : étendue des tailles des particules en suspension

Dans les études relatives à l'air ambiant, les particules en suspension généralement prises en compte sont les PM10 et les PM2.5 :

- **PM10** : Particules de diamètre inférieur à 10 µm,
- **PM2.5** : Particules fines, de diamètre inférieur à 2,5 µm,
- **Particules grossières** : particules dont le diamètre moyen est compris entre 2.5 µm et 10 µm.

Granulométrie :

La granulométrie est la distribution statistique dans un échantillon de particules en fonction de leurs diamètres.. ***Elle est exprimée en nombre de particules en fonction du diamètre***.

Un exemple de granulométrie d'un aérosol atmosphérique est donné dans la Figure 5.

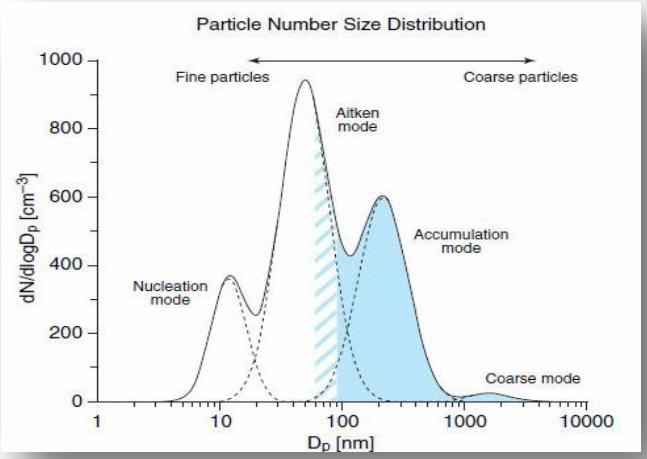


Figure 5 : distribution granulométrique d'un aérosol atmosphérique
Nombre de particules en fonction du diamètre (en nanomètre)

2.2.4 Composition des particules (PM)

A l'image de la diversité des sources, la composition chimique des particules en suspension est très variable et se distingue de la manière suivante :

- **la matière carbonée :**

La matière carbonée inclut le carbone élémentaire et le carbone organique :

- Le Carbone Elémentaire (EC) ou carbone suie désigne une matière qui peut s'apparenter à du graphite pur. Ce carbone est essentiellement émis par des processus de combustion.

- Le Carbone Organique (OC) est la matière organique contenue dans les particules en suspension. Il peut être d'origine anthropique (émissions directes par les combustions, oxydation dans l'atmosphère de composés organiques volatils émis par l'activité humaine…) ou naturelle (remise en suspension de débris végétaux, oxydation dans l'atmosphère de composés organiques volatils émis par la végétation…).

- **les espèces ioniques :**

On y distingue les sels marins des autres espèces ioniques. L'abréviation « nss » (non-sea-salt) est utilisée pour faire cette distinction. Les espèces ioniques non marines peuvent être d'origine :

- primaire, comme par exemple le K^+, traceur de la combustion de la biomasse,
- secondaires, comme le cas des nss SO_4^{2-}, NH_4^+ et NO_3^-, issus de la transformation du dioxyde de soufre, de l'ammoniac et du dioxyde d'azote, présents dans l'atmosphère sous forme de nitrates ou de sulfates.

- **les poussières minérales et sels marins :**

La matière minérale peut être d'origine naturelle, comme par exemple les poussières sahariennes ou d'origine anthropique liée à l'activité humaine. La matière minérale provient de l'érosion ou de l'exploitation des sols. Elle contient principalement des éléments comme l'aluminium, le silicium, le fer, le calcium…

Les sels marins contiennent des espèces ioniques dont les principaux représentants sont le Na^+ et le Cl^-.

En plus de ces constituants principaux, d'autres éléments chimiques peuvent se retrouver dans la composition des particules en suspension : eau, métaux…

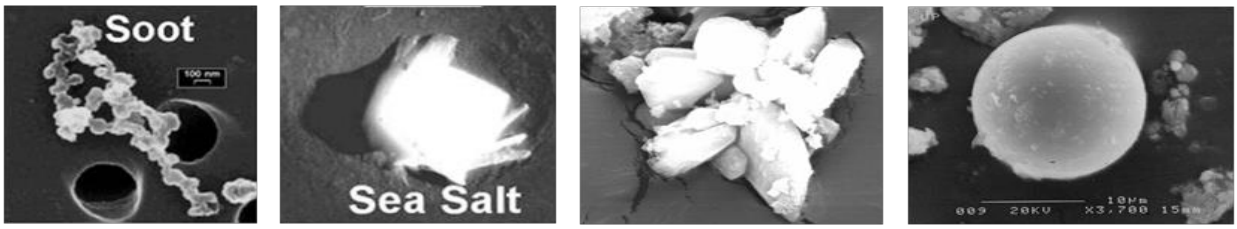


Figure 6 : exemples (composition et forme) de particules en suspension : carbone élémentaire, sel marin…

2.2.5 Impact des particules (PM)

Les particules en suspension ont un impact certain sur la santé et sur l'environnement. Plusieurs études pointent l'effet des PM sur la santé. Cet effet se traduit par une augmentation de la mortalité et du nombre d'hospitalisation liée à des pathologies cardiovasculaires. L'effet des particules sur la santé est bien entendu dépendant de la composition chimique de celles-ci. Cet effet est plus important en présence de composés toxiques. Cet effet dépend aussi du diamètre des particules, c'est-à-dire de la granulométrie. C'est ainsi que les particules PM2.5, plus pénétrantes dans l'organisme sont jugées plus nocives pour la santé.
Les particules ont aussi des effets sur l'environnement. Elles peuvent participer à la dégradation des végétaux et du patrimoine bâti.

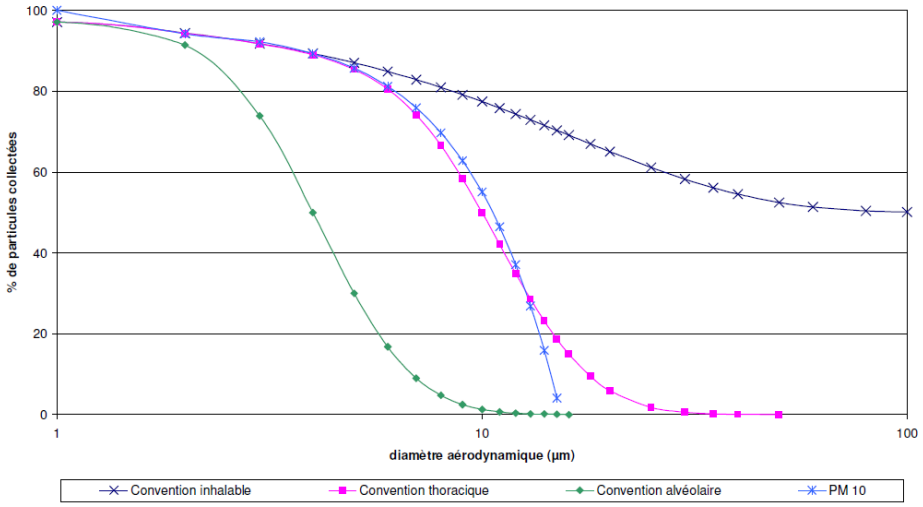


Figure 7 : pénétration des particules en suspension dans l'organisme.
Probabilité de pénétration (inhalation, thorax et alvéoles) en fonction du diamètre

2.3 *Réglementation*

2.3.1 Définitions

Objectif de qualité (PM10 et PM2.5) : niveau à atteindre à long terme et à maintenir, sauf lorsque cela n'est pas réalisable par des mesures proportionnées, afin d'assurer une protection efficace de la santé humaine et de l'environnement dans son ensemble. Il correspond à une qualité de l'air jugée acceptable que la réglementation française définit comme objectif à atteindre dans un délai donné (quelques années).

Valeur limite (PM10 et PM2.5) : valeur réglementaire contraignante qui doit être respectée chaque année, définie par la réglementation européenne et reprise dans la réglementation française. Les valeurs limites s'appliquent à une certaine échéance, annuelle ou journalière. Un dépassement de valeur limite doit être déclaré au niveau européen. Dans ce cas, des plans d'actions motivés doivent être mis en œuvre afin de conduire à une diminution rapide des teneurs en dessous du seuil de la valeur limite. Selon les polluants, les valeurs limites peuvent être abaissées d'années en années jusqu'à rejoindre l'objectif de qualité.

Valeur cible (PM2.5) : niveau à atteindre, dans la mesure du possible, dans un délai donnée, afin d'éviter de prévenir ou de réduire les effets nocifs sur la santé humaine ou l'environnement dans son ensemble.

Seuil d'information et de recommandations : niveau au-delà duquel une exposition de courte durée présente un risque pour la santé humaine de groupes particulièrement sensibles au sein de la population et qui rend nécessaire l'émission d'informations immédiates et adéquates à destination de ces groupes et des recommandations pour réduire certaines émissions.

Valeur guide de l'OMS : niveaux préconisés par l'Organisation Mondiale pour la Santé en vue de protéger la santé.

2.3.2 *Principaux textes*

- **Directives de l'Union Européenne**
  - Directive 1999/30/CE du 22 avril 1999 relative à la fixation de valeurs limites pour l'anhydride sulfureux, le dioxyde d'azote et les oxydes d'azote.
  - Directive 2008/50/CE du 21 mai 2008 concernant la qualité de l'air ambiant et un air pur pour l'Europe.

- **Réglementation française**
  - Décret n°2002-213 du 15 février 2002 portant transposition des directives 1999/30/CE du 22 avril 1999 et 2000/69/CE du 16 novembre 2000 et modifiant le décret n°98-360 du 6 mai 1998.
  - Circulaire du 12 octobre 2007 relative à l'information du public sur les particules en suspension dans l'air ambiant.
  - Arrêté n°2007-21277 du 3 décembre 2007 relatif à la procédure d'information et d'alerte du public en cas de pointe de pollution atmosphérique en Ile-de-France.
  - Décret 2010-1250 du 21 octobre 2010 relatif à la qualité de l'air.

2.3.3 *Normes françaises et européennes*

Le tableau ci-dessous présente les normes applicables pour l'année 2015.

Polluant	Particules inférieures à 10 µm (PM10)	Particules inférieures à 2,5 µm (PM2.5)
Seuil d'information	50 µg/m^3 en moyenne 24 heures	
Seuil d'alerte	80 µg/m^3 en moyenne 24 heures	
Valeurs limites	50 µg/m^3 moyenne journalière (35 dépassements/année civile) 40 µg/m^3 moyenne année civile	2015 : 25 µg/m^3 moyenne année civile 2020 : 20 µg/m^3 moyenne année civile
Valeurs cibles		25 µg/m^3 moyenne année civile 20 µg/m^3 moyenne année civile
Objectif de qualité	30 µg/m^3 moyenne année civile	10 µg/m^3 moyenne année civile
Obligation en matière de concentration d'exposition		2020 : 20 µg/m^3 moyenne année civile

Année civile : du 1er janvier au 31 décembre

Valeurs guides de la qualité de l'air de l'OMS

Source : GUIDELINES FOR AIR QUALITY, WHO, Geneva 2000 (Critères 1999, mise à jour 2005)

Polluant	Période	*Valeur guide 2000*	Valeur guide 2005
PM10	moyenne annuelle	*pas de valeur guide*	20 µg/m^3
	moyenne journalière	*pas de valeur guide*	50 µg/m^3 (percentile 99 ; soit 3 jours/an)
PM2.5	moyenne annuelle	*pas de valeur guide*	10 µg/m^3
	moyenne journalière	*pas de valeur guide*	25 µg/m^3 (percentile 99 ; soit 3 jours/an)

2.4 *Bilan de la pollution PM dans la zone industrielle de l'étang de Berre*

2.4.1 Emissions des particules (PM)

Les cartes ci-dessous illustrent les émissions de particules en suspension au cours de l'année 2007 (PM10, Figure 8 et PM2.5, Figure 9), dans la zone industrielle de l'étang de Berre.
Les contributions des différents secteurs d'activité à ces émissions sont représentées par la Figure 10 et la

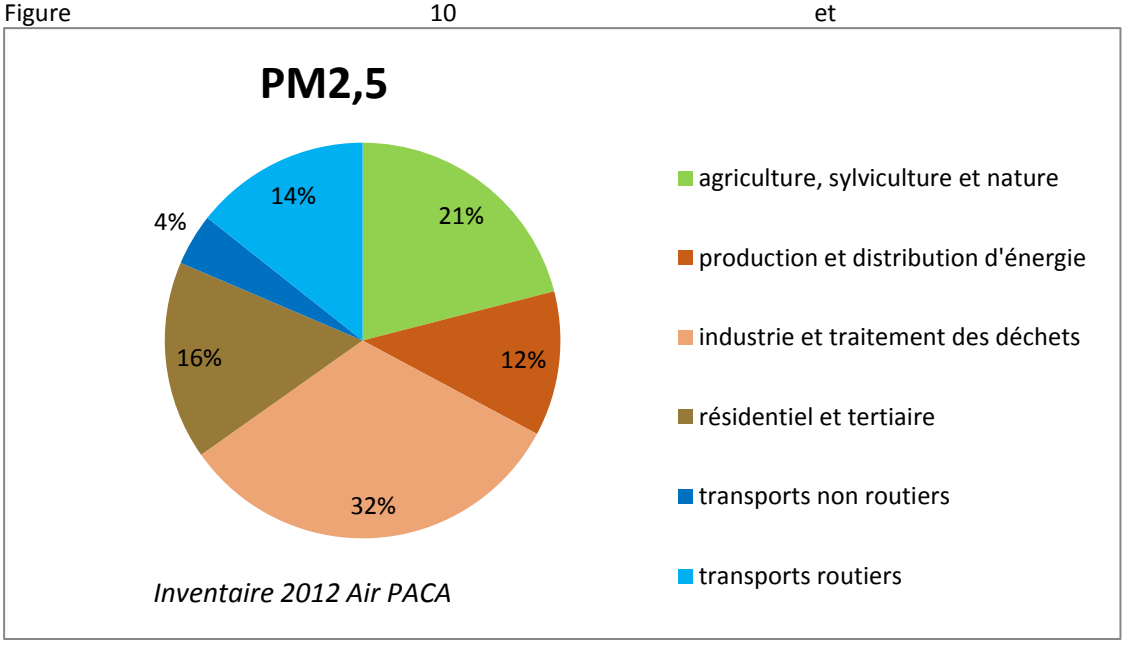


Figure 11.

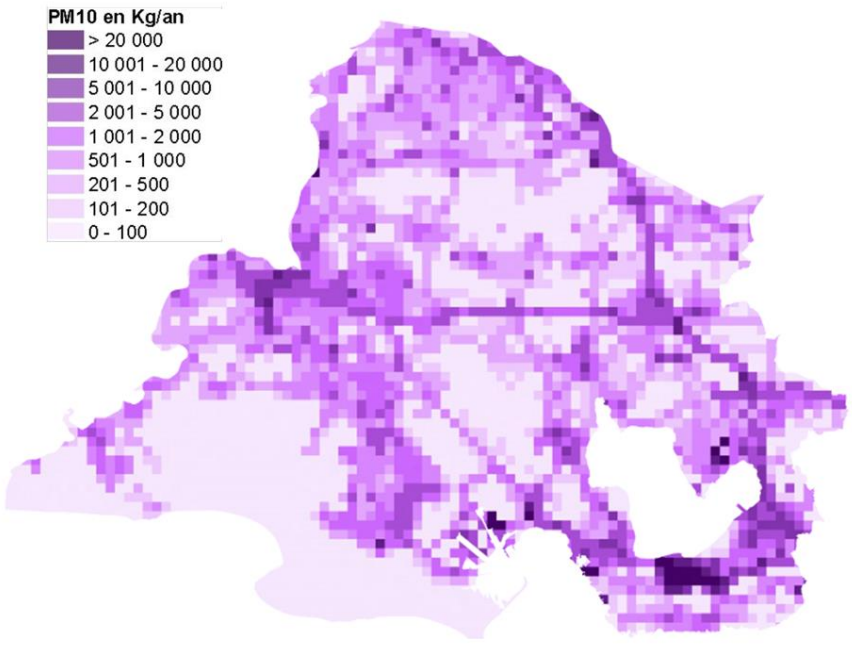


Figure 8 : émissions des PM10 dans la zone de l'étang de Berre au cours de l'année 2007

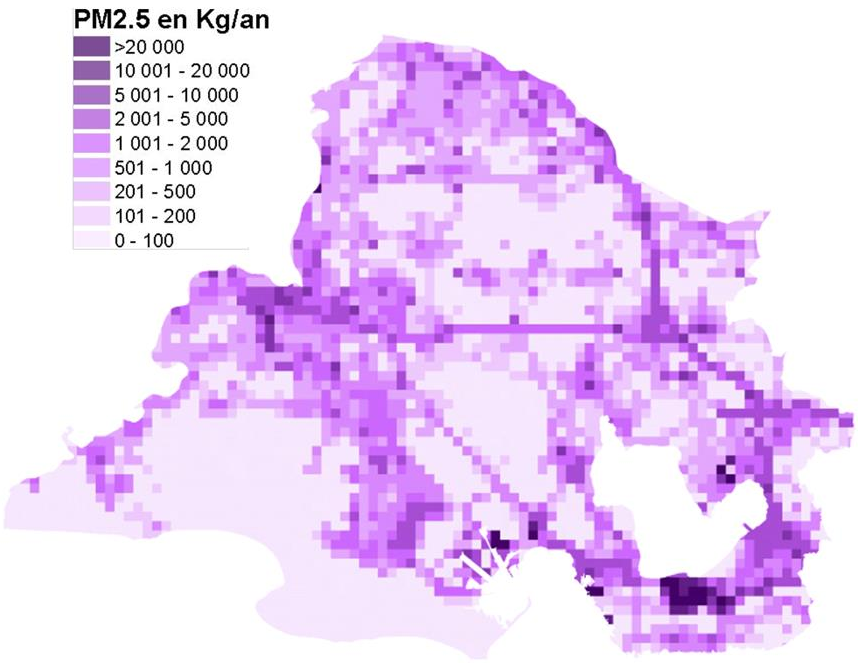


Figure 9 : émissions des PM2.5 dans la zone de l'étang de Berre au cours de l'année 2007

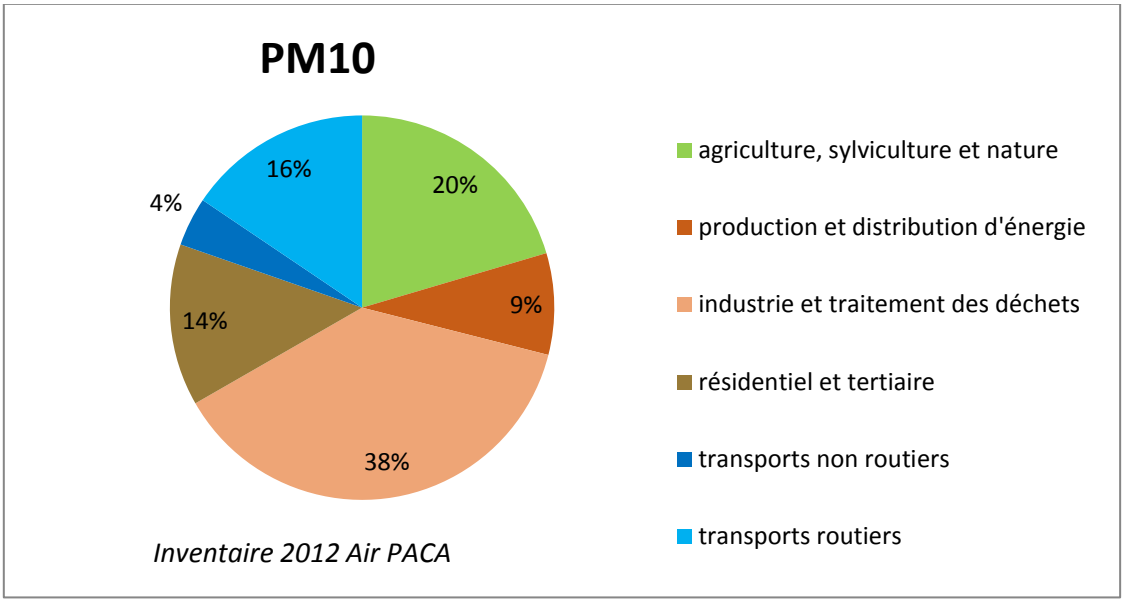


Figure 10 : émissions des particules PM10 dans la zone de l'étang de Berre au cours de l'année 2012

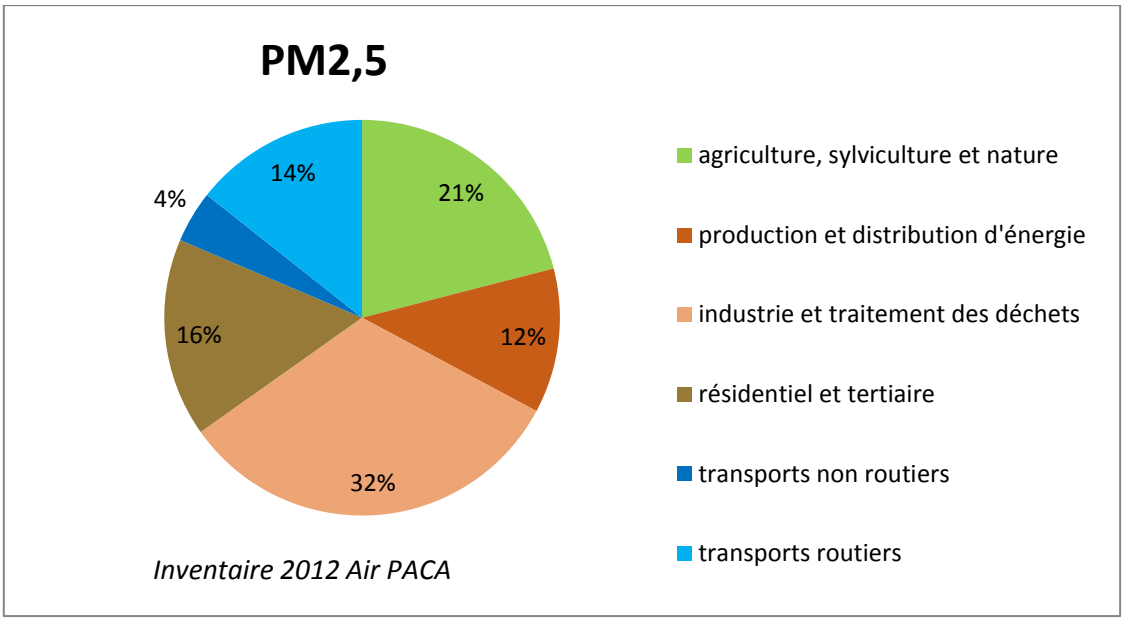


Figure 11 : émissions des particules PM2.5 dans la zone de l'étang de Berre au cours de l'année 2012

2.4.2 *Niveaux de pollution en particules (PM)*

Pour évaluer les niveaux de pollution par les particules en suspension dans la zone de l'étang de Berre, les figures ci-dessous présentent les concentrations de PM10 mesurées dans les stations d'Air PACA :

- concentrations moyennes annuelles de PM10 (Figure 12),
- concentrations journalières (Figure 13),
- concentrations moyennes annuelles de PM2.5 (Figure 14).

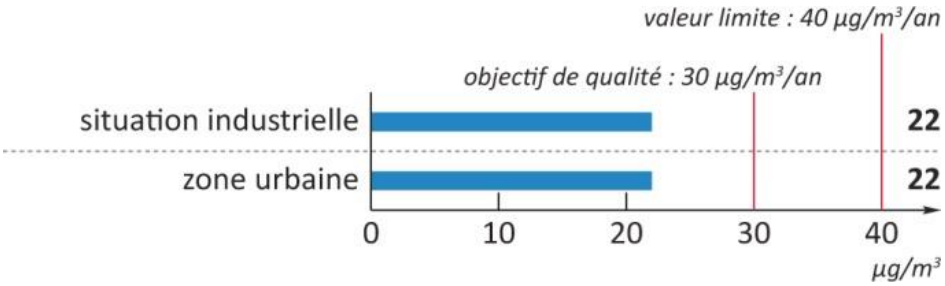


Figure 12 : moyennes annuelles en particules en suspension PM10 en 2014

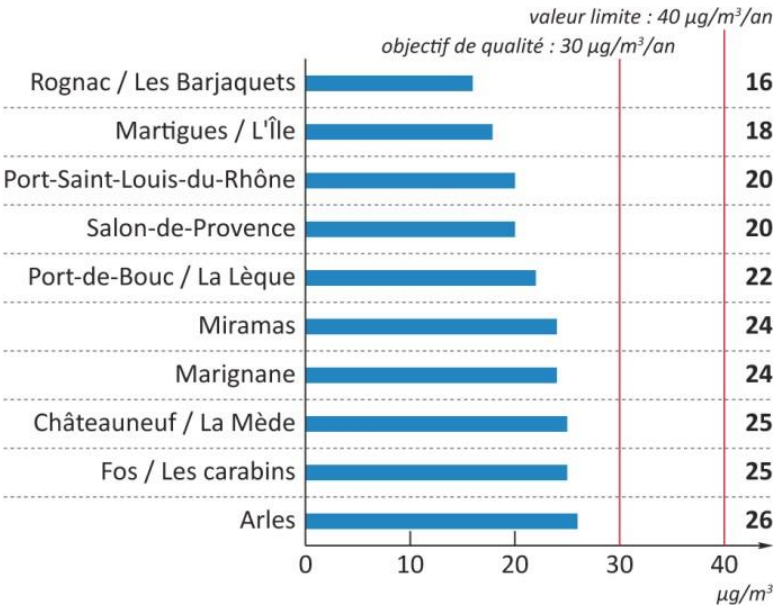


Figure 13 : nombre de jours avec une moyenne supérieure à 50 µg/m^3 en 2014

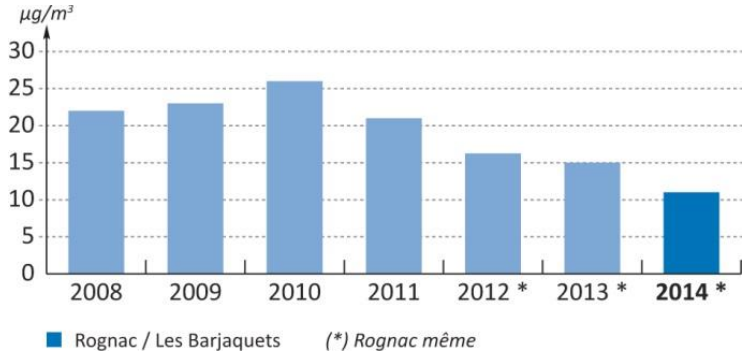


Figure 14 : moyennes annuelles en particules en suspension PM2.5 en 2014

3 Métrologie

3.1 *Prélèvement pour la spéciation chimique*

3.1.1 Equipement de prélèvement

Pour certains composés chimiques, les niveaux des concentrations recherchées sont très faibles. Une attention particulière est portée à la phase de prélèvement, pour éviter toute perte de matière et toute contamination.

Pour le prélèvement des particules en suspension dans l'air ambiant, à des fins de spéciation chimique, il n'existe pas de norme ou de recommandations nationales.

Le choix de la méthode s'est appuyé sur :

- les faibles concentrations à prélever,
- l'expérience acquise dans ce domaine par les AASQA.

Le choix s'est porté sur un prélèvement :

- à haut débit (30 $m^3.h^{-1}$), avec une tête de coupure PM 2.5,
- sur un filtre, approprié aux analyses à réaliser, pour piéger la fraction particulaire,
- d'une durée d'échantillonnage de l'ordre de 24 heures.

Le préleveur choisi est équivalent à la méthode de référence conformément à la norme NF EN 12341.



Figure 15 : équipement à haut débit pour les prélèvements dans l'air ambiant

3.1.2 Filtres de prélèvement

Les filtres utilisés sont compatibles avec les analyses chimiques qui sont réalisées. Des précautions sont également prises lors du conditionnement et du transport.
Après le prélèvement, les filtres sont déchaussés de leur porte-filtre. Ils sont ensuite emballés dans du papier aluminium, placés dans des sachets hermétiques et mis au congélateur jusqu'à l'analyse (transport en glacières).

3.2 *Mesure de la granulométrie*

3.2.1 Equipement de mesure

Un granulomètre « TSI 3031 » est utilisé pour la mesure de la ganulomètrie des PM. C'est un analyseur de mobilité électrique couplé avec un électromètre pour le comptage des particules.



Figure 16 : granulomètre (DMPS) TSI 3031

3.2.2 Classes granulométriques

Le granulomètre TSI 3031 compte les particules en suspension et les répartit dans 6 classes de taille, allant de 20 nm à 1 µm.

Nom de classe	Taille des particules
CH1	20-30nm
CH2	30-50nm
CH3	50-70nm
CH4	70-100nm
CH5	100-200nm
CH6	200-1000nm

Figure 17 : classes granulométriques du TSI 3031

3.3 *Campagnes de prélèvements et de mesures*

3.3.1 Zone de l'étude

Les investigations de l'étude concerne l'aire de surveillance « ouest Bouches-du-Rhône », et plus précisément le pourtour de l'étang. Cette aire recouvre les principales installations industrielles de la zone.

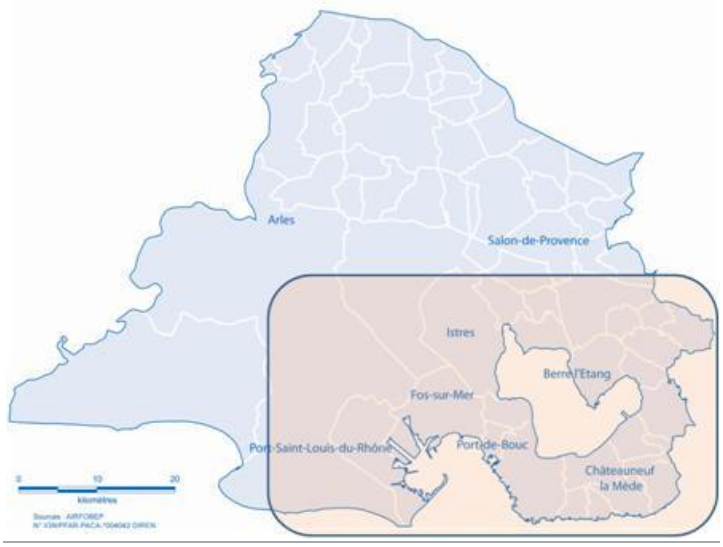


Figure 18 : zone de l'étude

3.3.2 Stratégie de prélèvements

Pour la spéciation chimique, la stratégie de prélèvement vise à satisfaire 2 exigences :

- le prélèvement dans le milieu récepteur impacté par les principales sources locales d'émission de PM, avec une bonne représentativité temporelle,
- le prélèvement en aval de sources industrielles particulières : complexe métallurgique ARCELOR MITTAL et le port minéralier.

Pour la granulométrie, les mesures sont faites sous les vents de sources industrielles remarquables de la zone : complexe métallurgique ARCELOR MITTAL et le port minéralier.

La stratégie de prélèvements tient également des contraintes du « terrain », comme par exemple la disponibilité de raccordement électrique et la proximité d'une station de mesure fixe du réseau de surveillance d'Air PACA.

3.3.3 Réseau des sites de prélèvements

Les prélèvements sur filtres, en site récepteur, sont réalisés sur 3 sites :

- deux sites se trouvent régulièrement sous les vents des sources industrielles : Fos-sur-Mer et Port-Saint-Louis-du-Rhône,
- le troisième site, Rognac, présente la particularité d'être alternativement sous les vents de deux types de sources : industrielle et transport routier.

La surveillance menée sur ces 3 sites montre des niveaux de **concentrations élevées de particules en suspension (PM10 et PM2.5).**

La logistique de la campagne pour couvrir ces 3 sites intègre :

- 1 site fixe : mesure en continue,
- 2 sites mobiles : mesure en discontinue.

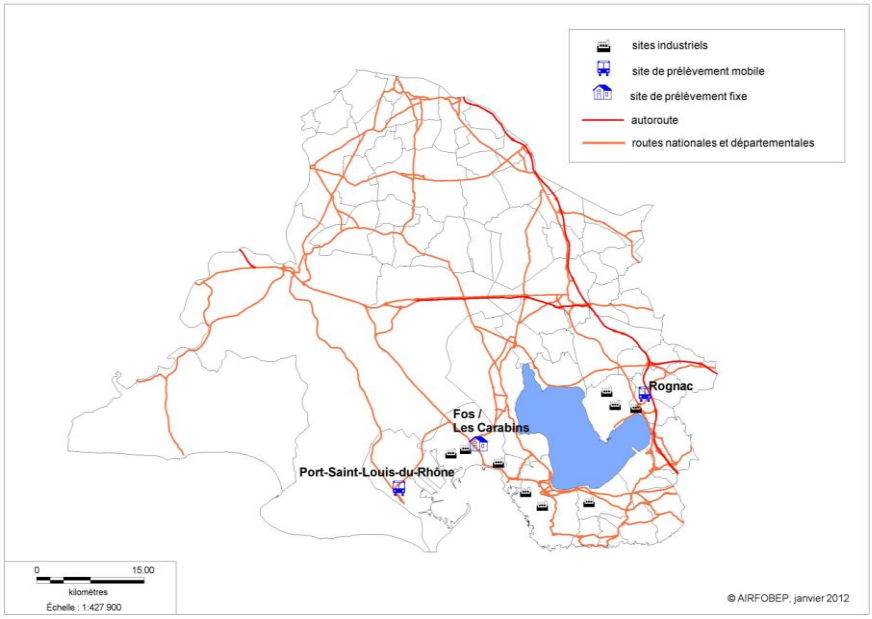


Figure 19 : carte des sites de prélèvement sur filtre en milieu récepteur

Les mesures de la granulométrie sont réalisées dans 4 points de mesures, en aval de sources de particules présentes dans la zone d'investigation :

- complexe métallurgique :
  - aciérie,
  - laitier,
  - unité d'agglomération.
- port : terminal minéralier :
  - stockage



Figure 20 : carte des sites pour la mesure de la granulométrie

3.3.4 *Planification*

Pour les prélèvements sur filtres, en site récepteur, la représentativité temporelle dans la stratégie de prélèvement est assurée en réalisant :

- des prélèvements bien répartis sur une année complète,
- un nombre important de prélèvements journalier.

La période de la campagne de prélèvements en milieu récepteur s'étend de mai 2012 à août 2013.

Pour la granulométrie, les mesures ont été réalisées pendant des périodes relativement longues. Pendant chaque période, le granulomètre a été sous les vents de la source visée par l'investigation.
Les mesures ont été réalisées au cours de la période : janvier 2013 – février 2014.

3.4 *Références normatives et bibliographiques pour la partie métrologie*

- Norme Européenne NF EN 12341 : 1999
  - qualité de l'air
  - détermination de la fraction PM10 de matière particulaire en suspension
  - méthode de référence et procédure d'essai in situ pour démontrer l'équivalence à la référence de méthode de mesurage

- Norme Européenne NF EN 14907 : 2005
  - qualité de l'air
  - détermination de la fraction PM2.5 de matière particulaire en suspension
  - méthode de référence et procédure d'essai in situ pour démontrer l'équivalence à la référence de méthode de mesurage

- Origine des particules en ile de France
  - AIRPARIF : septembre 2011

- Métrologie des particules PM10 et PM2.5
  - caractérisation chimique des particules Bilan des campagnes de janvier 2008 à janvier 2009
  - INERIS / LCSQA, Juin 2009

4 Résultats

4.1 *Signatures granulométriques*

Les mesures automatiques en continu réalisées avec le granulomètre « DMPS 3031 TSI » ont permis d'obtenir la distribution granulométrique des particules en suspension (PM) dans la zone d'investigation.
Les mesures ont été réalisées dans 4 sites situés en aval des sources d'émission qui font l'objet de l'investigation.

Le tableau 1 présente les périodes de mesure pour chacune de ces sources.

Source	Libellé du site de mesure	Période de mesures
Aciérie	Elengy 1	28-01-2013 au 03-07-2013
Laitier	DB6	03-07-2013 au 23-09-2013
Agglo	Elengy 2	23-09-2013 au 10-12-2013
Terminal minéralier	Aval terminal	10-12-2013 au 5-02-2014

Tableau 1 : source de pollution, site de mesures associé et période

4.1.1 Granulométrie de l'aérosol dans la zone d'investigation

Nous rendons compte, dans un premier temps, de la granulométrie « générale » des particules en suspension dans la zone d'investigation.
L'ensemble des mesures effectuées, toutes périodes confondues, ont été utilisées pour réaliser le graphique de la figure 21. Il représente la distribution « en nombre par cm^3 » des particules en suspension dans les 6 canaux de « taille de particules en nm » du DMPS 3031.
Le résultat montre que :

- La majorité des particules dénombrées se répartissent dans les premiers canaux correspondant aux tailles les plus petites : entre 20 et 50 nm,
- En moyenne, pour les différents canaux de taille, la concentration en nombre de particules se situe entre 1000 et 5000 particules par cm^3.

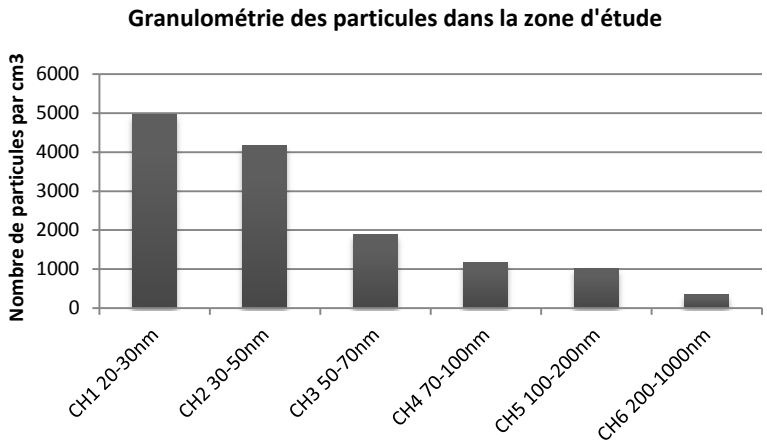
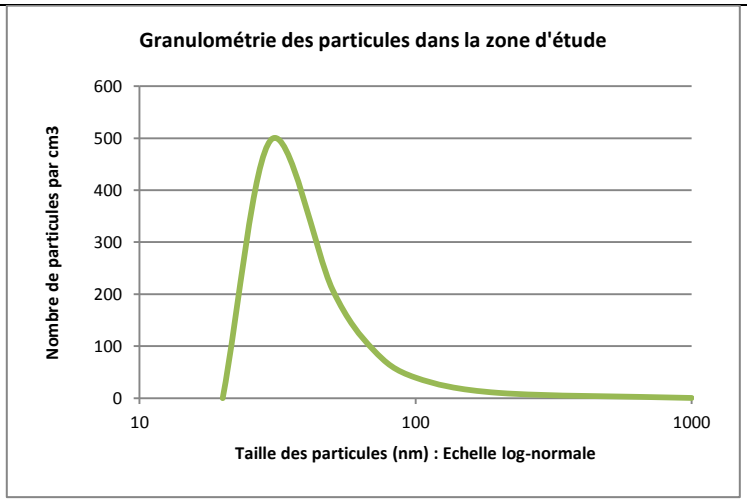


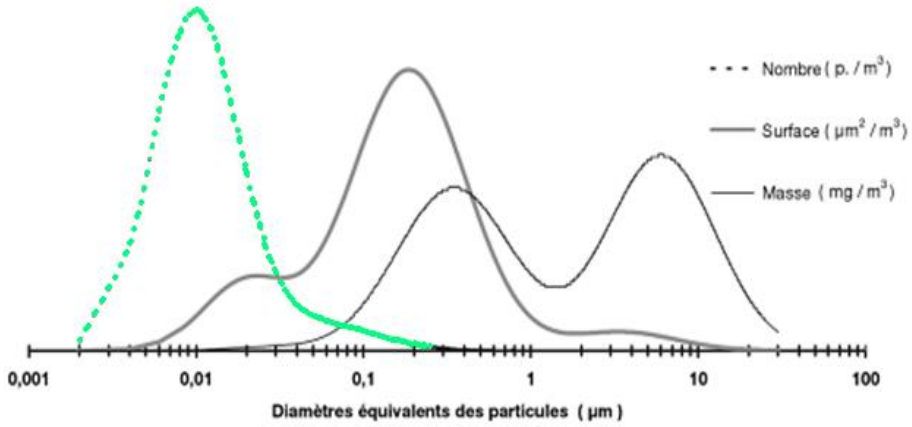
Figure 21 : granulométrie « générale » des particules en suspension dans la zone d'investigation

Les résultats des mesures réalisées ont été extrapolés pour être comparés avec les données présentes dans la littérature. Les données pour les tailles de particules inférieures à 20 nm ont été ainsi complétées.
Le résultat de cette extrapolation est représenté dans la première partie de la figure 22.
La distribution granulométrique, obtenue à partir des mesures réalisées dans le cadre de l'étude, est très proche de celles obtenues dans d'autres études répertoriées dans la littérature : seconde partie de la figure 22.

Par ailleurs, la concentration totale en nombre de particules par cm^3, obtenue au cours de l'étude, est également du même ordre de grandeur que celles répertoriées dans la littérature : voir le tableau 2.



Granulométrie des particules en suspension mesurée dans la zone d'investigation : Taille en nanomètre (nm)



Granulométrie de l'aérosol atmosphérique issue de la littérature

Figure 22 : comparaison entre la granulométrie obtenue dans le cadre de l'étude et celles présentes dans la littérature

Zone urbain ou rurale	Industriel	Etude
~10^3 à 10^4 part/cm^3	~ 10^4 à 10^6 part/cm^3	10^4 part/cm^3

Tableau 2 : concentration en nombre de particules par cm3 : comparaison entre le résultat de l'étude et les données de la littérature

4.1.2 Granulométrie de l'aérosol en aval des sources

4.1.2.1 Profils granulométriques

Les données granulométriques ont été traitées pour extraire uniquement celles où le point de mesure est sous le vent des 4 sources investiguées.
Le résultat de ce traitement, illustré dans la figure 23, montre des différences certaines selon la source considérée. Les différences se situent dans :

- le niveau de concentration en nombre par cm^3,
- le profil granulométrique.

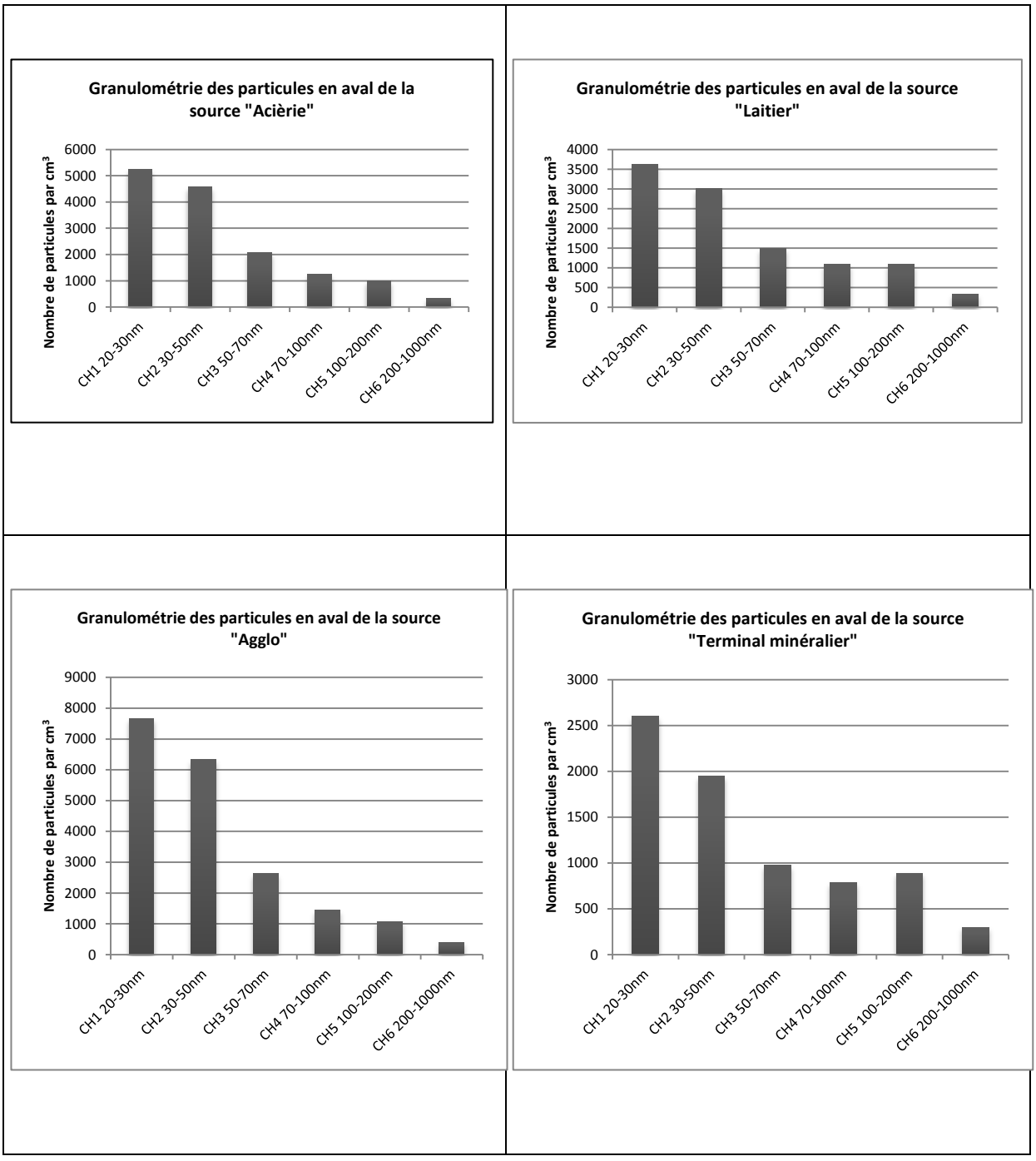


Figure 23: profils granulométriques des 4 sources investiguées

En prenant en compte les paramètres « taille » et « concentration » en nombre de particules par cm^3, deux typologies de source sont observées :

- Les sources avec un seul « mode » de particules, les plus fines, avec des concentrations importantes. C'est le cas des sources « aciérie » et « agglo ».

- Les sources avec 2 « modes » de particules, fines et grossières, avec des concentrations moins élevées. C'est le cas des sources « laitier » et « terminal minéralier ».

4.1.2.2 Signatures granulométriques des sources

Pour mieux appréhender la différence entre les profils granulométriques des sources, nous représentons dans la figue 24 leurs signatures à l'aide de 3 paramètres :

- la concentration totale observée en moyenne en aval de la source,
- le diamètre moyen des particules mesuré en aval de la source,
- l'étendue de la taille des particules mesurée en aval de la source : étendu des 90 % des particules.

Pour une meilleure représentation, les paramètres ont été normalisés avec la valeur la plus importante obtenue pour les 4 sources.
Cette représentation confirme bien la différenciation claire entre les 4 sources du point de vue granulométrique et les deux typologies indiquées dans le paragraphe précédent.

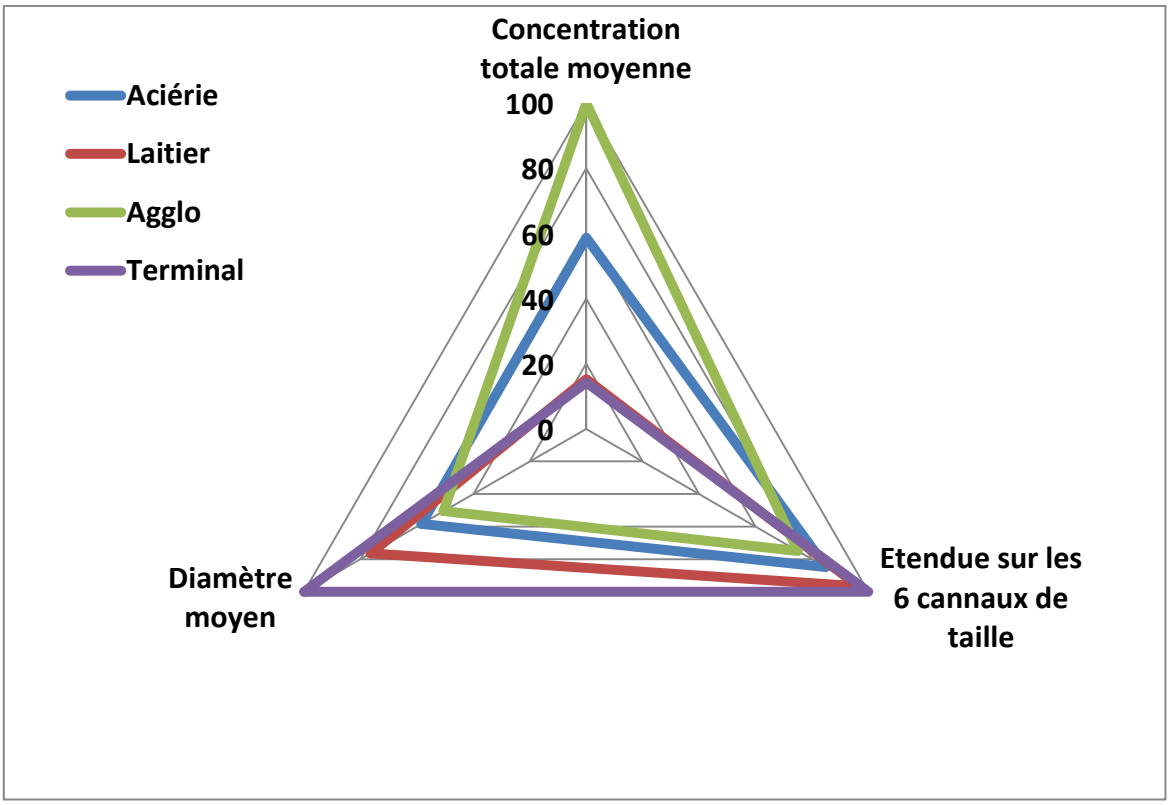


Figure 24: signatures granulométriques des 4 sources investiguées

4.1.3 Recherche de sources

Nous avons cherché à savoir si les mesures granulométriques peuvent apporter une aide dans la recherche de sources de particules dans la zone d'investigation.
Nous avons comparé les informations obtenues par la mesure de concentration massique, PM10 et PM2.5 à celles fournies par la granulométrie. Le résultat de cette comparaison est illustré dans la figure 25.

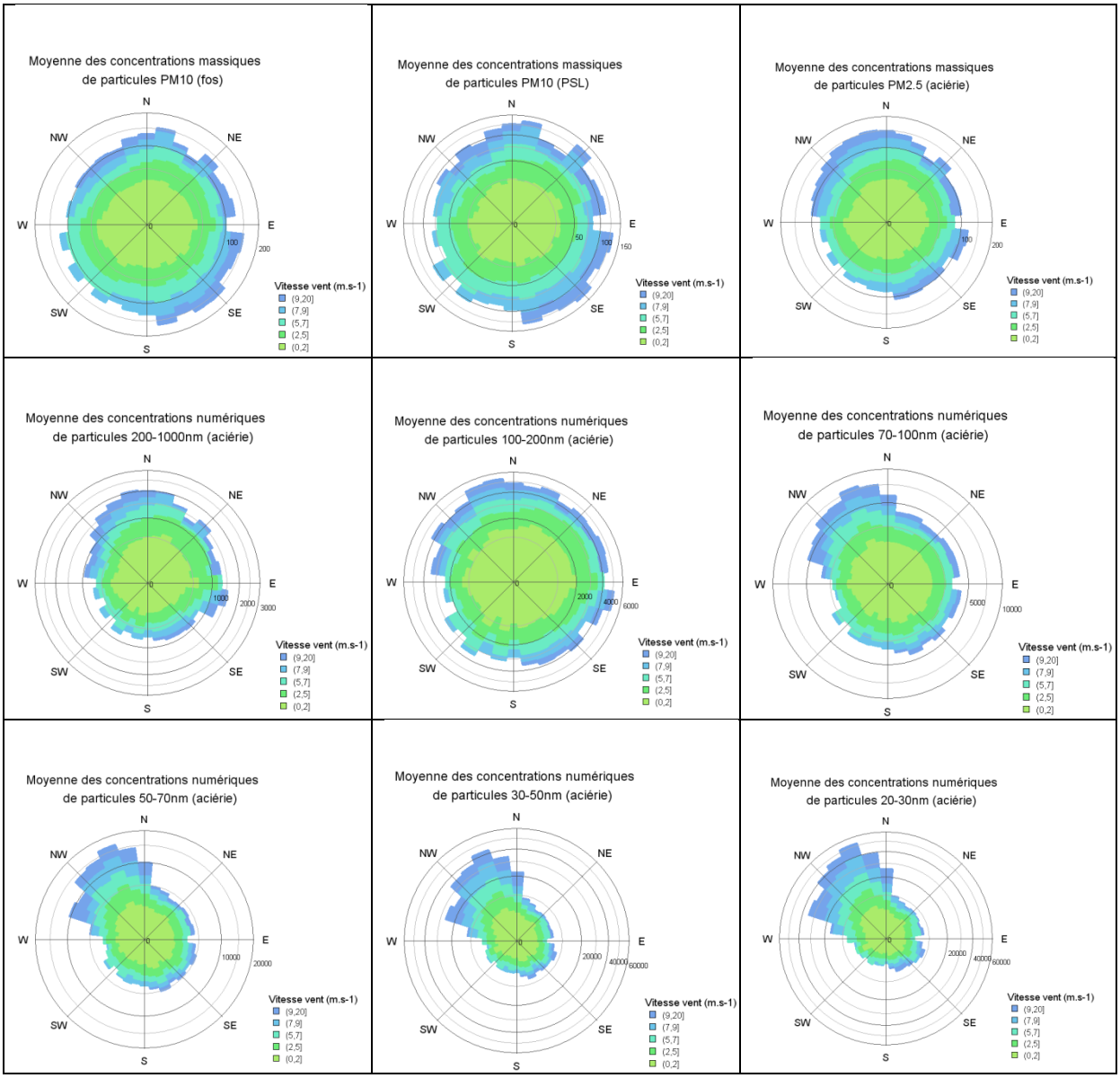


Figure 25: roses de pollution PM

Informations fournies par la mesure de la concentration massique et granulométrique pour la recherche de sources de pollution PM.

Les roses de pollution PM de la figure 25 illustrent les niveaux de concentration massique ou numérique en fonction de la vitesse et la direction du vent. Les données pour l'élaboration de ces roses sont issues de prélèvements à proximité ou sous les vents de sources de PM, notamment industrielles.
L'examen de l'ensemble des roses montre que :

- Lorsque l'on considère les concentrations massiques, PM 10 ou PM2.5, les roses ne sont pas « directionnelles ». C'est-à-dire qu'il n y a pas de directions pour lesquelles la pollution PM est plus importante ; les roses en question ne pointent pas vers des sources particulières de PM.

- Par contre, les roses de concentrations numériques, sont bien « directionnelles » et pointent vers la ou les sources de pollution PM. **Ceci est particulièrement vrai pour les Particules UltraFines (PUF), dont le diamètre est inférieur à de 100 nm.**

En conclusion, ***les mesures granulométriques des particules fines*** sont un outil pertinent et utile dans la recherche de sources PM.

Dans cette démarche de recherche de sources, les différentes roses de pollution, exprimées en concentrations numériques des particules ultrafines (canal 1 du granulomètre TSI 3031 : 20 – 30 nm), sont portées sur une carte. Le résultat est présenté dans la figure 26.

Ainsi les orientations des 4 roses de pollution montrent que :

- les sources les plus importantes des particules fines dans la zone d'investigation sont les sources dénommées :aciérie,agglo
- une autre source, non prise en compte dans notre série initiale, semble également participer de manière significative. Il s'agit de de l'installation « Four » du site d'ARCELOR MITTAL. Elle est située entre les deux sources citées ci-dessus.



Figure 26: Cartes des Roses de pollution : concentrations numériques des particules ultrafines. Détermination des principales sources de particules ultrafines dans la zone d'investigation.

4.1.4 Références

- Livre

A. Renoux & D. Boulaud, 1998. Les aérosols. Physique et métrologie. Lavoisier TEC&DOC.

- Article en ligne

O. Le Bihan, L. Malherbe (LCSQA), 2008. Métrologie des polluants non règlementés. Connaissance de la pollution par les particules submicroniques. Disponible sur : file:///C:/Documents%20and%20Settings/airpaca/Mes%20documents/Downloads/DRC_08_94293_15182A_submicronique_vf-signee.pdf

4.2 *Signatures chimique*

4.2.1 Réalisation des prélèvements

4.2.1.1 Prélèvements

Les prélèvements ont été effectués entre les mois de mai 2012 et août 2013. Ils ont été réalisés au moyen d'un préleveur haut débit (30 m3/h) équipé d'une tête de prélèvement PM2.5 sur des filtres en fibre de quartz, préalablement conditionnés. Chaque échantillon correspond à un prélèvement de 24h. Au total, 432 échantillons ont été collectés.

4.2.1.2 Choix des filtres

Parmi ce lot de filtres, un travail a été mené pour sélectionner 86 filtres, répartis comme suit :

Site	Fos-du-Mer	Port-Saint-Louis-du-Rhône	Rognac
nombre de filtres analysés	49	22	15

Par souci de représentativité, les filtres sélectionnés correspondent à des jours avec un épisode de pollution mais également à des situations peu ou non polluées.

4.2.2 Analyses chimiques

4.2.2.1 Chimie et enrichissement au cours des épisodes de pollution

4.2.2.1.1 Chimie

La caractérisation chimique a consisté à analyser les composés suivants :

- le carbone élémentaire (EC) et organique (OC),
- 8 ions majeurs,
- 29 métaux,
- 76 marqueurs organiques.

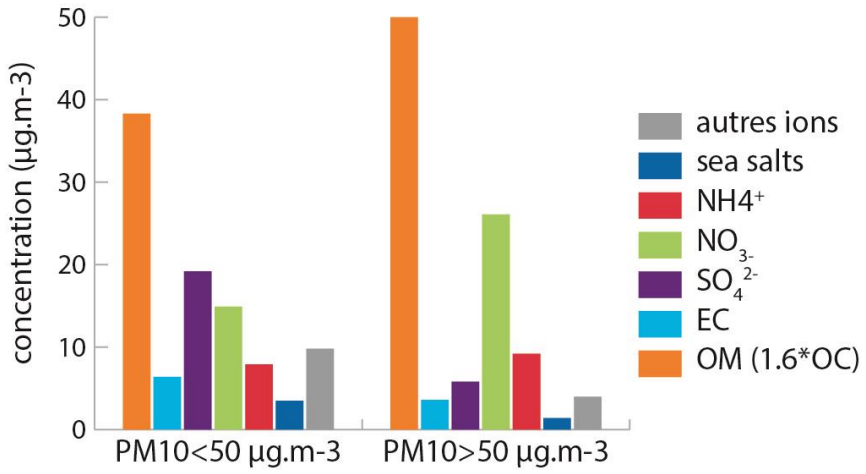


Figure 27 : concentration en OC, EC, SO42-, NO3-, NH4+ et autres ions pour les filtres collectés lors de jours sans dépassement (PM10 < 50µg.m3) en PM10 (gauche) et avec dépassement (PM10 > 50 µg/m3) en PM10 (droite) pour le site de Port-Saint-Louis-du-Rhône

Indépendamment du site considéré, la matière carbonée (OM+EC) représente entre 42 et 70% de la masse identifiée. Elle est très majoritairement dominée par la matière organique (OM).

4.2.2.1.2 Enrichissement au cours des épisodes de pollution

Quel que soit le site, la fraction organique et les nitrates (associés à l'ammonium) présentent les enrichissements les plus importants. Lors des jours pollués (concentration en PM10 > 50 µg/m^3) la fraction organique augmente de 8 à 15 µg/m^3 par rapport aux périodes non polluées.
Cet enrichissement en matière organique ne s'accompagne pas d'un enrichissement relatif en carbone élémentaire (EC). Les rapports OC/EC moyens calculés pour les échantillons collectés au cours des épisodes de dépassements en PM10 sont de 5,2 à Fos-sur-Mer, 8,8 à Port-Saint-Louis-du-Rhône et 7,9 à Rognac contre respectivement 4,1 ; 3,8 et 5,5 pour les échantillons collectés en dehors des épisodes de dépassements. Cette augmentation du rapport OC/EC au cours des épisodes de dépassements confirme un enrichissement spécifique en matière organique. La source véhiculaire ne peut donc pas être considérée comme le seul élément déclencheur des dépassements.

4.2.2.2 Traitements Chemical Mass Balance (CMB)

4.2.2.2.1 Contribution des sources

La méthodologie utilisée pour évaluer la contribution des sources est l'approche Chemical Mass Balance (CMB). Cette modélisation a été optimisée par le LCE au cours de campagnes de mesures menées à Marseille, notamment, et a été validé dans le cadre de nombreuses études nationales et européennes.
Le modèle CMB est basé sur la conservation de masse. Pour déterminer les contributions des sources, les concentrations mesurées sur les sites d'une large gamme de marqueurs organiques et métalliques et les profils de chaque source significative doivent être introduits dans le modèle. Le modèle détermine ensuite, pour chaque marqueur, la contribution de chacune des sources à partir des profils sélectionnés. Le profil représente une signature chimique spécifique à chaque source. Les profils utilisés dans la présente étude sont :

- combustion de biomasse,
- émissions véhiculaires directs et indirectes,
- débris végétaux,
- combustion de fuel lourd,
- émissions des cokeries,
- émissions des aciéries.

Dans le travail sur la contribution des sources, les trois derniers profils de la liste constituent le profil industriel. Ces profils sont bien documentés dans la littérature scientifique. Ils ont déjà été utilisés dans d'autres études de recherche de sources de pollution PM.

4.2.2.2.2 Contribution des sources à la concentration en carbone organique (OC)

La source de combustion de biomasse est en moyenne annuelle la source majoritaire. Pour le site de Fos-sur-Mer, la modélisation montre une forte contribution de cette source de la fin de l'automne au début du printemps. Cette contribution représente entre 15 à 90 % de la masse de l'OC. En dehors de cette période, la contribution de cette source est moindre. Les mêmes résultats sont observés sur les deux autres sites.

Ces très fortes contributions sont soutenues pas les importantes concentrations en marqueurs organiques très spécifiques de cette source comme le levoglucosan ou le mannosan (produits de pyrolyse de la cellulose) et les méthoxy-phenols (produits de pyrolyse des lignines).

L'examen précis de la contribution de cette source laisse également supposer une influence forte des combustions de déchets verts sur les concentrations en particules fines (PM2.5) observés dans la zone d'étude.

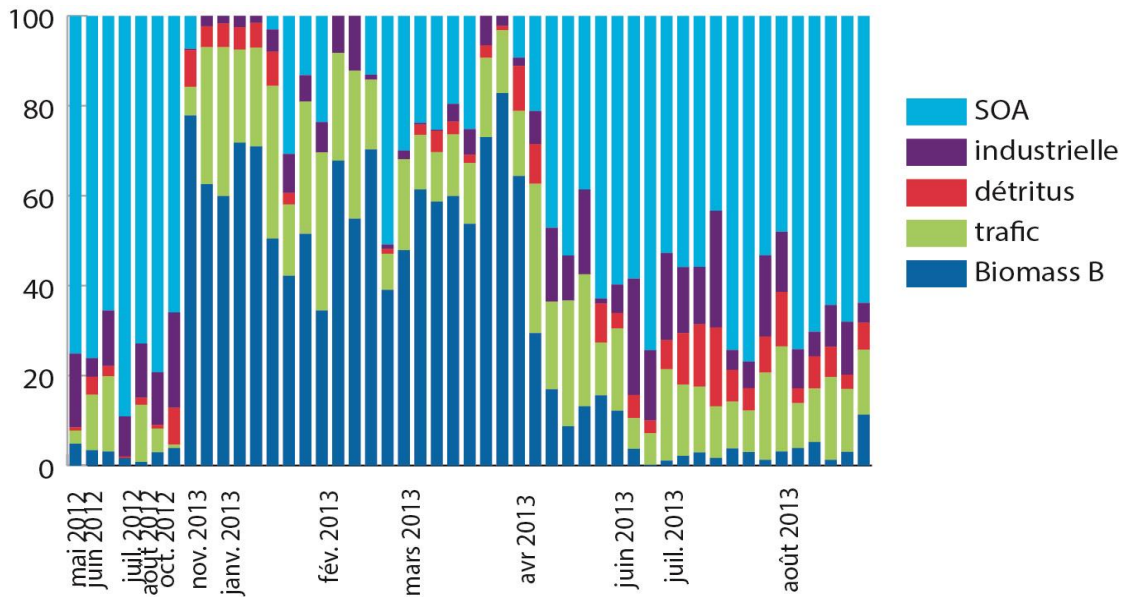


Figure 28 : contribution des sources modélisées à la concentration d'OC en % pour le site de Fos-sur-Mer - SOA : sources secondaires

La ***source secondaire*** est la fraction de l'aérosol formé dans l'atmosphère suite à l'oxydation de précurseurs gazeux. Elle est dominante l'été et représente entre 61 et 95 % de l'OC. Cette importante contribution à l'OC s'explique par une intense chimie de l'atmosphère en été.

La ***source véhiculaire*** contribue entre 2 % et 20 % à la concentration de l'OC. La contribution de cette source est relativement homogène sur les 3 sites. Les valeurs sont comparables à celles rencontrées dans les centres urbains tels que Marseille.

Pour ***les sources industrielles*** considérées dans les modélisations, la contribution pour le site de Fos-sur-Mer est comprise entre 0,1 à 15 % à la concentration de l'OC. Cette source n'est pas dominante mais peut, certains jours d'été, devenir la source prépondérante de l'OC. La contribution de cette source est moins importante pour les deux autres sites. C'est le reflet de la distance de ces sites par rapport aux installations industrielles.

4.2.2.2.3 Contribution des sources à la concentration en PM2.5

Les contributions des sources, considérées dans le modèle, sont déterminées en sommant leurs contributions aux fractions majeures des PM2.5 : OM, EC, sulfate, nitrate et ammonium.

Les fractions secondaires en sulfate, nitrate et ammonium sont calculées par différence entre les concentrations mesurées et les concentrations attribuées aux sources primaires considérées.

Les contributions des poussières minérales et de l'aérosol marin ont été calculées à partir de relations empiriques issues de la littérature.

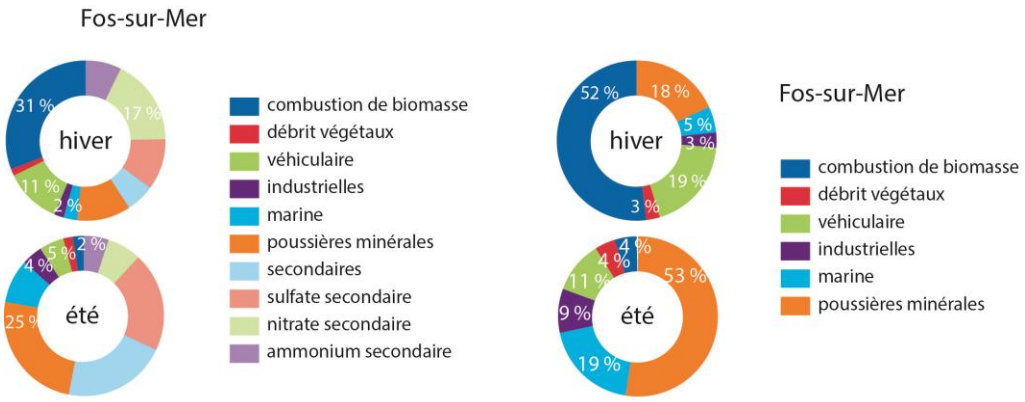


Figure 29 : contribution des sources modélisées à la concentration en PM2.5 en % pour le site de Fos-sur-Mer, contribution de l'ensemble de sources (à gauche) et des sources primaires (à droite), contribution en période hivernale (en haut) et autres périodes (en bas)

Pour les sources primaires considérées dans les modélisations CMB (combustions de biomasse, sources véhiculaire (transports) et industrielles) les principales conclusions sont identiques à celles développées précédemment pour le carbone organique (OC).

Il est important de noter que la contribution des combustions de biomasse diminue significativement du fait de la nature fortement organique de cet aérosol. Elles représentent entre 26 et 49 % de la masse des PM2.5 au cours des périodes fortement impactées par cette source.

Pour les émissions véhiculaires, leur forte contribution à l'EC est compensée par l'influence des ions majeurs secondaires, des poussières minérales et de l'aérosol marin. Leur contribution à la masse des PM2.5 est donc sensiblement analogue à celles reportées dans la section précédente.

Les contributions des poussières minérales sont calculées à partir des concentrations en Al, Fe, Ca, Mg, Mn et Ti. Pour les trois sites, des contributions importantes sont observées. Une forte variabilité saisonnière est également observée avec des concentrations significativement plus élevées l'été. Ainsi la contribution des poussières minérales aux PM2.5 peut atteindre 32 % à Rognac, 50 % à Fos-sur-Mer et 60 % (17 $\mu g.m^{-3}$) à Port-Saint-Louis-du-Rhône. Cette importante contribution observée sur les sites de Fos-sur-Mer, Port-Saint-Louis-du-Rhône et Rognac apparaît comme une particularité forte de la zone d'étude.

L'aérosol marin primaire calculé, à partir des concentrations en sodium soluble, contribue faiblement à la masse des PM2.5. Cette source représente entre 2,0 et 6,0 % de la masse des PM2.5 en moyenne annuelle sur les 3 sites. On note une contribution plus importante sur la partie ouest de la zone, probablement liée à une distance à la mer plus faible. Une variabilité saisonnière est également observée avec des concentrations moyennes et des maxima plus importants l'été. Ainsi, le sel marin peut constituer, en été, jusqu'à 38 % (7.2 $\mu g.m^{-3}$) des PM2.5 sur le site de Fos-sur-Mer.

Pour la fraction ionique secondaire, le sulfate et le nitrate présentent des comportements distincts. La présence de l'ammonium en phase particulaire résulte de réactions de neutralisations par l'ammoniac des sulfates et nitrates produits dans l'atmosphère sous leur forme acide (acide sulfurique et nitrique, respectivement). La contribution des NO_3^- secondaires est plus importante en hiver (respectivement 9 % - 17 % contre 6 % - 9 % en été). Une contribution plus importante en hiver du nitrate d'ammonium est classique et relève essentiellement d'une partition en phase particulaire favorisé par la baisse des températures.

Remarques importantes :

D'autres investigations sont entreprises pour **préciser la part des différentes sources, notamment industrielles**. Ces investigations procèdent par la détermination de nouveaux profils pour les sources industrielles présentes dans la zone d'investigation. L'utilisation de ces profils dans la modélisation CMB permettra de préciser les contributions des sources.

Les investigations préciseront dans quelle mesure les parts notées « poussière minérale » et « sulfate secondaire » contribuent à l'apport de la source industrielle.

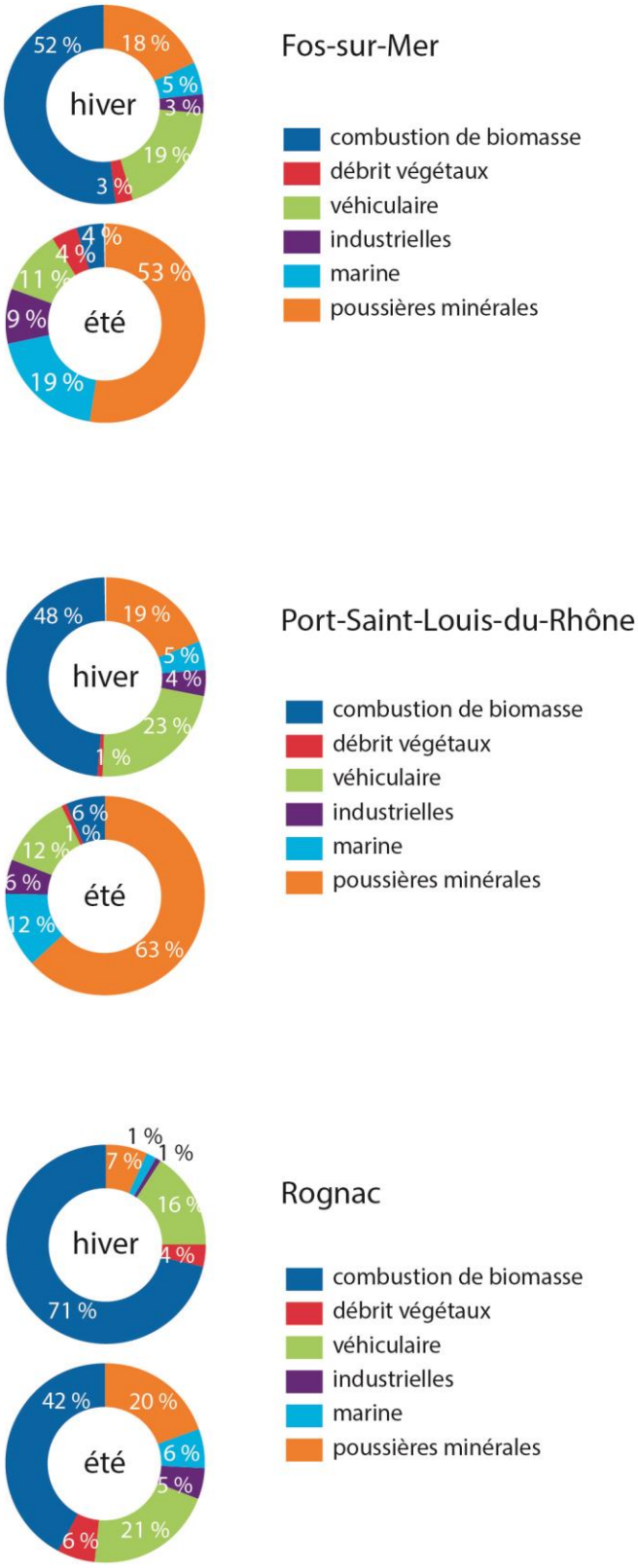


Figure 30 : contribution des sources primaires modélisées à la concentration en PM2.5 en % pour les 3 sites : Fos-sur-Mer (en haut), Port-Saint-Louis-du-Rhône (au centre) et Rognac (en bas), contribution en période hivernale (en haut) et autres périodes (en bas)

5 Conclusions

Le projet PM Sources (PMS) s'inscrit dans les actions d'Air PACA menées pour une meilleure connaissance des sources de la pollution particulaire. Il participe à une logique d'aide à la décision pour la planification des actions de réduction efficace de cette pollution.
Les résultats du projet permettent d'identifier les sources de pollution particulaire présentes dans la région industrielle de l'étang de Berre au travers de leurs signatures chimiques et granulométriques. Le projet contribue à :

- **la connaissance des sources de la pollution particulaire, notamment industrielles,**
- **la définition d'une méthodologie de recherche des sources de la pollution particulaire.**

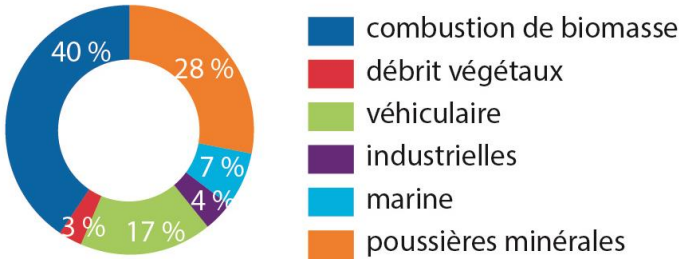
Les travaux sur la granulométrie montrent que :

Il existe des différences certaines entre les sources industrielles considérées. Ces différences se situent dans :

- le niveau de concentration en nombre par cm^3,
- le profil granulométrique.

Les mesures granulométriques des particules fines sont un outil pertinent dans la recherche de sources PM.

La spéciation chimique des particules et la modélisation CMB, menés par la LCE, ont permis de préciser la contribution des différentes sources de pollution à la concentration PM2,5.



Contribution des sources primaires modélisées à la concentration en PM2.5 : pourcentage moyen calculé sur l'année entière et pour l'ensemble des 3 sites.

Il apparait notamment que :

- La source de combustion de biomasse est en moyenne annuelle la source principale.
- Il existe des différences dans les contributions des sources en fonction des périodes de l'année considérées : hivers et hors hivers par exemple.
- La composition des PM2.5 et les contributions des sources sont caractéristiques des sources récepteurs : situation géographique, proximité des sources…
- Concernant les sources industrielles :
  - d'autres travaux sont nécessaires pour affiner leurs contributions,
  - leur contribution à la concentration « massique » est à moduler avec la granulométrie des particules qu'elles émettent documentée dans la première partie de l'étude : Particules Ultra Fines (PUF).

D'autres investigations sont entreprises pour préciser la part des différentes sources, notamment industrielles. Elles procèdent par la détermination de nouveaux profils pour les sources industrielles présentes dans la zone d'étude. L'utilisation de ces profils dans la modélisation CMB permettra de préciser :

- les niveaux de contributions des différentes sources,
- dans quelle mesure les parts notées « poussières minérales » et « sulfate secondaire » contribuent à l'apport de la source industrielle.

Documents de références :

- Note de synthèse du projet PMS

Rapport Air PACA, Décembre 2014

- Etude de la chimie de l'aérosol (PM2.5) sur trois sites du pourtour de l'étang-de-Berre

Rapport LCE, juillet 2014

- Sources de l'aérosol (PM2.5) sur trois sites du pourtour de l'étang-de-Berre

Rapport LCE, septembre 2014

PM Sources : Pollution par les particules en suspension
Recherche des sources à l'aide de signatures chimiques et granulométriques
Application à la région industrielle de l'étang de Berre



Le projet PM Sources (PMS) s'inscrit dans les actions d'Air PACA menées pour une meilleure connaissance des sources de la pollution particulaire. Il s'inscrit dans une logique d'aide à la décision pour la planification des actions de réduction efficace de cette pollution.
Les résultats du projet permettent d'identifier les sources de pollution particulaire présentes dans la région industrielle de l'étang de Berre au travers de leurs signatures chimiques et granulométriques. Le projet contribue à :

- **la connaissance des sources de la pollution particulaire, notamment industrielles,**
- **la définition d'une méthodologie de recherche des sources de la pollution particulaire.**

1- Les travaux sur la granulométrie montrent que :

- Il existe des différences certaines entre les sources industrielles considérées.
- Les mesures granulométriques des particules fines sont un outil pertinent et utile dans la recherche de sources PM.

2- La spéciation chimique des particules et la modélisation CMB ont permis de préciser la contribution des différentes sources de pollution à la concentration PM2.5. Il apparait notamment que :

- La source de combustion de biomasse est en moyenne annuelle la source primaire principale des concentrations de particules PM2.5.
- Concernant les sources industrielles, d'autres investigations sont entreprise pour affiner leurs contributions. Les investigations préciseront dans quelle mesure les parts notées « poussière minérale » et « sulfate secondaire » contribuent à l'apport de la source industrielle.

AirPACA
QUALITÉ DE L'AIR
www.airpaca.org

Siège social
146, rue Paradis
« Le Noilly Paradis »
13294 Marseille Cedex 06
Tél. 04 91 32 38 00
Télécopie 04 91 32 38 29

Établissement de Martigues
Route de la Vierge
13500 Martigues
Tél. 04 42 13 01 20
Télécopie 04 42 13 01 29

Établissement de Nice
333, Promenade des Anglais
06200 Nice
Tél. 04 93 18 88 00
Télécopie 04 93 18 83 06

Responsable de publication : BouAlem MESBAH - Publication : 10/2015
Photos : Archives Air PACA