



## Projet ECUME

# Evaluation de la Contribution des sources MaritimEs à la teneur en PM<sub>10</sub> sur le littoral de la région Nord-Pas-de-Calais

Rapport final décembre 2015



**Unité de Chimie Environnementale et Interactions sur le Vivant, UCEIV**  
**Laboratoire Informatique, Signal, Image de la Côte d'Opale, LISIC**  
**Centre Commun de Mesures de l'ULCO**  
**atmo Nord-Pas-de-Calais**  
**INERIS**



**DREAL NORD-PAS-DE-CALAIS**

Direction régionale de l'Environnement, de l'Aménagement et du Logement

# Sommaire

Sommaire .....	2
Liste des figures .....	4
Liste des tableaux.....	6
Introduction .....	7
1. Inventaire des émissions maritimes en Nord - Pas-de-Calais .....	8
1.1. Méthodologie détaillée de l'inventaire maritime (MARITF) .....	10
1.1.1. Périmètre du secteur .....	10
1.1.2. Méthodologie générale .....	10
1.1.3. Ajustements régionaux .....	10
1.1.4. Détails par port .....	11
1.1.5. Bilan des données utilisées .....	15
1.2. Résultats.....	16
1.2.1. Evolution pluriannuelle globale (région) .....	16
1.2.2. Boulogne.....	21
1.2.3. Calais .....	25
1.2.4. Dunkerque .....	29
1.3. Comparaison portuaire nationale et européenne .....	34
1.4. Conclusion et perspectives.....	36
2. Concentration et composition chimique des particules PM <sub>10</sub> sur le site du Cap Gris-Nez au cours de l'année 2013 .....	37
2.1. Méthodologie .....	37
2.1.1. Site d'étude et période de mesure.....	37
2.1.2. Méthodes de mesure et d'échantillonnage.....	38
2.1.3. Analyses chimiques .....	39
2.2. Résultats.....	41
2.2.1. Conditions météorologiques en 2013.....	41
2.2.2. Concentration de PM <sub>10</sub> .....	42
2.2.3. Composition chimique des PM <sub>10</sub> .....	46
2.2.4. Etude des épisodes de dépassement de la valeur limite de concentration de PM <sub>10</sub> ....	53
2.3. Récapitulatif.....	61
3. Mise en évidence de l'influence des émissions du trafic maritime : étude comparative menée dans le Port de Calais et au Cap Gris-Nez .....	62
3.1. Le site du Port de Calais .....	62
3.2. Concentrations en PM <sub>10</sub> , NO <sub>x</sub> et SO <sub>2</sub> .....	63
3.2.1. Concentration moyenne et évolution chronologique .....	63
3.2.2. Evolution en fonction des secteurs de vent.....	65
3.2.3. Evolution sur une courte échelle temporelle sur le site du Port de Calais .....	67
3.3. Composition chimique des PM <sub>10</sub> .....	70
3.3.1. Concentration moyenne au Cap Gris-Nez et dans le Port de Calais .....	70
3.3.2. Impact portuaire et urbain.....	71
3.3.3. Evolution des concentrations en fonction des secteurs de vent dans le Port de Calais	72
3.4. Récapitulatif.....	75
4. Evaluation des contributions de source à la teneur en PM <sub>10</sub> par l'utilisation d'un modèle récepteur.....	76
4.1. Principe de la factorisation matricielle .....	76
4.2. Résultats.....	78
4.2.1. Profils de source .....	78
4.2.2. Contributions de source .....	81
4.3. Récapitulatif .....	88
5. Comparaison modèle/mesures.....	89
5.1. Les modèles utilisés .....	89
5.1.1. ESERALDA GN15 .....	89
5.1.2. PREV'AIR AFM.....	93
5.2. Comparaisons modèles / mesures par espèce chimique.....	95
5.2.1. PM <sub>10</sub> .....	95
5.2.2. Nitrate .....	96
5.2.3. Ammonium.....	97
5.2.4. Sels marins .....	98
5.2.5. Sulfate.....	99
5.2.6. Carbone élémentaire EC .....	100

5.2.7.	Carbone organique OC .....	101
5.3.	Comparaison de la composition des aérosols en fonction des modèles. ....	102
5.3.1.	Répartitions moyennes .....	102
5.3.2.	Répartitions par concentrations PM10 faibles (< 15 µg/m <sup>3</sup> ) .....	103
5.3.3.	Répartitions par concentrations PM élevées (> 50 µg/m <sup>3</sup> ) .....	104
5.4.	Conclusions - perspectives.....	105
	Références .....	106
	Annexe 1 .....	109
	Annexe 2 .....	111
	Annexe 3 .....	115

## Liste des figures

Figure 1 : Schématisation des points d'émissions ponctuelles dans le Port de Boulogne-sur-Mer.....	11
Figure 2 : Schématisation des trajets effectués par les navires dans le Port de Calais .....	13
Figure 3 : Spatialisation des brins d'accès et des quais .....	14
Figure 4 : Energie par type de transport maritime (en TJ) .....	17
Figure 5 : Energie par port (en TJ) .....	18
Figure 6 : Emissions de CO <sub>2</sub> par type de transport maritime (en kt).....	19
Figure 7 : Emissions de CO <sub>2</sub> par port (en kt) .....	19
Figure 8 : Emissions de particules par type de transport maritime (en t).....	20
Figure 9: Emission de de particules par ports (en t).....	20
Figure 10: Emissions de polluants par type de transport maritime (en t).....	20
Figure 11 : Emissions de polluants par port (en t).....	20
Figure 12 : Répartition des consommations énergétiques 2010 par activité sur la communauté d'agglomération du Boulonnais .....	21
Figure 13 : Consommations du secteur maritime sur le port de Boulogne .....	22
Figure 14 : Emissions de particules du secteur maritime sur le port de Boulogne .....	24
Figure 15 : Emissions de polluants du secteur maritime sur le port de Boulogne .....	25
Figure 16: Répartition des consommations énergétiques 2010 par activité sur la communauté d'agglomération du Calaisis .....	26
Figure 17 : Consommation du secteur maritime sur le port de Calais .....	26
Figure 18 : Emissions de particules du secteur maritime sur le port de Calais .....	28
Figure 19 : Emissions de polluants du secteur maritime sur le port de Calais .....	29
Figure 20 : Répartition des consommations d'énergie 2010 par activité sur la communauté urbaine de Dunkerque .....	30
Figure 21 : Consommation énergétique estimée pour le secteur maritime sur le GPMD .....	31
Figure 22 : Emissions de particules du secteur maritime sur le GPMD .....	33
Figure 23 : Emissions de polluants du secteur maritime sur le GPMD .....	34
Figure 24 : Situation du Cap Gris-Nez dans l'espace Manche Mer-du-Nord.....	37
Figure 25 : Localisation du Cap Gris-Nez par rapport aux villes les plus proches en région Nord-Pas-de-Calais (a) et positionnement du site de mesure (b) .....	38
Figure 26 : Photos du DA80 (gauche) et du MP101M (droite).....	38
Figure 27 : Cumul de précipitations et températures moyennes sur le littoral NPdC pour l'année 2013 .....	41
Figure 28 : Rose des vents au Cap Gris-Nez pour l'année 2013.....	42
Figure 29 : Evolution des concentrations moyennes régionales depuis 2000 (d'après atmo, 2013)... ..	43
Figure 30 : Stations de mesures régionales retenues pour la comparaison des concentrations en PM <sub>10</sub> .....	43
Figure 31 : Evolution de la concentration en PM <sub>10</sub> au CGN et sur 5 stations atmo NPdC au cours de l'année 2013 - Les traits orange et en rouge sous les courbes représentent les périodes de dépassement des seuils d'information et de recommandation et du seuil d'alerte, respectivement. ...	44
Figure 32 : Episodes de pollution au cours de l'année 2013 en Région Nord-Pas-de-Calais (source : rapport annuel d'activité atmo Nord-Pas-de-Calais, 2013) .....	45
Figure 33 : Rose de concentration (µg.m <sup>-3</sup> ) en PM <sub>10</sub> au Cap Gris-Nez pour l'année 2013.....	46
Figure 34 : Répartition des PM <sub>10</sub> par type d'aérosol pour l'année 2013 au Cap Gris-Nez .....	49
Figure 35 : Comparaison de la concentration des différents groupes d'espèces chimiques (µg.m <sup>-3</sup> ) au Cap Gris-Nez avec d'autres sites.....	50
Figure 36 : Répartition des espèces chimiques des PM <sub>10</sub> pour chaque trimestre de l'année 2013 au Cap Gris-Nez.....	51
Figure 37 : Comparaison des concentrations en éléments traces au Cap Gris-Nez avec celles observées en différents sites nationaux .....	52
Figure 38 : Concentrations des espèces chimiques au Cap Gris-Nez, pour l'année 2013, pour les épisodes de basses teneurs (<15µg.m <sup>-3</sup> ), hautes teneurs (>50µg.m <sup>-3</sup> ) - Comparaison avec la concentration moyenne .....	53
Figure 39 : Répartition des différents groupes d'espèces chimiques au Cap Gris-Nez, pour l'année 2013, pour les épisodes de basses teneurs (>15µg.m <sup>-3</sup> ), hautes teneurs (>50µg.m <sup>-3</sup> ) - Comparaison avec la répartition moyenne .....	54
Figure 40 : Rétrotrajectoires de masse d'air (72h) au Cap Gris Nez, pour les 48h précédant les épisodes de concentrations élevées des 20 et 23 janvier 2013.....	55
Figure 41 : Rétrotrajectoires de masse d'air (72h) au Cap Gris Nez, pour les 48h précédant les épisodes de concentrations élevées des 13, 26 février et 8 mars 2013 .....	56

Figure 42 : Rétrotrajectoires de masse d'air (72h) au Cap Gris Nez, pour les 48h précédant les épisodes de concentrations élevées des 20 mars et 10 avril 2013 .....	57
Figure 43 : Rétrotrajectoires de masse d'air (72h) au Cap Gris-Nez, pour les 48h précédant l'épisode du 20 juin 2013 .....	57
Figure 44 : Rétrotrajectoires de masse d'air (72h) au Cap Gris-Nez, pour les 48h précédant l'épisode des 23 Août et 4 Septembre 2013.....	58
Figure 45 : Rétrotrajectoires de masse d'air (72h) au Cap Gris-Nez, pour les 48h précédant l'épisode du 25 septembre 2013.....	59
Figure 46 : Rétrotrajectoires de masse d'air (72h) au Cap Gris-Nez, pour les 48h précédant les épisodes des 28/11, 3/12 et 12/12/2013 .....	60
Figure 47 : Position du site de mesures à Calais (en bleu clair, la Mer du Nord, en bleu foncé, le port et le trajet des ferries, en jaune, la zone industrielle, en rouge, les autoroutes) .....	62
Figure 48 : Localisation de la station de mesure dans le port de Calais.....	63
Figure 49 : Evolution des concentrations journalières de PM <sub>10</sub> , NO <sub>x</sub> et SO <sub>2</sub> au Cap Gris-Nez et à Calais entre le 29 janvier et le 21 avril 2014 .....	64
Figure 50 : Roses de concentration en PM <sub>10</sub> , NO <sub>2</sub> , NO et SO <sub>2</sub> au Cap Gris-Nez et à Calais pour la période du 29 janvier au 21 avril 2014 .....	66
Figure 51 : Evolution des concentrations en SO <sub>2</sub> et NO <sub>2</sub> , PM <sub>10</sub> et de la direction de vent entre le 17 avril à 16h30 et le 18 avril à 3h45 sur le site du port de Calais.....	68
Figure 52 : Répartition granulométrique en nombre des PM le 17 avril à 17h (1), à 23h30 (2) et le 18 avril à 0h15 (3).....	69
Figure 53 : Impact portuaire et urbain (%) calculé sur le site de Calais (référence Cap Gris-Nez) entre le 29 janvier et le 21 avril 2014.....	72
Figure 54 : Roses de concentration des espèces NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> , SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> , NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> , OC et EC et du ratio OC/EC à Calais entre le 29 janvier et le 21 avril 2014 (ng.m <sup>-3</sup> ).....	73
Figure 55 : Roses de concentration des éléments Ni, V, Co, La, Al, Ti, Mn, Cu et Fe à Calais entre le 29 janvier et le 21 avril 2014 (ng.m <sup>-3</sup> ) .....	74
Figure 56 : Classification des méthodes d'identification de sources en fonction des connaissances nécessaires a priori (d'après (Viana et al., 2008)).....	76
Figure 57 : Données d'entrée et de sortie du modèle CW-NMF (X correspond aux concentrations dans les échantillons, F <sub>init</sub> est la matrice d'initialisation, F est la matrice de profils de source et G, la matrice de contributions) .....	78
Figure 58 : Profils obtenus dans les configurations à 8 (rouge), 9 (vert) et 10 (gris) sources .....	80
Figure 59 : Contributions moyennes de chaque profil par élément pour le Cap Gris-Nez en 2013 .....	82
Figure 60 : Contributions moyennes de chaque profil au Cap Gris-Nez en 2013 en considérant uniquement les échantillons 1 jour sur 3 .....	83
Figure 61 : Contributions relatives des 10 sources pour chaque trimestre 2013 au Cap Gris-Nez (1j/3) .....	84
Figure 62 : Répartition moyenne des contributions de chaque profil au cours des jours de dépassement au Cap Gris-Nez en 2013.....	85
Figure 63 : Contributions moyennes de chaque profil au Cap Gris-Nez entre le 29 janvier et le 17 avril 2014 (données 1 jour/3) .....	86
Figure 64 : Contributions moyennes de chaque profil à Calais entre le 29 janvier et le 17 avril 2014 (données 1 jour/3) .....	86
Figure 65 : Contribution de source en fonction des directions de vent au Cap Gris-Nez en 2013 .....	87
Figure 66 : Domaines MM5 45, 15, 5 km .....	90
Figure 67 : Organisation de la gestion des émissions .....	91
Figure 68 : Domaines GN15 et ESM sur la France, et domaine GN15 sur la région .....	92
Figure 69 : Domaines AWM et AFM sur la France et l'Europe, et domaine AFM sur la région.....	94

## Liste des tableaux

Tableau 1 : Nombre de mouvements de bateaux estimés sur les années d'inventaire et consommations calculées associées .....	22
Tableau 2 : Variation des consommations énergétiques du GPMD entre 2005 et 2008 .....	31
Tableau 3: Variation des consommations énergétiques du GPMD entre 2008 et 2010 .....	32
Tableau 4 : Données annuelles concernant le trafic sur le GPMD .....	32
Tableau 5 : Synthèse de l'échantillonnage réalisé au Cap Gris-Nez sur l'année 2013 .....	39
Tableau 6 : Conditions d'analyse de OC et EC par méthode thermo-optique .....	40
Tableau 7 : Moyennes, minimum et maximum annuels des concentrations en PM <sub>10</sub> au Cap Gris-Nez et au niveau de 5 stations du réseau atmo NPdC .....	44
Tableau 8 : Concentrations moyennes (arithmétiques et géométriques), médianes, écart-types ( $\mu\text{g.m}^{-3}$ ) et contributions moyennes (%) des espèces chimiques dans les PM <sub>10</sub> collectées 1j/3 au CGN en 2013 (122 échantillons) ; [PM <sub>10</sub> ]moy = 24,2 $\mu\text{g.m}^{-3}$ .....	47
Tableau 9 : Moyennes des concentrations en PM <sub>10</sub> , NO <sub>2</sub> , NO et SO <sub>2</sub> au Cap Gris-Nez et à Calais entre le 29 janvier et le 21 avril 2014 ( $\mu\text{g.m}^{-3}$ ) .....	63
Tableau 10 : Concentrations moyennes des espèces dans les PM <sub>10</sub> collectées au Cap Gris-Nez (CGN) et à Calais entre le 29 janvier et le 21 avril 2014 .....	71
Tableau 11 : Pentas et coefficients de corrélation ( $R^2$ ) entre données reconstruites et données mesurées, en considérant 8, 9, 10 sources dans la procédure CW-NMF .....	81

## Introduction

Cette contribution s'inscrit dans le cadre de la convention "projet ECUME" établie entre la DREAL Nord-Pas-de-Calais et l'Université du Littoral Côte d'Opale (ULCO), en partenariat avec atmo Nord-Pas-de-Calais (atmo NPdC) et l'Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques (INERIS).

L'étude représente l'une des actions inscrites dans le cadre du Plan de Protection de l'Atmosphère de la Région Nord Pas de Calais dans le volet "études : mieux connaître pour mieux maîtriser". Elle porte sur une amélioration des connaissances sur la qualité de l'air et traite en particulier des niveaux de concentration, de la composition chimique et de l'origine des particules PM<sub>10</sub> sur le littoral de la Région.

Outre l'inventaire des émissions dans les ports, le projet comporte une démarche expérimentale, incluant de la mesure et de l'analyse chimique de particules, et un travail de modélisation, pour répondre à l'objectif d'identification des sources des PM<sub>10</sub> en Région Nord - Pas-de-Calais. Menée sur le littoral, l'étude intègre un suivi de l'impact des sels marins en suspension dans l'air et d'autre part, celui des émissions liées au trafic maritime en Manche-Mer du Nord. Cette étude se veut en cohérence et complémentaire avec les actions engagées à l'échelle nationale dans le cadre du programme CARA. Dans ce contexte, il est proposé d'étudier deux sites localisés sur la façade littorale de la Région Nord-Pas-de-Calais et de comparer ces observations avec celles réalisées au niveau des stations atmo et du site CARA implanté en Région.

L'étude comprend trois volets :

- volet 1 : établir un inventaire des émissions liées au mouvement des navires dans les ports du littoral : Dunkerque, Calais et Boulogne-sur-Mer ;
- volet 2 : réaliser une campagne de mesure de concentration et d'échantillonnage de particules PM<sub>10</sub> et déterminer leur composition chimique ;
- volet 3 : exploiter les données de composition chimique et utiliser des méthodes de modélisation en vue d'identifier les sources de particules et évaluer leur contribution sur les niveaux de concentration de PM<sub>10</sub>.

# 1. Inventaire des émissions maritimes en Nord - Pas-de-Calais

**Auteurs :** Nathalie Pujol-Söhne & Sandra Vermeesch

Les émissions du secteur maritime ont pu être estimées pour la première fois en région dans le cadre du projet ECUME. Ce secteur comprend uniquement les émissions liées aux consommations de carburant des navires au niveau des ports (Les bases de données qui auraient permis d'estimer les émissions du trafic dans la Manche et la Mer du Nord ne se sont pas révélées exploitables).

Les estimations ont été faites pour les années 2005, 2008 et 2010. Les données ont été intégrées aux deux années d'inventaires disponibles en ligne (2008 et 2010 - méthodologie M2012\_V2) sur <http://myemissair.atmo-npdc2.fr/>. La méthodologie concernant l'ensemble des secteurs de l'inventaire des émissions du Nord – Pas-de-Calais est disponible sur [http://www.atmo-npdc.fr/joomlatools-files/docman-files/Autre/rapport\\_methodo\\_inventaire\\_061015.pdf](http://www.atmo-npdc.fr/joomlatools-files/docman-files/Autre/rapport_methodo_inventaire_061015.pdf). Les fiches générales<sup>1</sup> incluant les répartitions pour les 6 principaux secteurs d'activité sont disponibles sur le site web d'atmo Nord – Pas-de-Calais <http://www.atmo-npdc.fr/emissions-regionales/recherche-personnalisee/effectuer-une-recherche.html>

## Bibliographie :

Différents inventaires sur les émissions du secteur maritime ont été réalisés à ce jour en France et dans d'autres pays européens. Ils ont porté principalement sur les émissions de CO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, SO<sub>2</sub>, COVNM et particules.

### *France*

- Etude énergétique et environnementale du passage portuaire, rapport final, 26 novembre 2010
- Hinterland des ports maritimes (tome 1) : Modélisation des trafics des ports français, n°108 juillet 2014, COMMISSARIAT GÉNÉRAL AU DÉVELOPPEMENT DURABLE
- L'efficacité énergétique et environnementale du transport maritime, ADEME, 2009

### *Normandie*

- Inventaire des émissions en Haute-Normandie actualisation des émissions par le trafic maritime, Air Normand, 2008
- Inventaire territorial des émissions de gaz à effet de serre, de polluants atmosphériques et des consommations d'énergie de la Communauté d'agglomération Rouen-Elbeuf-Austreberthe, première et seconde partie Air Normand, 2012
- Inventaire territorial des émissions de gaz à effet de serre, de polluants atmosphériques et des consommations d'énergie de la Communauté d'agglomération de Dieppe Maritime, première et seconde partie Air Normand, 2012

---

<sup>1</sup> Ces fiches générales, présentées en COPIL ne sont pas incluses dans le document car disponible librement sur le site web

- Rapport d'étude E08\_12\_09 Inventaire des émissions en Haute-Normandie Calcul des émissions des engins de manutention portuaire, Port autonome du Havre, Air Normand, 2008
- Etat des lieux Climat-Air-Energie de la Haute-Normandie Inventaire énergétique et des émissions de gaz à effet de serre et de polluants atmosphériques – secteurs des transports, ed 2011

### **PACA**

- Impact énergétique des ports et aéroports de la région Provence-Alpes-Côte d'Azur, Service Energie Climat Air - DDSC-SECA, 2012
- APICE, Synthèse Marseille, 2013

### **Belgique**

- Lozingen in de lucht 2000-2013, VMM, 2014
- Emissions from international shipping in the Belgian Part of the North Sea and the Belgian seaports. De Meyer P., Maes F., Volckaert A., Atmospheric Environment, 2008, 42, 196-206.

### **Royaume-Uni**

- Lozingen in de lucht 2000-2013, VMM, 2014

### **Pays-Bas et Région OSPAR II**

- Sea shipping emissions 2010: Netherlands Continental Shelf, port areas and OSPAR region II, Final report, February 9, 2012, MARIN.

### **Sources utilisées pour la réalisation de l'inventaire régional :**

- Guide méthodologique PCIT
- CITEPA : OMINEA 2013
- Air Normand : Inventaire des Emissions en Haute-Normandie
- MEET
- ENTEC : Ship emission inventory 2002 et 2010
- Site internet : <http://www.shipspotting.com>
- Lloyd's
- Forum internet : [moteursdebateaux.lefofo.com](http://moteursdebateaux.lefofo.com)
- Ifremer : Rectangle statistiques 30F1
- Port de Calais : données 2005-2008-2010
- Port de Boulogne-sur-Mer
- Grand port maritime de Dunkerque : données d'escales 2010

#### **Données source :**

Les données plus détaillées pour le secteur maritime (uniquement) sont disponibles dans le fichier excel joint : Maritime\_from\_emi\_xml\_A2005\_2010\_M2012\_V2.xlsx. Ce fichier contient également les données de l'année 2005 (en sus de 2008 et 2010), les données d'énergie, le détail par usage plus avancé (type de bateaux), par brin et poste à quai pour chacun des trois ports. Ces données incluent la correction de l'usage (plaisance marchandises) pour le port de Calais.

## 1.1. Méthodologie détaillée de l'inventaire maritime (MARITF)

### 1.1.1. Périmètre du secteur

Les activités émettrices considérées dans le secteur maritime sont :

- Les bateaux de marchandises,
- Les bateaux de passagers,
- Les bateaux de pêche.

SECTEN 1	SECTEN2 pris en compte	SNAP	Nom SNAP
Transports autres que routier (TR_AUT)	Transport maritime selon la définition CEE-NU (partie nationale) (MARITF)	080402	Trafic maritime national dans la zone EMEP
		080403	Pêche nationale
		080404	Trafic maritime international (soutes internationales)

### 1.1.2. Méthodologie générale

Elle est définie et disponible de manière détaillée dans le guide PCIT (7 novembre 2012) et résumée dans le tableau p.50.

Le secteur maritime en Nord - Pas-de-Calais est représenté par trois ports principaux aux vocations distinctes :

- Dunkerque (commerce),
- Calais (transport de passagers),
- Boulogne-sur-Mer (pêche).

Les émissions sont estimées à partir :

- du nombre et du type de bateaux ayant transité dans chaque port pour une année choisie,
- de leur trajectoire,
- ainsi que du type et de la durée des phases de navigation :
  - hotelling = à quai : source d'émissions ponctuelles
  - manoeuvring = en manœuvre : source d'émissions ponctuelles
  - slow cruise = en navigation, croisière : source d'émissions linéaires
  - waiting = en attente : sources d'émissions ponctuelles

Ces éléments sont spatialisés pour définir les quais, les points d'ancrage présents et la trajectoire de navigation dans le port.

Le type de bateaux et la durée des phases combinés aux facteurs de consommation (Air Normand(2008), du projet MEET (1998) et de l'ENTEC(2002)) (2010) permettent d'estimer les consommations du secteur, puis en y appliquant les facteurs d'émissions (OMINEA), d'estimer les émissions par polluant.

### 1.1.3. Ajustements régionaux

La méthodologie générale est ajustée à chacun des trois ports, car elle est dépendante des données initialement obtenues et de la fonction propre de chacun de ces ports. Les ajustements portent sur les catégorisations de bateaux et les temps de manœuvre.

Il a fallu également avancer des hypothèses pour connaître le nombre de mouvements des bateaux de pêche et de plaisance, ainsi que leur consommation.

L'appartenance de la Manche à la zone soumise à la directive MARPOL (POLLution MARine des navires), a été prise en compte dans le choix des facteurs d'émission du SO<sub>2</sub>.

#### 1.1.4. Détails par port

##### o Boulogne

Le Port de Boulogne-sur-Mer est un port à la fois de commerce, de voyageurs, de plaisance et de pêche. Sa principale activité repose sur les activités de pêche, lesquelles ont fait la renommée de ce port : c'est le 1<sup>er</sup> port de pêche français.

Les données, obtenues directement auprès du Port de Boulogne-sur-Mer, contiennent, entre autres, par année, le nombre de mouvements (entrée ou sortie des navires dans le port) totaux effectués par l'ensemble des navires pour la pêche, le commerce et le transport de voyageurs.

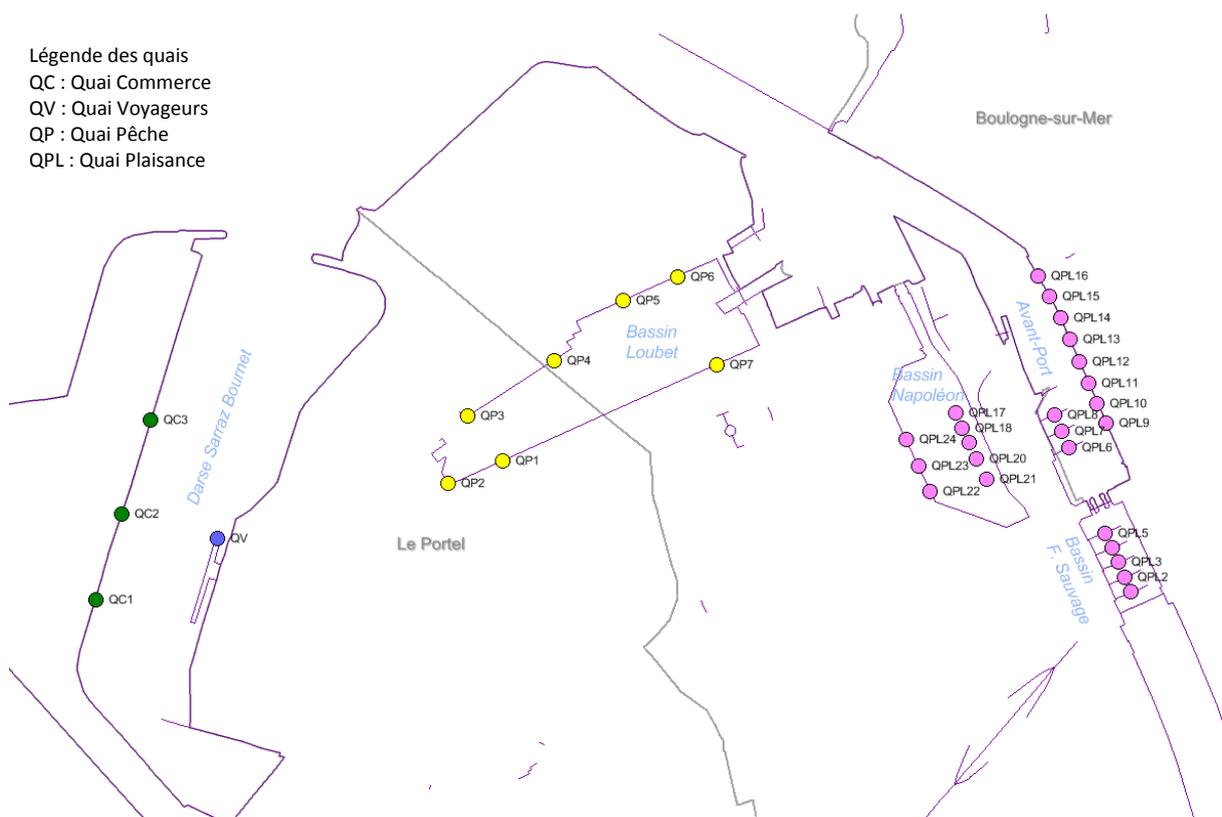


Figure 1 : Schématisation des points d'émissions ponctuelles dans le Port de Boulogne-sur-Mer

#### Les types de navires considérés sont :

- « fishing » pour l'activité pêche
- « liquid bulk » pour l'activité commerce
- « general cargo » pour l'activité commerce
- « passanger/Ro-Ro/Cargo » pour l'activité transport de voyageurs

#### Hypothèses :

- En raison d'une grande diversité des bateaux pour la pêche et la plaisance, une répartition par catégorie de bateau a été effectuée (voir détails ci-après)
- Les bateaux de l'activité pêche fonctionnent tous au gasoil, ceux de l'activité plaisance fonctionnent à l'essence, et ceux des activités commerce et transport de voyageurs fonctionnent au diesel marine léger.

- Chaque bassin étant défini par une activité spécifique et connue (cf. figure 2), les quais ont été répartis via l'observation d'images satellites (Google Earth).
- Parmi les facteurs de consommations proposés par l'ENTEC, aucun type de navire ne correspondait aux navires de plaisance. Les facteurs de consommations pour les bateaux de plaisance, ont été définis via un forum utilisé par les navigateurs. Le document issu du forum répertorie différents bateaux de plaisance, reprenant entre autres les consommations de carburant selon différents régimes, le type de moteurs, l'année du moteur, etc. Ces données ont été réutilisées pour l'ensemble des calculs effectués pour l'activité de plaisance.
- Les temps de manœuvres sont tirés du document d'Air Normand, intitulé « Inventaire des Emissions en Haute-Normandie ».
- En l'absence d'indication sur le temps d'attente probable des navires au sein du port, les temps de « waiting » n'ont pas été comptabilisés pour ce port dans cet inventaire.
- Pour la plaisance, les escales et nuitées sont mises à jour annuellement. Le nombre de contrats en 2005 est reporté sur 2008 et 2010 (car les chiffres ne sont pas disponibles).

#### Cas de la pêche et de la plaisance :

Les activités de pêche et de plaisance sont définies par un bon nombre de facteurs variables, dont les principaux sont les horaires de marées et la météorologie. Ces facteurs, influençant la temporalisation de l'activité, n'ont pas pu être pris en compte. Au regard du nombre de mouvements totaux, variable selon les années, des hypothèses ont donc dû être établies afin **de répartir un nombre de mouvements pour chaque type de bateaux considéré** (les consommations varient selon les types de bateaux).

Pour la pêche, chiffre « officiel » = Y entrées

Pour chaque année d'étude, **le nombre d'entrées par catégorie de navire sera calculé de manière à ce que les hypothèses établies permettent de retrouver un nombre d'entrées ( $y_t$ ) total proche du nombre « officiel » (Y).**

Quatre catégories de navires sont considérées ( $x_i$  étant le nombre de bateaux):

- **$x_1$  chalutiers et fileyeurs** (moins de 18 mètres) qui partent pendant 12 à 24 heures (soit une moyenne de 18h par sortie), les sorties démarrent le lundi matin et il n'y a pas de sortie le weekend (famille), d'où 2 ou 4 sorties par semaine :  
  
(2 ou 4 sorties) \* (46 à 48 semaines<sup>2</sup>) \* ( $x_1$  navires) =  $y_1$  entrées
- **$x_2$  chalutiers** (12 à 25 mètres) : 2 sorties en mer de 48h par semaine 5h à quai par semaine, d'où 2 sorties par semaine :  
  
(2 sorties) \* (46 à 48 semaines) \* ( $x_2$  navires) =  $y_2$  entrées
- **$x_3$  chalutiers congélateurs** : 30 à 45 jours en mer, soit une moyenne de 37,5 jours en mer. 180 jours partis<sup>3</sup> jusqu'en 2008, 150 jours après 2008, **d'où environ** 5 puis 4 sorties par an : 5 (4) sorties \*  $x_3$  navires =  $y_3$  entrées
- **$x_4$  chalutiers pêche fraîche** : 8 à 12 jours en mer, soit une moyenne de 10 jours en mer. 180 jours partis<sup>1</sup> jusqu'en 2008, 150 jours après 2008, **d'où environ** 18 sorties puis 15 sorties par an : 18 (15) sorties \*  $x_4$  navires =  $y_4$  entrées

Nombre total d'entrées, selon les hypothèses :  $y_1+y_2+y_3+y_4=y_t$

Ecart relatif par rapport au nombre d'entrées « officiel » :  $(Y - y_t)*100/Y = -1,6\% \text{ à } +0,7\%$

Pour la plaisance, chiffres « officiels » =  $nb_n$  nuitées,  $nb_e$  bateaux en escale,  $xx$  contrats à

<sup>2</sup> A noter que les 46 ou 48 semaines (au lieu des 52 annuelles) ont été estimées en considérant une part de maintenance du navire ou de congés/repos des navigateurs (et que donc pendant 4 semaines, le navire est à quai mais à l'arrêt).

<sup>3</sup> Nombre de jours de sortie en mer autorisés

### l'arrière-port, yy contrats à l'avant-port et au bassin Napoléon.

Pour ce secteur, il a été estimé que le nombre de sorties des navires sous contrat pouvait varier selon la catégorie socioprofessionnelle du propriétaire du navire. Ainsi, en 2005, 88% des propriétaires (nouveaux accédant) étaient des travailleurs actifs et 12% étaient des retraités, en 2008 et 2010 les chiffres sont respectivement 86% et 14%. Pour ces deux catégories, il a été considéré que les travailleurs actifs sortaient en mer 2 fois par semaine sur 7 mois de l'année et que les retraités sortaient 2 fois par semaine sur toute l'année.

- **Pour les navires situés à l'Avant-Port et au bassin Napoléon** (lesquels comptent respectivement 130 et 150 anneaux, dont 70 anneaux d'accueil visiteurs à l'Avant-Port) : on considère qu'une escale est égale à une entrée, d'où :  
 $nb_e + xx \text{ contrats} * 56 \text{ sorties} * 88\% (86\%) \text{ de travailleurs actifs} + xx \text{ contrats} * 104 \text{ sorties} * 12\% (14\%) \text{ de retraités}$
- **Pour les navires situés à l'Arrière-Port** (lequel compte 190 anneaux selon les données du site internet, normalement actualisé) :  $yy \text{ contrats} * 56 \text{ sorties} * 88\% (86\%) \text{ de travailleurs actifs} + yy \text{ contrats} * 104 \text{ sorties} * 12\% (14\%) \text{ de retraités}$

### ○ Calais

Le Port de Calais est un port de voyageurs dont l'activité principale repose sur la liaison Calais-Douvres, parcourue par les ferries. Il a été le 1<sup>er</sup> port français de voyageur (2011). La pêche et la plaisance sont négligées pour cet inventaire.

Les données, obtenues directement auprès du Port de Calais contiennent, par année :

- le nom de chaque navire ayant transité par le port,
- le numéro Lloyd's qui leur est affecté,
- le nombre et le type de mouvement effectué.

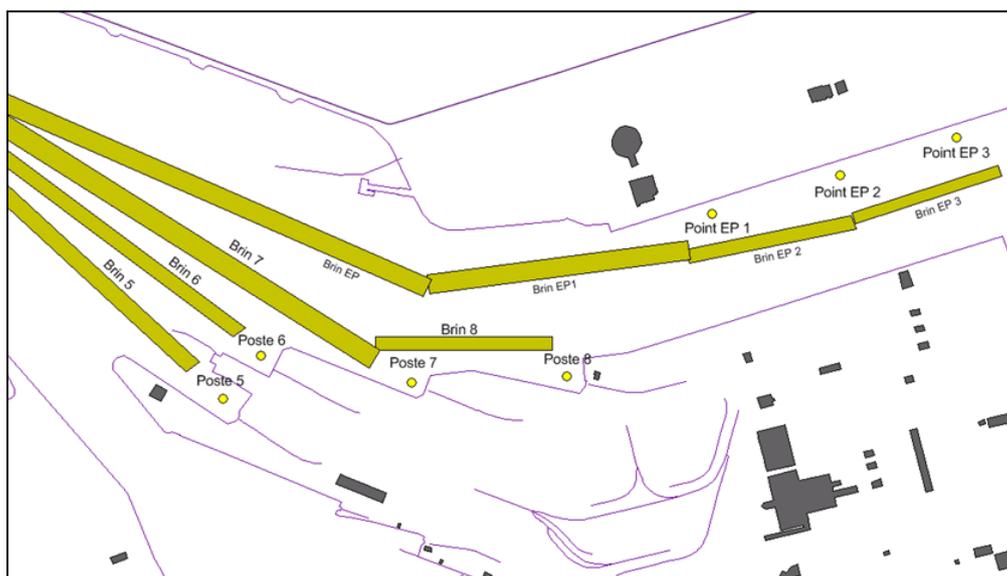


Figure 2 : Schématisation des trajets effectués par les navires dans le Port de Calais

### **Les douze types de navires considérés sont :**

solid bulk	sail ships
tugs	fishing
other ship	liquid bulk
general cargo	container
passenger/Ro-Ro/Cargo	passenger
high speed ferry	inland cargo

## Hypothèses :

- Le type de navire est attribué en fonction des informations recueillies à partir de leur numéro de Lloyd's
- Le diesel marine léger est considéré comme l'unique carburant utilisé par l'ensemble des navires et sur l'ensemble des manœuvres au sein du port (grand nombre des « autres bateaux » fonctionnant au diesel marine léger + obligation des ferries de passer au diesel marine léger à quai – moteurs auxiliaires).
- Les postes 5, 6, 7 et 8 sont réservés aux ferries (images satellites (Google Earth) et observation terrain : existence de rampe d'accès utilisée pour la montée/descente des véhicules dans les ferries), les autres navires (nettement minoritaires) vont aux points EP1, EP2 et EP3 (cf. figure).
- Les temps de manœuvres sont tirés du document d'Air Normand, intitulé « Inventaire des Emissions en Haute-Normandie ».

### ○ Dunkerque

Dunkerque est avant tout un port de commerce. C'est le 3<sup>e</sup> port français (surtout réputé pour le grand vrac) et le 7<sup>e</sup> **du Range nord européen qui s'étend du Havre à Hambourg**. La pêche et la plaisance sont négligées dans cet inventaire.

Les données recueillies auprès du Port de Dunkerque concernent les activités (escales des navires dans le port). Elles contiennent, pour l'année 2010, le nom de chaque navire ayant transité par le port, son type (Vraquier solide, liquide, porte container, etc), ainsi que le poste à quai d'arrivée et d'éventuels changements de quais dans le port.



Figure 3 : Spatialisation des brins d'accès et des quais

## Les types de navires considérés sont :

Les types de navires fournis par la capitainerie du port de Dunkerque sont très largement détaillés, plus que dans les calculs de l'ENTEC, les navires ont été rassemblés en 12 groupes principaux :

solid bulk	sail ships
tugs	fishing
other ship	liquid bulk
general cargo	container
passenger/Ro-Ro/Cargo	passenger
high speed ferry	inland cargo

## Hypothèses :

- Le diesel marine léger est considéré comme l'unique carburant utilisé par l'ensemble des

navires (grand nombre de navires fonctionnant au le diesel marine léger (source ENTEC dans la zone SECA)).

- Les postes à quais du port ont été regroupés en plusieurs quais principaux ayant chacun un brin d'accès et de manœuvre.
- L'emplacement des postes à quais a été déterminé en suivant les navires présents en temps réels dans le port (site marinetraffic → visualisation de l'emplacement de chaque navire ainsi que son parcours pour accéder à son quai) et en vérifiant leur poste de stationnement sur le site du port de Dunkerque.
- Attribution d'une consommation supplémentaire (ajoutée à leurs émissions linéaires sur leur brin d'accès) pour les navires ayant effectué un changement de poste à quai durant leur escale.
- Les consommations lors de l'attente portuaire sont considérées comme linéaires (le navire n'attend pas immobile mais à approche du port allure réduite pendant environ 1h) et sont affectées sur les brins d'attente situés à l'extérieur des bassins.
- Les temps de manœuvres sont ceux utilisés par l'ENTEC sauf pour les temps d'attentes portuaires qui sont fournis sur le site internet du port de Dunkerque
- Trafics détaillés disponibles pour 2010 uniquement → reconstitution des trafics 2005 et 2008 à l'aide de ratios établis à partir des bilans annuels du Port de Dunkerque (portant sur les tonnages, les conteneurs et les passagers transportés).

#### 1.1.5. Bilan des données utilisées

<u>Activité</u>	<u>Donnée source</u>	<u>Usage dans l'inventaire</u>
<u>Les bateaux de marchandises</u>	Nombre de bateau par catégorie par port (année)	Création du parc de bateaux par catégorie et calcul de leurs consommations et émissions
	Facteur de consommation par phase et type de bateau	
<u>Les bateaux de passagers</u>	Nombre de bateau par catégorie par port (année)	Création du parc de bateaux par catégorie et calcul de leurs consommations et émissions
	Facteur de consommation par phase et type de bateau	
<u>La pêche</u>	Nombre de bateau par catégorie sur Boulogne-sur-Mer (année)	Création du parc de bateaux par catégorie et calcul de leurs consommations et émissions
	Facteur de consommation par phase et type de bateau	
<u>Plaisance</u>	Nombre de bateau par catégorie sur Boulogne-sur-Mer (année)	Création du parc de bateaux par catégorie et calcul de leurs consommations et émissions
	Facteur de consommation par phase et type de bateau	

## 1.2. Résultats

Pour l'ensemble des secteurs, les données d'émission à l'échelle de l'EPCI sont accessibles librement par sous-secteurs d'activité et usages simplifiés (fret/passagers/plaisance<sup>4</sup>/pêche) sur <http://myemissair.atmo-npdc2.fr/> pour les années 2008 et 2010.

Les résultats de l'inventaire avec la méthodologie M2012 sont tout d'abord présentés pour la région puis sur les EPCI accueillant les ports.

Pour alléger le document, les graphiques concernant le CO<sub>2</sub>, n'apportant pas d'information nouvelle comme on pourra le voir sur les résultats globaux, ne sont pas déclinés dans les sous parties dédiée à chaque port. Seuls les graphiques concernant la consommation d'énergie, les particules et leurs précurseurs sont conservés.

### 1.2.1. Evolution pluriannuelle globale (région)

- Energie

- Part du maritime

Le secteur maritime représente 0,4% des consommations<sup>5</sup> régionales pour l'année 2010 dans l'inventaire. La même année, sur la région, sa part de consommation est de 2,2% dans le transport<sup>6</sup> ; elle est quasi identique à celle du ferroviaire. Les consommations des transports sont quasi exclusivement dues au transport routier (95%), notamment les poids lourds (29%) et les véhicules utilitaires (17%). Dans le périmètre plus restreint des transports non routiers, la part des consommations du maritime au niveau régional en 2010 est de 45%, elle dépasse celle du ferroviaire (38%).

En 2010, sur les communautés urbaines et d'agglomération accueillant les ports, le secteur maritime représente 20,4% des consommations énergétiques du transport et 95,9% des consommations énergétiques des « autres transports<sup>7</sup> ». L'influence du secteur maritime dans le transport s'accroît donc dès que l'on restreint l'échelle géographique.

- Classement par type d'activité portuaire

Le fret est le principal consommateur d'énergie, tous ports confondus sur la région (Figure 4). Les consommations énergétiques globales du secteur sont relativement stables entre 2005 et 2008, avec une légère hausse des consommations des bateaux de passagers compensée par une diminution du fret. Ces consommations sont franchement à la baisse entre 2008 et 2010, notamment en raison d'une baisse importante de celles liées au fret.

---

<sup>4</sup> Tant que la base sera en ...\_M2012\_V2, la correction concernant le trafic de marchandise (identifié en plaisance) de Calais n'aura pas été prise en compte dans MyEmissair. Ce sera le cas lors du passage en V3

<sup>5</sup> Les consommations sont entendues toutes énergies, électricité incluse

<sup>6</sup> Transport = transport routier et non routier

<sup>7</sup> Les autres transports prennent en compte les transports ferroviaire, maritime, fluvial, aérien

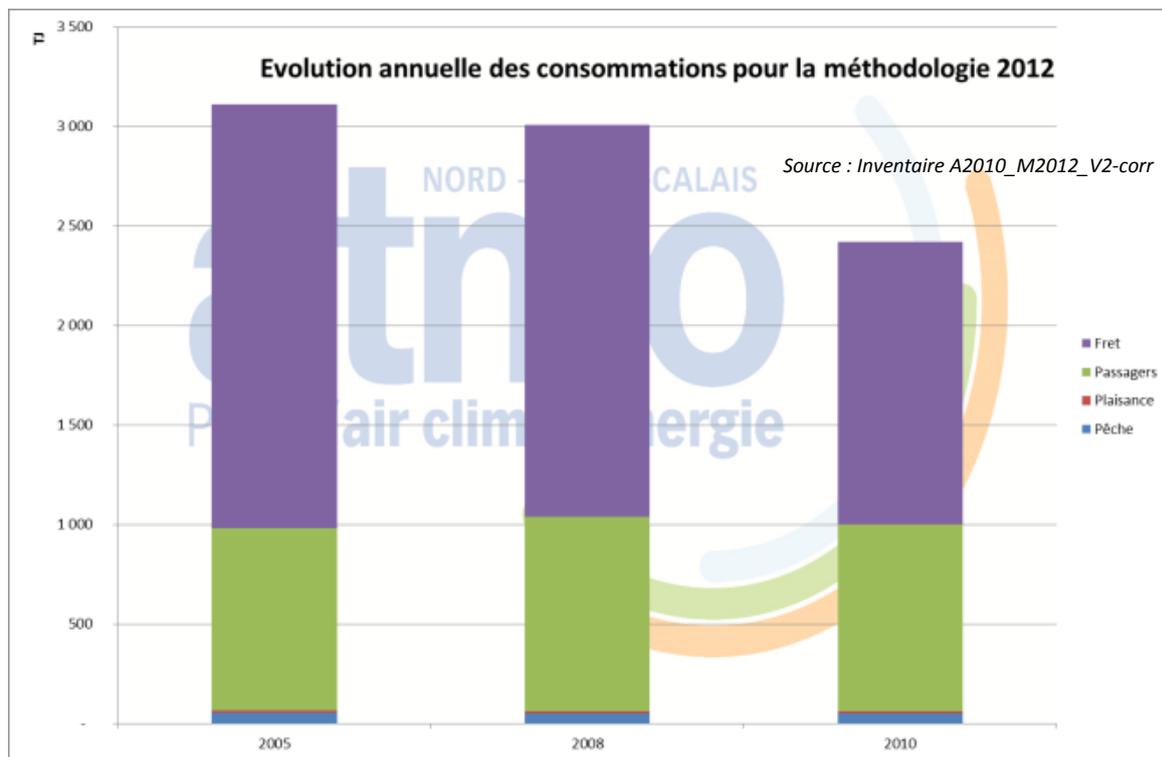


Figure 4 : Energie par type de transport maritime (en Tj)

- [Classement par port](#)

Les consommations par port sont cohérentes avec la position de chacun des ports dans le classement national.

Le GPMD (Grand Port Maritime de Dunkerque) est le port pour lequel sont estimées les plus importantes consommations énergétiques sur le secteur maritime de la région (Figure 5). Cela tient au nombre de mouvements, au type de bateaux et à la taille du port. En outre, on observe que c'est sur le GPMD que les baisses sont les plus importantes entre 2008 et 2010.

Les consommations du secteur maritime du port de Boulogne sont les plus faibles de la région.

Ces variations de consommations énergétiques sur les 3 années sont directement liées à l'activité des ports : types de navires, nombre de mouvements.

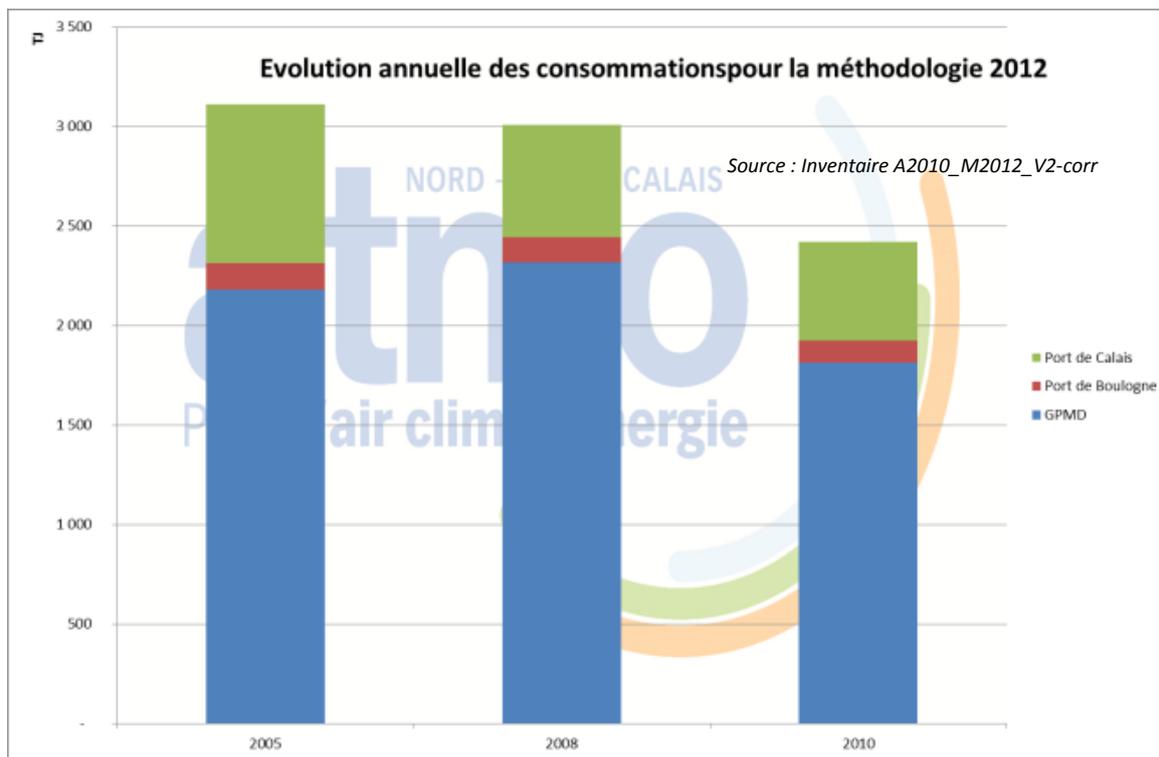


Figure 5 : Energie par port (en Tj)

○ [CO<sub>2</sub>](#)

▪ [Part du maritime](#)

Sur la région, en 2010, le secteur maritime représente 0,3% des émissions de CO<sub>2</sub> directes totales, 2,4% des émissions du transport et 69,6% des émissions des autres transports.

Sur les communautés d'agglomération accueillant les ports, le secteur maritime en 2010 représente 21,7% des émissions du transport, le reste étant quasi exclusivement issu du transport routier. Sur le périmètre restreint aux « autres transports » la contribution du secteur maritime est de 97,3%.

En lien direct avec la nature des consommations énergétiques, les émissions de CO<sub>2</sub> considérées pour le secteur maritime sont uniquement celles issues de la combustion d'énergie fossile.

▪ [Classement par type d'activité portuaire](#)

On observe une hausse des émissions entre 2005 et 2008 en lien avec l'augmentation du trafic de passagers (Figure 6). La baisse entre 2008 et 2010, conséquence directe d'une baisse des consommations du fret, permet d'atteindre des niveaux plus bas que ceux de 2005. Cette baisse des émissions du fret rend majoritaire les émissions des bateaux de passagers en 2010.

▪ [Classement par port](#)

En outre, on observe qu'en 2010 les émissions du GPMD baissent et retrouvent des niveaux comparables à ceux de 2005, et que le Port de Calais voit ses émissions se stabiliser après avoir diminué en 2008 (Figure 7).

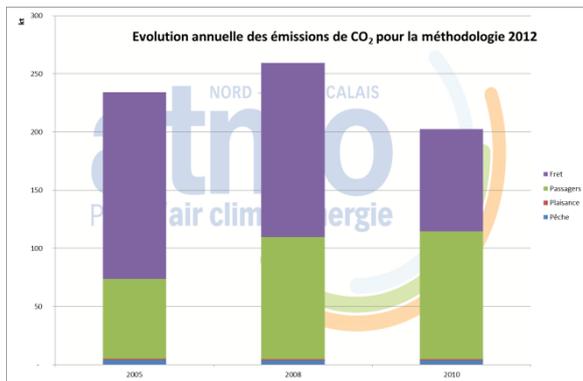


Figure 6 : Emissions de CO<sub>2</sub> par type de transport maritime (en kt)

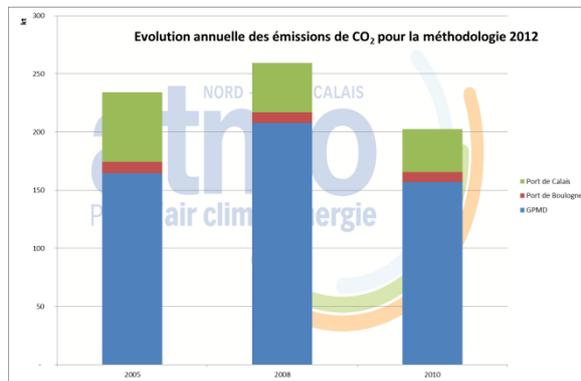


Figure 7 : Emissions de CO<sub>2</sub> par port (en kt)

## o Particules

### ▪ Part du maritime

Sur la région, en 2010, le secteur maritime représente 1,2% des émissions de PM10 totales, 5,9% des émissions du transport (85,4% pour le routier) et 40,5% des émissions des autres transports.

Les particules émises par le secteur maritime dans l'inventaire sont essentiellement composées de PM1, en raison de la nature des émissions prises en compte (combustion).

### ▪ Classement par type d'activité portuaire

Les variations globales des émissions de particules entre 2005 et 2010 sont semblables à celles constatées pour le CO<sub>2</sub> (Figure 8):

- augmentation des émissions des bateaux de passagers entre 2005 et 2008 conduisant à une augmentation des émissions globales
- stabilisation des émissions des bateaux de passagers entre 2008 et 2010 et une diminution importante des émissions du fret en 2010 conduisant à une baisse globale des émissions pour 2010.

### ▪ Classement par port

Les variations des émissions de particules par port sont semblables à celles du CO<sub>2</sub> (Figure 9). Le GPMD est le principal contributeur aux émissions de particules sur la région, loin devant de port de Calais. C'est également celui dont les variations annuelles sont les plus visibles.

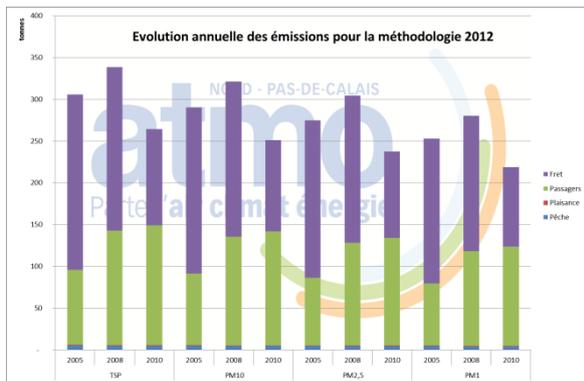


Figure 8 : Emissions de particules par type de transport maritime (en t)

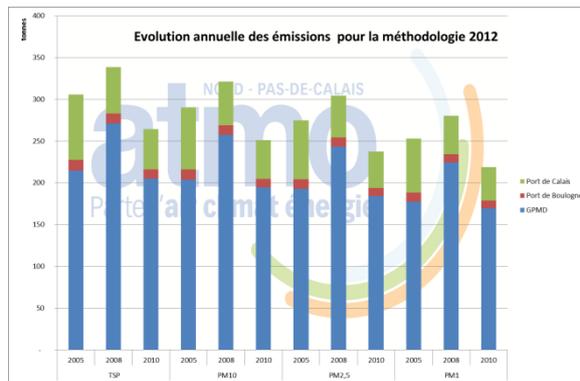


Figure 9 : Emission de de particules par ports (en t)

o [Polluants précurseurs de particules secondaires](#)

Les émissions de NH<sub>3</sub> ne sont pas comptabilisées pour le secteur maritime en raison de l'absence de facteurs d'émission (considéré comme négligeable).

▪ [Part du maritime](#)

Le secteur maritime représente 1,9% des émissions de SO<sub>2</sub>, 4,1% des émissions de NOx et 0,3% des émissions de COVNM sur le total régional pour l'année 2010.

Sur les émissions du transport, en 2010, le maritime représente 93,3% des émissions de SO<sub>2</sub>, 9,0% des émissions de NOx et 4,0% des émissions de COVNM.

Sur le secteur « autres transports », en 2010, le maritime représente 97,0% des émissions de SO<sub>2</sub>, 81,0% des émissions de NOx et 55,2% des émissions de COVNM.

La contribution des émissions de SO<sub>2</sub> des transports aux émissions totales régionales est faible, mais ces émissions sont quasi-exclusivement issues du secteur maritime. Ce constat est notamment lié aux combustibles utilisés pour le maritime qui restaient plus soufrés que ceux utilisés pour les véhicules terrestres. A trafic et navires constants, l'évolution de la réglementation sur le contenu en soufre des carburants pour les navires en Manche Mer-du-Nord conduit à réduire les émissions de SO<sub>2</sub>.

▪ [Classement par type d'activité portuaire et par port](#)

Les variations observées entre 2005 et 2010, les comportements par type de transport et par port sont semblables à celles constatées pour le CO<sub>2</sub> et les particules (Figure 10 et Figure 11).

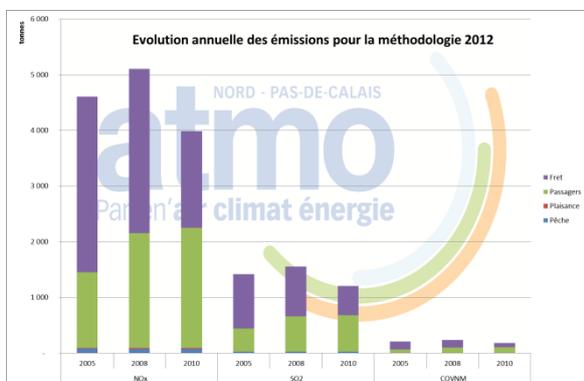


Figure 10: Emissions de polluants par type de transport maritime (en t)

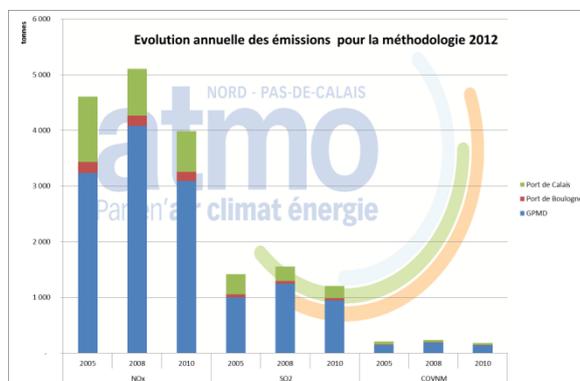


Figure 11 : Emissions de polluants par port (en t)

### 1.2.2. Boulogne

- Energie

- Part du maritime

En 2010, sur la communauté d'agglomération de Boulogne-sur-Mer, la part du maritime dans les consommations totales est de 0,22%. Le transport dans son intégralité en représente 5,1% (Figure 12). La part du maritime dans les consommations du transport est de 4,4%, contre 94,7% pour le routier. Sa part pour les consommations des autres transports est de 82,6%, le ferroviaire complétant le reste.

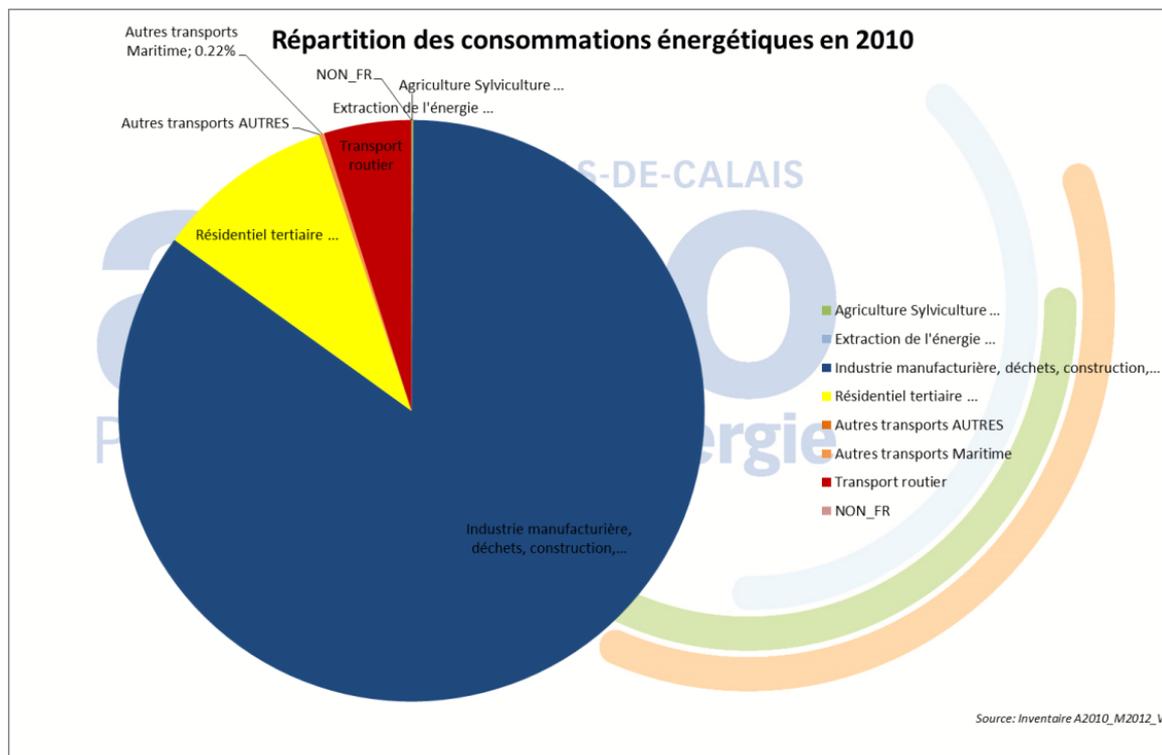


Figure 12 : Répartition des consommations énergétiques 2010 par activité sur la communauté d'agglomération du Boulonnais

- Classement par type d'activité portuaire

Les consommations d'énergie du secteur maritime sur le port de Boulogne-sur-Mer sont principalement liées (ordre décroissant) aux activités de pêche, de transport de passagers et de fret. Les consommations décroissent entre 2005 et 2010 sur la pêche, le transport de passagers et le fret. Le type de bateaux de fret change de manière importante entre 2005 et 2008 (Figure 13).

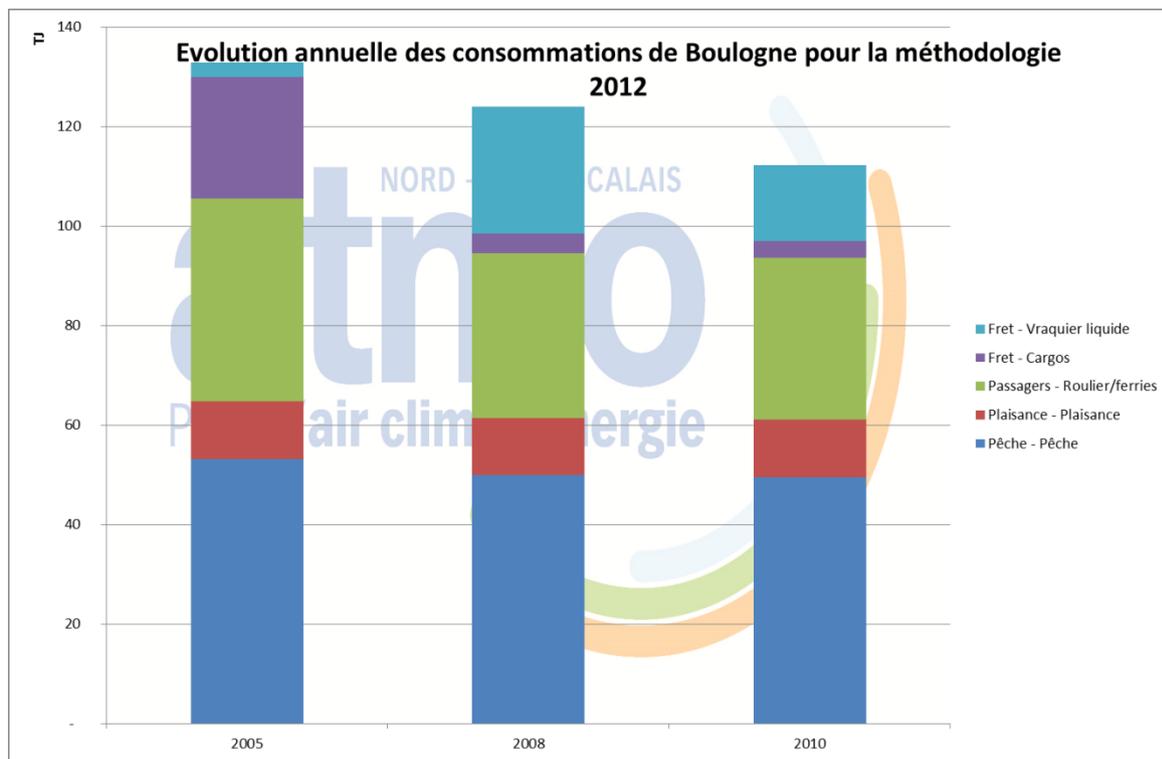


Figure 13 : Consommations du secteur maritime sur le port de Boulogne

Tableau 1 : Nombre de mouvements de bateaux estimés sur les années d'inventaire et consommations calculées associées

Année	Nombre d'entrées activité « pêche »	Consommations activité « pêche » en GJ (linéaires)	Consommations activité « pêche » en GJ (ponctuelles)
2005	18 119	26 487	26 658
2008	16 978	24 910	24 991
2010	16 964	24 799	24 619

Année	Nombre d'entrées activité « Voyageurs »	Consommations activité « Voyageurs » en GJ (linéaires)	Consommations activité « Voyageurs » en GJ (ponctuelles)
2005	1 343	12 139	28 526
2008	1 096	9 906	23 279
2010	1 072	9 689	22 770

Année	Nombre d'entrées activité « Commerce »	Consommations activité « Commerce » en GJ (linéaires)	Consommations activité « Commerce » en GJ (ponctuelles)
2005	206	1 941	25 420
2008	133	2 575	26 831
2010	88	1 639	17 080

<b>Année</b>	<i>Nombre d'entrées activité « Plaisance »</i>	<i>Consommations activité « Plaisance » en GJ (linéaires)</i>	<i>Consommations activité « Plaisance » en GJ (ponctuelles)</i>
<b>2005</b>	27 600	7 462	4 200
<b>2008</b>	26 898	7 719	3 779
<b>2010</b>	27 384	7 859	3 848

Les consommations d'une part, et les évolutions du nombre de mouvements totaux d'autre part, sont différents d'une année à l'autre : l'activité d'un port n'est pas similaire d'une année à l'autre (Tableau 1).

Entre 2005 et 2008, la consommation totale de carburant a augmenté tandis que le nombre de mouvements total a diminué. En 2005, le secteur commerce comptait 10 caboteurs pétroliers et 184 navires : deux types de bateaux dont les consommations diffèrent (selon les facteurs de consommations fournis, un caboteur pétrolier consomme environ le double d'un navire de longueur d'environ 150 m). En 2008, ce même secteur comptait 52 caboteurs pétroliers et seulement 18 navires. Cette différence a donc un impact sur les consommations, en raison des données source de départ.

- [Particules](#)

- [Part du maritime](#)

Sur la communauté de d'agglomération du Boulonnais, en 2010, la part des émissions de PM10 du trafic maritime est de 2,9% des émissions totales, elle est de 11,8% dans le transport (81,8% pour le routier). Cette part des émissions maritime s'élève à 64,7% sur le périmètre restreint au seul secteur « autres transports ».

Ainsi, sur l'agglomération de Boulogne, le trafic maritime est un contributeur secondaire aux émissions de PM<sub>10</sub> totales et pour celles issues du transport.

- [Classement par type d'activité portuaire](#)

Les variations interannuelles des émissions de particules suivent celles des consommations énergétiques (Figure 14). Les répartitions par type de navire correspondent également à celles des consommations.

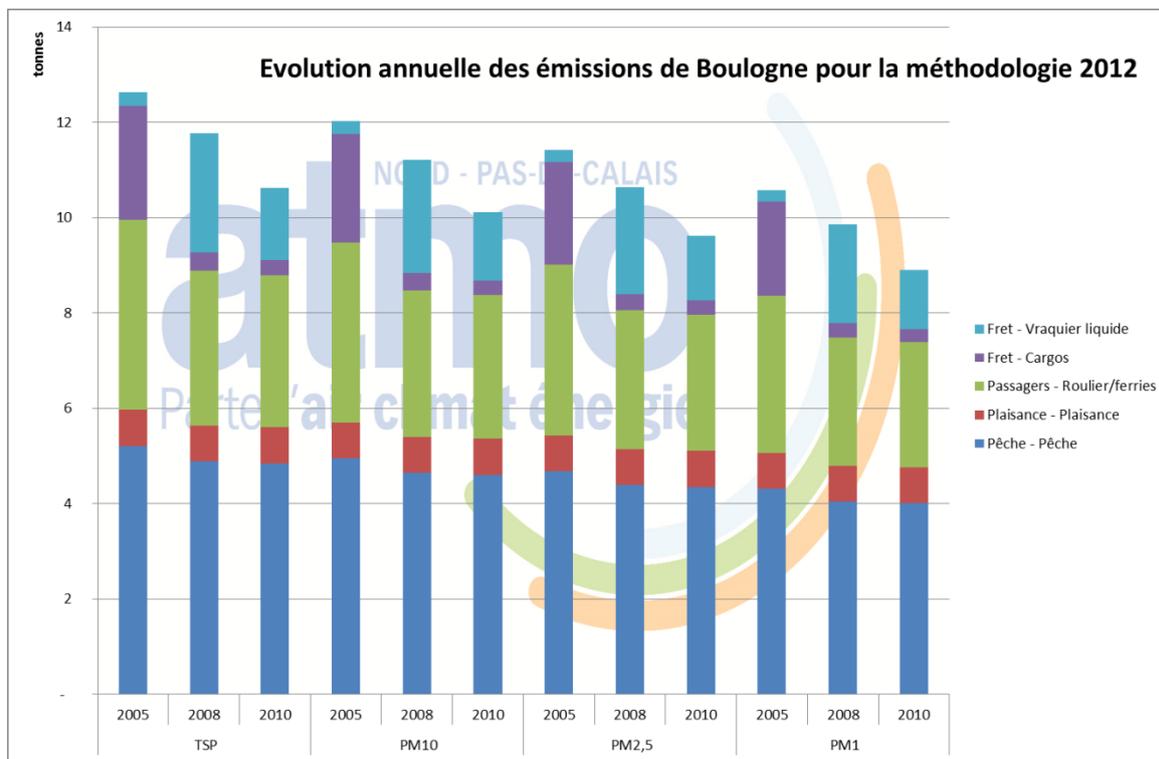


Figure 14 : Emissions de particules du secteur maritime sur le port de Boulogne

○ Polluants précurseurs de particules secondaires

▪ Part du maritime

Sur la communauté d'agglomération du Boulonnais, en 2010 :

- la part des émissions de NOx du trafic maritime dans les émissions totales est de 3,5%. Dans le transport, elle est de 14,6% (84,5% pour le routier). Cette part des émissions maritime s'élève à 94,1% sur le périmètre restreint au seul secteur « autres transports ».
- la part des émissions de SO<sub>2</sub> du trafic maritime dans les émissions totales est de 5,7%. Dans le transport elle est de 97,5% (2,5% pour le routier). Cette part des émissions maritime s'élève à 100% sur le périmètre restreint au seul secteur « autres transports ».
- la part des émissions de COVNM du trafic maritime dans les émissions totales est de 0,5%. Dans le transport elle est de 7,6% (91,1% pour le routier). Cette part des émissions maritime s'élève à 86,2% sur le périmètre restreint au seul secteur « autres transports ».

Au sein du transport, le transport maritime est la principale source de SO<sub>2</sub> sur l'agglomération de Boulogne. En outre, sur cette zone, le transport maritime est un contributeur mineur aux émissions totales de NOx, SO<sub>2</sub> et de COVNM.

▪ Classement par type d'activité portuaire

Les variations interannuelles des émissions de polluants suivent celles des consommations énergétiques (Figure 15). Les répartitions par type de navire correspondent également à celles des consommations.

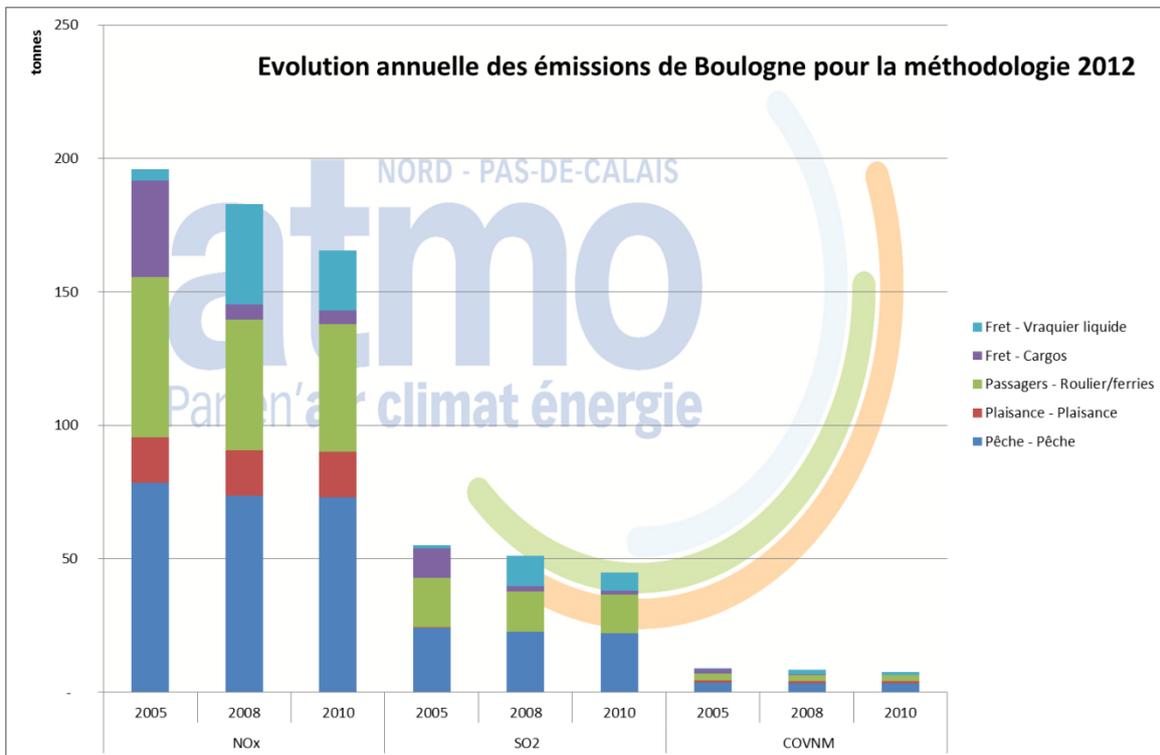


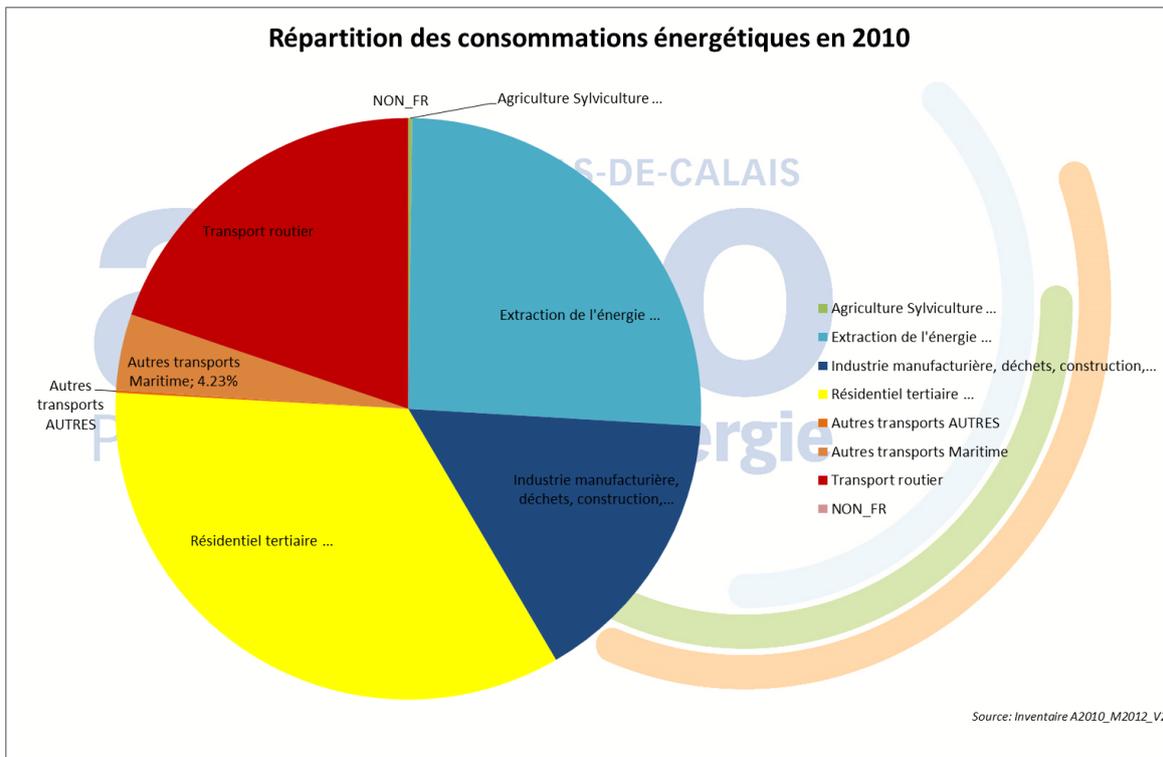
Figure 15 : Emissions de polluants du secteur maritime sur le port de Boulogne

### 1.2.3. Calais

#### ○ Energie

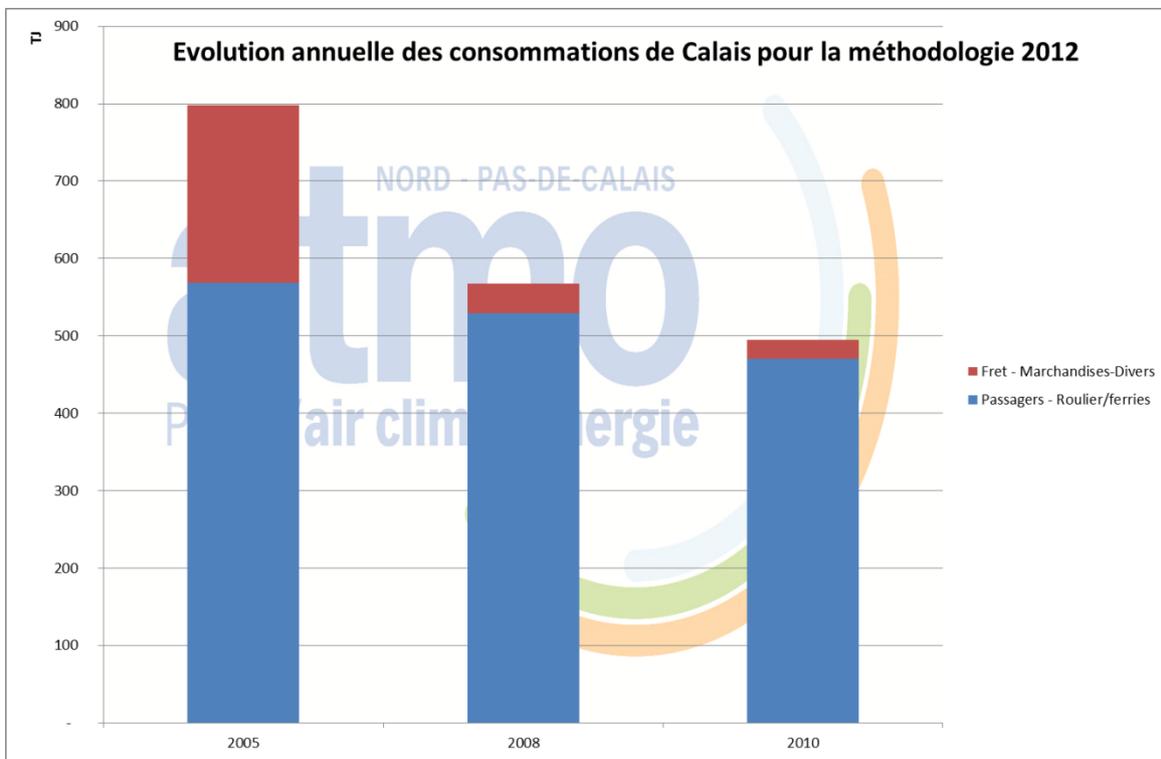
##### ▪ Part du maritime

En 2010, sur la communauté urbaine de Calais, le secteur maritime correspond à 4,2% des consommations totales sur les 24,1% que représente le transport. La part du secteur maritime est de 17,5% des consommations énergétiques du transport (81,8% ont pour origine le transport routier) et 95,9% pour la partie des « autres transports », le ferroviaire, le fluvial et l'aérien complétant le reste.



*Figure 16 : Répartition des consommations énergétiques 2010 par activité sur la communauté d'agglomération du Calais*

A l'échelle de la communauté d'agglomération les consommations d'énergie par le secteur maritime, en 2010 sont minimes (495 TJ sur 11 700 TJ). Les émissions de ce secteur étant exclusivement issue de la combustion d'énergie, la part des émissions sur la communauté d'agglomération est faible.



*Figure 17 : Consommation du secteur maritime sur le port de Calais*

Evolution 2005/2008	REGION	Combustible / Activité	NAPFUE	Consommation	
				Unité	
				GJ/an	
		Diesel marine léger (brins)	204	-13,2%	
		Diesel marine léger (ponctuelle)	204	-33,4%	
		<b>Total</b>	-	<b>-28,9%</b>	

Evolution 2008/2010	REGION	Combustible / Activité	NAPFUE	Consommation	
				Unité	
				GJ/an	
		Diesel marine léger (brins)	204	-11,3%	
		Diesel marine léger (ponctuelle)	204	-13,4%	
		<b>Total</b>	-	<b>-12,8%</b>	

Année	Nombre de mouvements ferries	Nombre de mouvements « autres bateaux »	Nombre de mouvements totaux	Evolution	
2005	35920	3017	38937	<b>-12,14%</b>	
2008	33479	731	34210		
2010	29721	651	30372		<b>-11,22%</b>

- [Classement par type d'activité portuaire](#)

Les évolutions des consommations d'une part, et les évolutions du nombre de mouvements totaux d'autre part, sont différents d'une année à l'autre.

Un important écart est visible entre les consommations de 2005 et 2008 : entre ces deux années, la consommation totale de carburant a diminué de 28,9%, tandis que le nombre de mouvements total n'a diminué que de 12,14%. Cet écart s'observe en particulier au niveau des consommations à quai des « autres bateaux », autrement dit les bateaux qui ne sont pas des ferries. Le nombre de mouvements de ces autres bateaux diffère justement grandement entre les deux années : 3 017 mouvements en 2005 contre 731 mouvements en 2008. Cette différence a donc un impact important sur les consommations, en raison de l'hypothèse de départ. Cette hypothèse considère que les « autres bateaux » restent à quai pendant 24h, au lieu de 45 min pour les ferries. C'est pourquoi on observe une importante différence d'évolution entre les années 2005 et 2008.

Globalement, obtenir des résultats en baisse d'une année à l'autre est cohérent avec des années difficiles pour le trafic maritime des ferries dans le Port de Calais (notamment liées à liquidation judiciaire et à la cessation d'activité de SeaFrance), ce qui est d'ailleurs visible sur le nombre de mouvements des ferries, en baisse récurrente de 2005 à 2010.

- [Particules](#)

- [Part du maritime](#)

Sur la communauté de d'agglomération de Calais, en 2010, la part des émissions de PM10 du trafic maritime est de 16,5% des émissions totales, elle est de 39,6% dans le transport (56,4% pour le routier). Cette part des émissions maritime s'élève à 91% sur le périmètre restreint au seul secteur « autres transports ».

Ainsi, sur l'agglomération de Calais, le trafic maritime est le second contributeur aux émissions de PM10 issues du transport.

- [Classement par type d'activité portuaire](#)

Les variations interannuelles des émissions de particules suivent celles des consommations énergétiques (Figure 18). Les répartitions par type de navire correspondent également à celles des consommations.

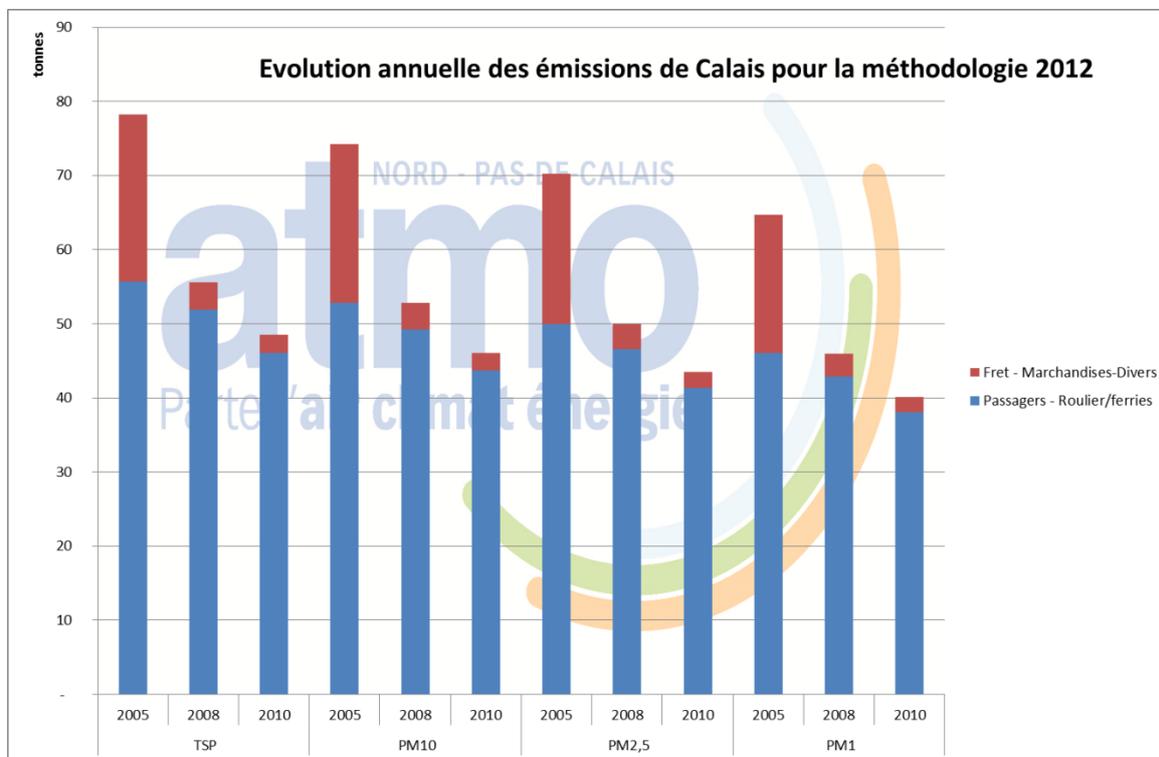


Figure 18 : Emissions de particules du secteur maritime sur le port de Calais

- [Polluants précurseurs de particules secondaires](#)

- [Part du maritime](#)

Sur la communauté d'agglomération du Calais, en 2010 :

- la part des émissions de NOx du trafic maritime dans les émissions totales est de 28,8%. Dans le transport, elle est de 43,1% (56,5% pour le routier). Cette part des émissions maritime s'élève à 99,1% sur le périmètre restreint au seul secteur « autres transports ».
- la part des émissions de SO<sub>2</sub> du trafic maritime dans les émissions totales est de 20,6%. Dans le transport elle est de 99,4% (0,5% pour le routier). Cette part des émissions maritime s'élève à 99,9% sur le périmètre restreint au seul secteur « autres transports ».
- la part des émissions de COVNM du trafic maritime dans les émissions totales est de 2,8%. Dans le transport elle est de 29,4% (69,6% pour le routier). Cette part des émissions maritime s'élève à 96,8% sur le périmètre restreint au seul secteur « autres transports ».

Au sein du transport, le transport maritime est la principale source de SO<sub>2</sub>, la deuxième source de NOx et de COVNM sur l'agglomération de Calais. En outre, pour cette agglomération, si le transport maritime est un contributeur mineur aux émissions totales de COVNM, il est un contributeur important dans les émissions totales de NOx et de SO<sub>2</sub>.

- [Classement par type d'activité portuaire](#)

Les variations interannuelles des émissions de polluants suivent celles des consommations énergétiques (Figure 19). Les répartitions par type de navire correspondent également à celles des consommations.

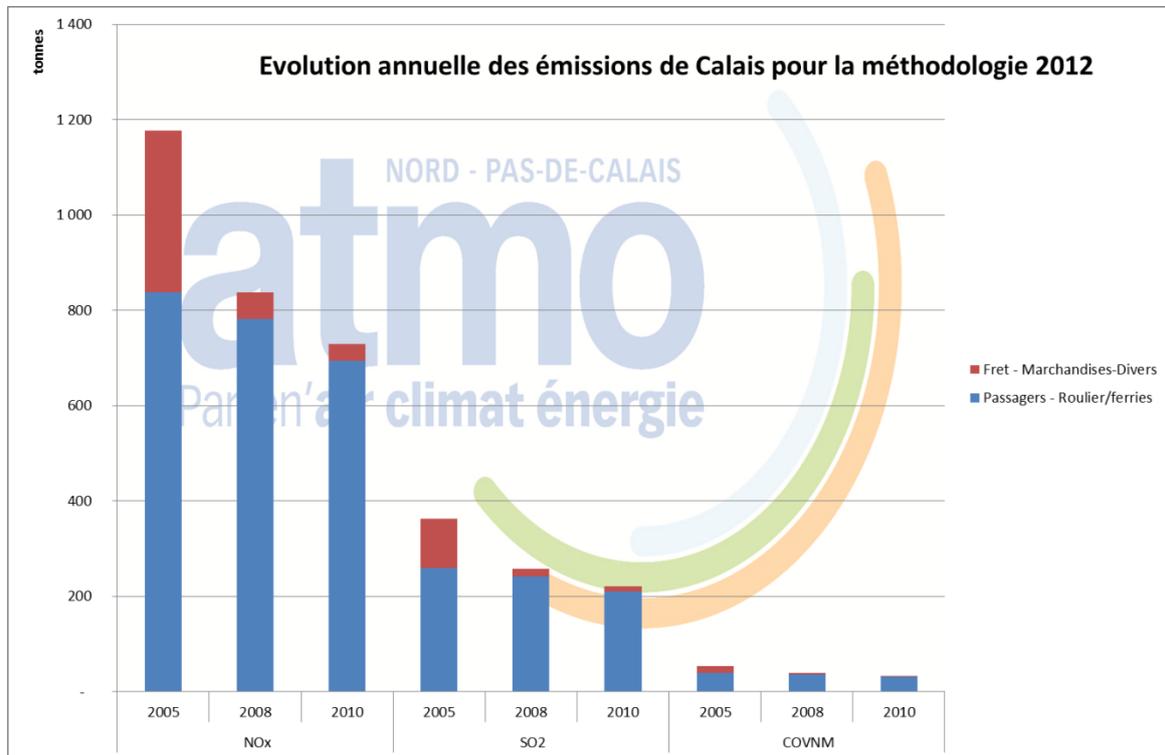


Figure 19 : Emissions de polluants du secteur maritime sur le port de Calais

#### 1.2.4. [Dunkerque](#)

- [Energie](#)

- [Part du maritime](#)

En 2010, sur la communauté urbaine de Dunkerque, le secteur maritime correspond à 1,3% des consommations totales sur les 4,6% que représente le transport. La part du secteur maritime est de 27,9% des consommations énergétiques du transport (71,2% ont pour origine le transport routier) et 96,6% pour la partie des « autres transports » (Figure 20), le ferroviaire et le fluvial complétant le reste.

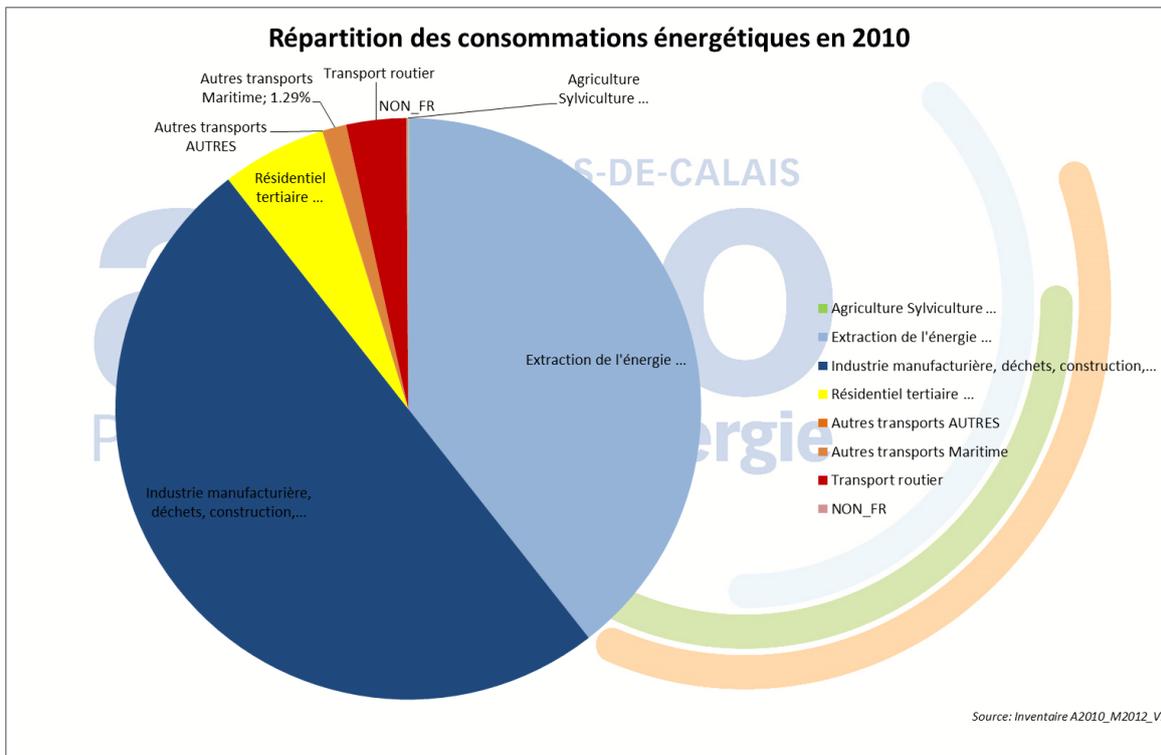


Figure 20 : Répartition des consommations d'énergie 2010 par activité sur la communauté urbaine de Dunkerque

- [Classement par type d'activité portuaire](#)

Le GPMD est principalement un port de marchandise ; le fret est le principal consommateur d'énergie du secteur maritime (Figure 21). Les consommations du secteur maritime du port présentent une grande variabilité interannuelle notamment en raison de l'évolution des consommations des vraquiers liquides et des rouliers/ferries. Les consommations totales du port et des vraquiers liquides sont minimales pour l'année 2010, alors que les consommations des rouliers/ferries sont en augmentation.

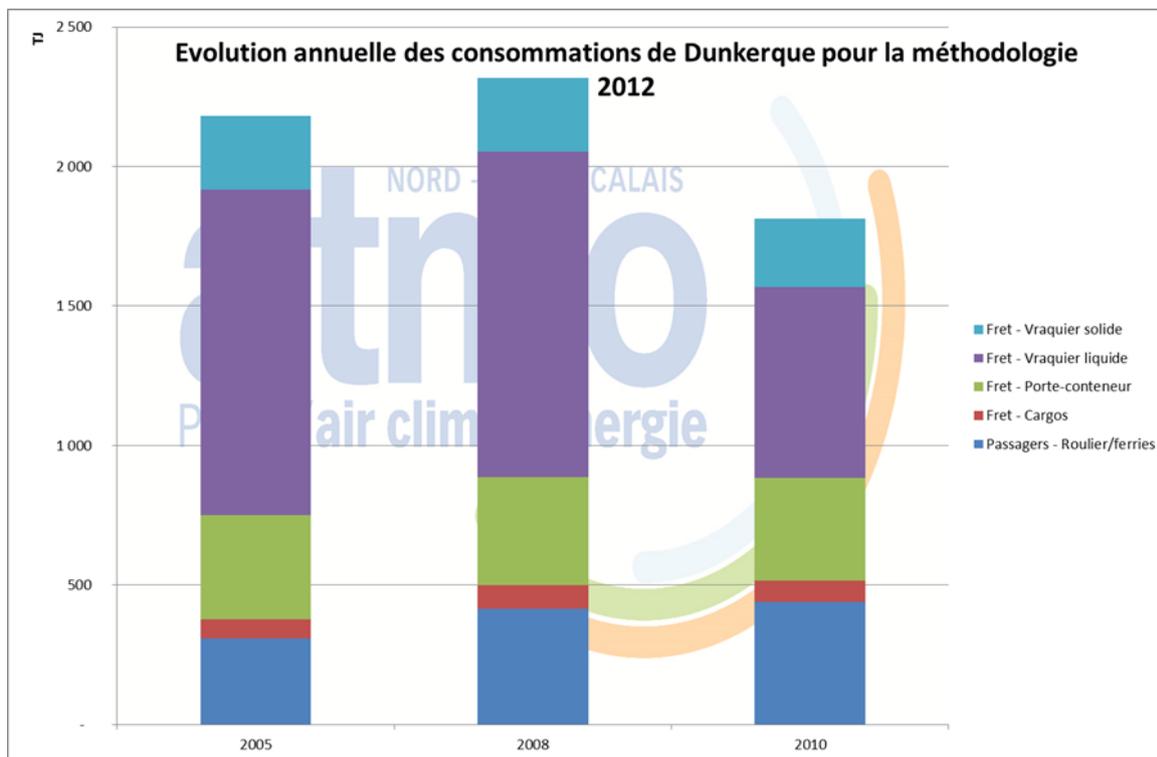


Figure 21 : Consommation énergétique estimée pour le secteur maritime sur le GPMD

Les évolutions des consommations et les évolutions du nombre de mouvements totaux ont une variabilité interannuelle importante.

Les variations de trafic et de consommations sont en accord entre 2005 et 2008 et entre 2008 et 2010. Cependant, des écarts importants sont observés entre les valeurs.

Entre 2005 et 2008 l'augmentation globale du trafic explique bien l'augmentation des consommations notamment en raison de la forte hausse du trafic de ferries. La hausse des consommations n'est pas aussi importante que la hausse de trafic car les ferries ne représentent qu'une part minoritaire du trafic maritime du GPMD ; leur forte augmentation n'a qu'un impact modéré sur les consommations globales de carburant.

De même, entre 2008 et 2010, la baisse globale du trafic, en particulier la baisse de trafic de vraquiers liquides, explique bien la baisse des consommations de carburants. L'influence des variations de trafic des vraquiers liquides est importante car ils représentent la plus grande part du trafic (en terme de mouvements ; pas de tonnages) du GPMD.

Tableau 2 : Variation des consommations énergétiques du GPMD entre 2005 et 2008

Evolution 2005/2008	GPMD	Combustible / Activité	NAPFUE	Consommation
				Unité
				GJ/an
		Diesel marine léger (brins)	204	42,9%
		Diesel marine léger (ponctuelle)	204	10,4%
		<b>Total</b>	-	<b>20,6%</b>

Tableau 3 : Variation des consommations énergétiques du GPMD entre 2008 et 2010

Evolution 2008/2010	GPMD	Combustible / Activité	NAPFUE	Consommation
				Unité
				GJ/an
		Diesel marine léger (brins)	204	-16,6%
		Diesel marine léger (ponctuelle)	204	-34,4%
		<b>Total</b>	-	<b>-27,8%</b>

Tableau 4 : Données annuelles concernant le trafic sur le GPMD

	Répartition par grand type de marchandises (millions de tonnes)			Trafics conteneurs en EVP <sup>(1)</sup>	Trafics passagers transmanche en milliers
	Vracs solides	Vracs liquides	Marchandises diverses		
2005	26.3	14.8	12.3	204 562	813
2008	26.8	14.8	16.0	214 485	2 202
2010	22.669	5.6	14.4	200 858	2 532

- [Particules](#)
  - [Part du maritime](#)

Sur la communauté urbaine de Dunkerque, en 2010, la part des émissions de PM10 du trafic maritime est de 5,5% des émissions totales, elle est de 51,6% dans le transport (46,2% pour le routier). Cette part des émissions maritime s'élève à 96,0% sur le périmètre restreint au seul secteur « autres transports ».

Ainsi, sur l'agglomération de Dunkerque, le trafic maritime est le contributeur majoritaire aux émissions de PM<sub>10</sub> issues du transport.

- [Classement par type d'activité portuaire](#)

Les variations interannuelles des émissions de particules suivent celles des consommations énergétiques (Figure 22). Les répartitions par type de navire correspondent également à celles des consommations.

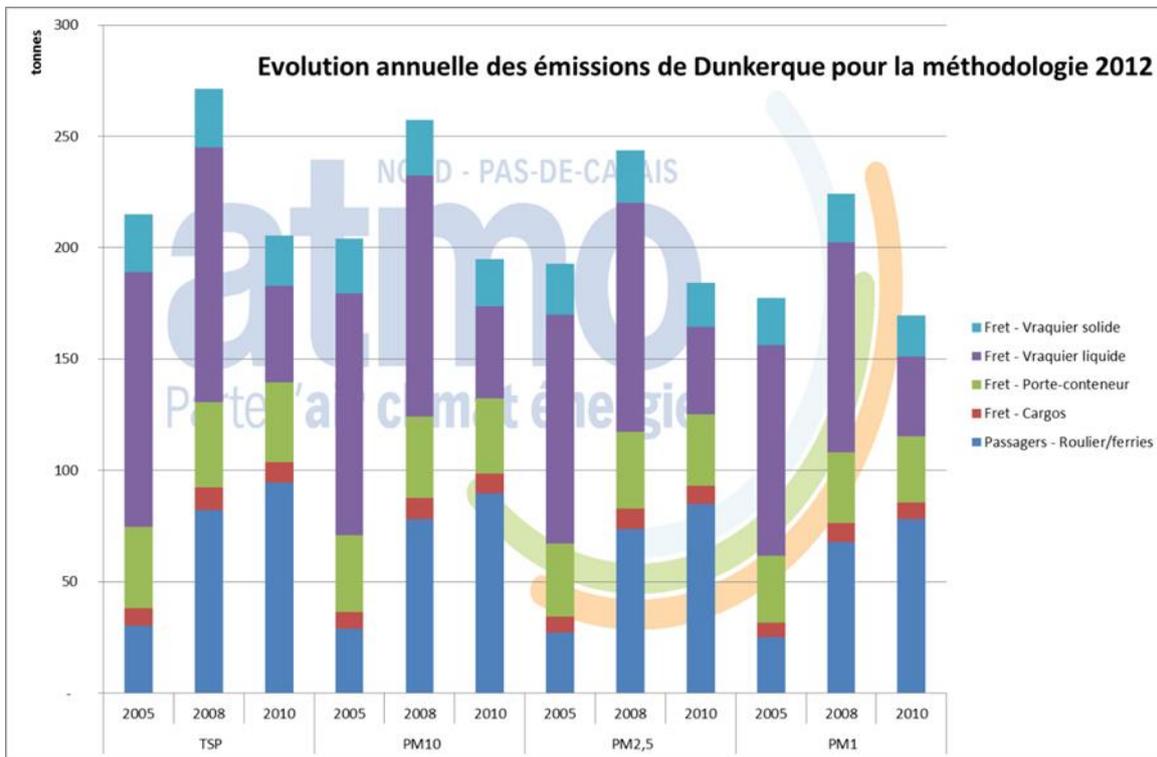


Figure 22 : Emissions de particules du secteur maritime sur le GPMD

○ [Polluants précurseurs de particules secondaires](#)

▪ [Part du maritime](#)

Sur la communauté urbaine de Dunkerque, en 2010 :

- la part des émissions de NOx du trafic maritime dans les émissions totales est de 19,7%. Dans le transport, elle est de 63,5% (35,6% pour le routier). Cette part des émissions maritime s'élève à 98,5% sur le périmètre restreint au seul secteur « autres transports ».
- la part des émissions de SO<sub>2</sub> du trafic maritime dans les émissions totales est de 3,7%. Dans le transport elle est de 99,6% (0,2% pour le routier). Cette part des émissions maritime s'élève à 99,8% sur le périmètre restreint au seul secteur « autres transports ».
- la part des émissions de COVNM du trafic maritime dans les émissions totales est de 2,8%. Dans le transport elle est de 42,4% (54,9% pour le routier). Cette part des émissions maritime s'élève à 93,9% sur le périmètre restreint au seul secteur « autres transports ».

Au sein du transport, le transport maritime est la principale source de NOx et de SO<sub>2</sub> sur l'agglomération de Dunkerque. En outre, si le transport maritime est un contributeur mineur aux émissions totales de SO<sub>2</sub> et de COVNM, il est un contributeur important dans les émissions totales de NOx.

▪ [Classement par type d'activité portuaire](#)

Les variations interannuelles des émissions de polluants suivent celles des consommations énergétiques (Figure 23). Les répartitions par type de navire correspondent également à celles des consommations.

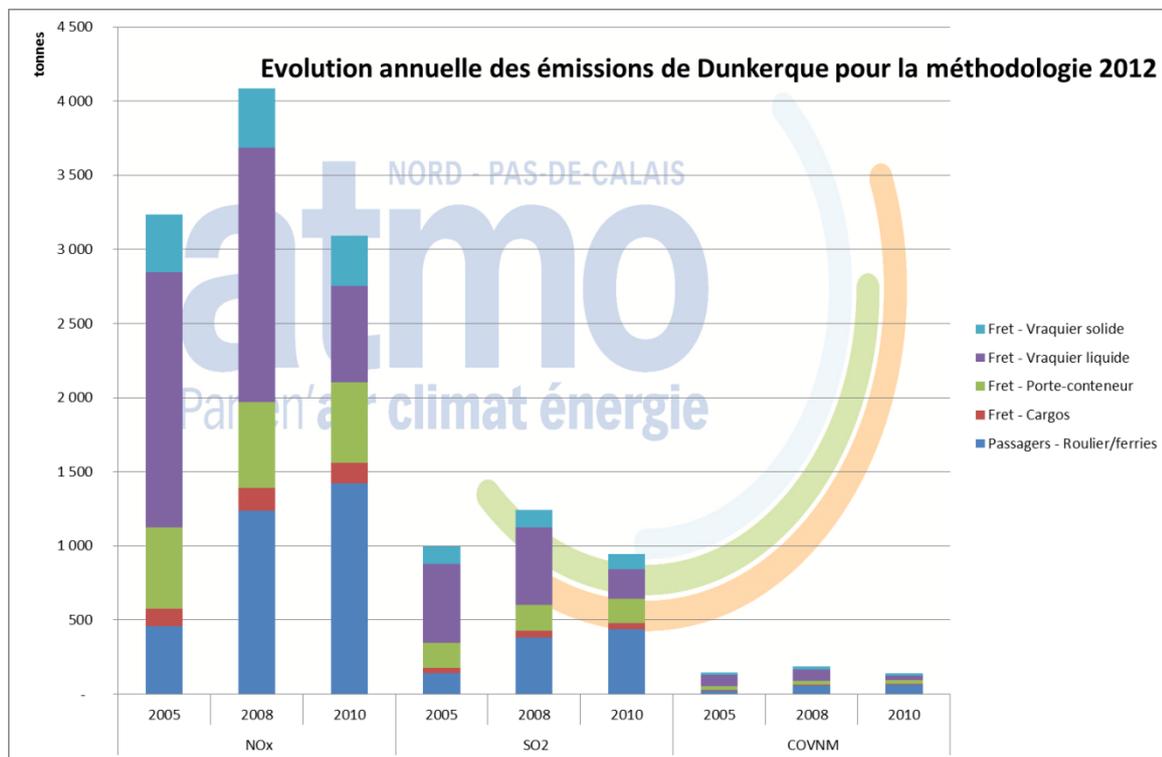


Figure 23 : Emissions de polluants du secteur maritime sur le GPMD

### 1.3. Comparaison portuaire nationale et européenne

Les informations recueillies sur les émissions maritimes proviennent des éléments suivants :

#### France

- Etude énergétique et environnementale du passage portuaire, rapport final, 26 novembre 2010
- Hinterland des ports maritimes (tome 1) : Modélisation des trafics des ports français, n°108 juillet 2014, COMMISSARIAT GÉNÉRAL AU DÉVELOPPEMENT DURABLE
- L'efficacité énergétique et environnementale du transport maritime, ADEME, 2009

#### Normandie

- Inventaire des émissions en Haute-Normandie actualisation des émissions par le trafic maritime, Air Normand, 2008
- Inventaire territorial des émissions de gaz à effet de serre, de polluants atmosphériques et des consommations d'énergie de la Communauté d'agglomération Rouen-Elbeuf-Austreberthe, première et seconde partie Air Normand, 2012
- Inventaire territorial des émissions de gaz à effet de serre, de polluants atmosphériques et des consommations d'énergie de la Communauté d'agglomération de Dieppe Maritime, première et seconde partie Air Normand, 2012

- Rapport d'étude E08\_12\_09 Inventaire des émissions en Haute-Normandie Calcul des émissions des engins de manutention portuaire, Port autonome du Havre, Air Normand, 2008
- Etat des lieux Climat-Air-Energie de la Haute-Normandie Inventaire énergétique et des émissions de gaz à effet de serre et de polluants atmosphériques – secteurs des transports, ed 2011

### *PACA*

- Impact énergétique des ports et aéroports de la région Provence-Alpes-Côte d'Azur, Service Energie Climat Air - DDSC-SECA, 2012
- APICE, Synthèse Marseille, 2013
- Inventaire des émissions zone industrielle de Berres 2012 – Air PACA édité en 2015
- Inventaire des émissions PM10 sur Marseille, 2007 – Air PACA

### *Belgique*

- Lozingen in de lucht 2000-2013, VMM, 2014
- Emissions from international shipping in the Belgian Part of the North Sea and the Belgian seaports. De Meyer P., Maes F., Volckaert A., Atmospheric Environment, 2008, 42, 196-206.

### *Royaume-Uni*

- Lozingen in de lucht 2000-2013, VMM, 2014

### *Pays-Bas et Région OSPAR II*

- Sea shipping emissions 2010: Netherlands Continental Shelf, port areas and OSPAR region II, Final report, February 9, 2012, MARIN.

Le parc de navires est très différent d'un port à l'autre (passagers, marchandises, pêche, plaisance). Il dépend de la vocation principale du port. Le type de navire influence fortement les consommations et de fait les émissions associées. De fait, les émissions par tep<sup>8</sup> ne sont pas comparables. Il n'est pas non plus possible de comparer à la tonne transportée car cette information n'est pas toujours disponible et n'a pas de sens pour la pêche et le transport de passagers.

Il n'y a pas homogénéité de territoire (espace maritime pris en compte +/- important, territoire autour du port +/- grand et donc incluant plus ou moins de sources différentes), d'année de référence, de méthodologie. Les informations renseignées ne sont pas toutes les mêmes (consommation ou TSP ou PM10). De fait, les émissions moyennes par km<sup>2</sup> ne sont pas comparables.

Compte-tenu des éléments disponibles, la comparaison entre les ports n'a pas pu être effectuée.

---

<sup>8</sup> tep = tonne équivalent pétrole

## 1.4. Conclusion et perspectives

ECUME a permis de réaliser l'inventaire des émissions maritimes sur la région au niveau des 3 principaux ports.

Concernant les résultats, il a été montré que:

- Sur la région, en 2010, le secteur maritime représente 5,9% des émissions de PM<sub>10</sub> du transport (85,4% pour le routier) et sont essentiellement composées de PM1.
- Sur la région, en 2010, le secteur maritime représente 93,3% des émissions de SO<sub>2</sub>, 9,0% des émissions de NOx et 4,0% des émissions de COVNM du transport. La contribution des émissions de SO<sub>2</sub> des transports sont donc quasi-exclusivement issues du secteur maritime.
- Les émissions 2010 sont les plus faibles des 3 années de calcul principalement en raison de la baisse du trafic (et de fait de la consommation) observée sur les 3 ports.
- Les consommations et les émissions de polluants les plus importantes sont estimées pour port de Dunkerque en raison d'un trafic plus important sur ce port.
- Les trafics de fret et de passagers sont les principaux contributeurs aux émissions maritimes en région.

Perspectives : Un travail reste à faire pour intégrer les types de navigations négligées sur Calais et Dunkerque, les trafics des ports plus petits et les activités portuaires (chargements, déchargements,...). La réalisation de ces travaux est soumise à la mise à disposition des données d'entrée (qui n'a pas pu avoir lieu pour ECUME).

Les bases de données qui auraient permis d'estimer les émissions du trafic dans la Manche et la Mer du Nord ne se sont pas révélées exploitables (format informatique et pas de lien possible avec les facteurs d'émission et de consommation), un travail important reste à réaliser de ce côté-là, si les bases devenaient exploitables.

## 2. Concentration et composition chimique des particules PM<sub>10</sub> sur le site du Cap Gris-Nez au cours de l'année 2013

**Auteurs :** Cloé Roche, Frédéric Ledoux & Dominique Courcot

### 2.1. Méthodologie

#### 2.1.1. Site d'étude et période de mesure

La campagne de prélèvements a été réalisée sur le site du Cap Gris-Nez (Figure 24). Ce site côtier (50° 52' 08" N, 1° 35' 49" E, altitude 50 m) est éloigné de sources anthropiques majeures de PM<sub>10</sub> comme le trafic routier ou l'activité industrielle. La ville la plus proche, Boulogne-sur-Mer, est distante de 16 km du site de mesures (Figure 25), alors que Calais se trouve à 21 km au nord-est. Par ailleurs, le Cap Gris-Nez est au plus proche de l'Angleterre dans l'espace Manche-Mer du Nord ; une distance de 33 km le sépare de la ville de Douvres (Angleterre). Le détroit du Pas de Calais est une voie majeure de trafic maritime. C'est un lieu de passage incontournable pour les navires venant de l'Atlantique qui rejoignent les ports de la Mer du Nord, de la côte Est du Royaume-Uni ou encore des ports de la Mer Baltique. Ainsi, le détroit du Pas de Calais est traversé par un nombre de bateaux compris entre 500 à 800 par jour, ce qui représente jusqu'à 20% du trafic mondial. De plus, 70 000 passagers font la traversée entre la France et la Grande-Bretagne en moyenne chaque jour, en utilisant soit le tunnel sous la manche ou les ferries. (Préfecture Manche-Mer du Nord). Chaque année plus de 10 millions de voyageurs choisissent de transiter par le port de Calais, 1<sup>er</sup> port français et 2<sup>e</sup> port européen de voyageurs, pour rejoindre le Royaume-Uni.



Figure 24 : Situation du Cap Gris-Nez dans l'espace Manche Mer-du-Nord

La campagne de mesures a été réalisée entre 1<sup>er</sup> janvier 2013 et le 21 avril 2014. L'ensemble des résultats présentés dans cette partie porte sur les données obtenues pour l'année 2013.

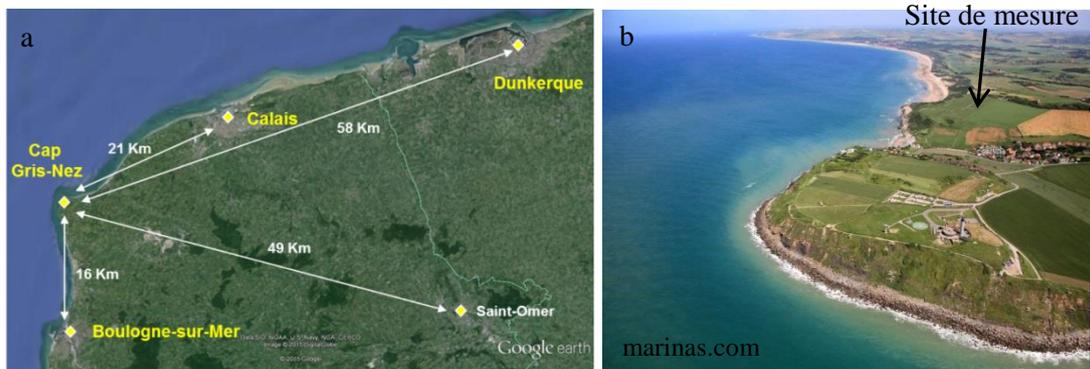


Figure 25 : Localisation du Cap Gris-Nez par rapport aux villes les plus proches en région Nord-Pas-de-Calais (a) et positionnement du site de mesure (b)

### 2.1.2. Méthodes de mesure et d'échantillonnage

L'échantillonnage des particules a été réalisé sous la forme de prélèvements journaliers, sur une durée de 24h, entre 0h00 et 23h59 UTC (Universal Time Coordinated) à l'aide d'un collecteur DIGITEL DA80 (Figure 26), muni d'une tête PM<sub>10</sub> et fonctionnant à un débit de 30 m<sup>3</sup>/h.

Les filtres utilisés pour l'échantillonnage sont de type "fibres de quartz ultrapure sans liant" (Pall® QAT-UP). Ces filtres sont préalablement grillés à 450°C pendant 2h30 afin de limiter leur taux d'impuretés, en éliminant notamment les traces d'espèces organiques et carbone élémentaire résiduelles. Les filtres sont installés sur les porte-filtres, eux même positionnés dans le préleveur, dans lequel le changement d'un porte-filtre à l'autre est réalisé de manière automatique. Des blancs de terrain (au moins 2 par mois) ont été réalisés en suivant un protocole identique à celui des filtres échantillons.



Figure 26 : Photos du DA80 (gauche) et du MP101M (droite)

Afin de minimiser le plus possible les risques de perte des certains constituants volatils sous l'effet de températures élevées, la station de mesure a été climatisée à une température de 19°C. Après récupération des filtres sur site, ceux-ci sont amenés au laboratoire, conditionnés dans un emballage en aluminium et conservés à une température de -18°C, avant d'être traités pour la réalisation des analyses chimiques.

Parallèlement à ces prélèvements, la teneur en PM<sub>10</sub> est mesurée en continu par un analyseur à jauge Béta, MP101M, de la Société Environnement SA. Le MP101M détermine la concentration en particules par la mesure de la quantité d'énergie absorbée par l'échantillon exposé à une source radioactive. Les rayons Béta de faible énergie sont absorbés par collision avec les électrons, dont le

nombre est proportionnel à la densité. L'absorption est ainsi fonction de la masse de matière traversée par les rayons, indépendamment de la nature physico-chimique de celle-ci.

Les conditions de température et pression sur le site ont été enregistrées en continu par les capteurs du DA 80. La vitesse et la direction du vent sont enregistrées en continu également au moyen d'un capteur ultrasonique WMT52 (Vaisala Windcap).

### 2.1.3. Analyses chimiques

- *Sélection des échantillons à analyser*

Au cours de cette étude, 362 échantillons ont été collectés sur le site du Cap Gris-Nez en 2013. La synthèse de l'échantillonnage réalisé et des conditions opérationnelles au cours de l'ensemble de la campagne est présentée dans le Tableau 5. Au cours de cette étude, l'analyseur MP101 a eu un taux de fonctionnement de 95,1% et l'échantillonneur DA80 a fonctionné 99,4% du temps.

Tableau 5 : Synthèse de l'échantillonnage réalisé au Cap Gris-Nez sur l'année 2013

Période	Nb éch collectés	Jours défaut DA80	Nb Jours de dépassement de Valeur limite	Nb éch sélectionnés	Jours défaut MP101
T1 2013	89	1	6	41	0
T2 2013	89	2	1	48	16
T3 2013	92	0	4	47	1
T4 2013	92	0	0	48	2
<b>Année 2013</b>	<b>362</b>	<b>3</b>	<b>11</b>	<b>184</b>	<b>19</b>

Parmi l'ensemble des échantillons collectés, seule une partie représentative a été analysée. Les critères de sélection ont été les suivants :

- 1 jour sur 3 systématiquement,
- les jours où la valeur limite journalière de 50  $\mu\text{g.m}^{-3}$  en  $\text{PM}_{10}$  est dépassée,
- échantillons supplémentaires collectés sous des vents marins,
- échantillons supplémentaires afin de couvrir au mieux toutes les directions de vent.

Cette sélection a permis de retenir un total de 212 échantillons, dont 28 blancs de terrain pour analyse pour l'année 2013 (voir Tableau 5). Pour chacun des filtres, quatre poinçons (disque de 47mm de diamètre) ont été découpés pour réaliser les quatre analyses suivantes et détaillées ci-après : ions hydrosolubles, éléments métalliques et autres éléments traces, carbone organique et élémentaire, traceurs organiques biogéniques et de combustion de biomasse.

- *Ions hydrosolubles*

Selon les préconisations du rapport technique du comité européen de normalisation (TR 16269 du CEN/TC 264), les teneurs en ions hydrosolubles majeurs ( $\text{Cl}^-$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  et  $\text{NH}_4^+$ ) sont déterminées par chromatographie ionique. L'appareil utilisé est une chromatographie Dionex DX 100® couplée à une Dionex ICS 900®, un supprimeur électrochimique et un détecteur conductimétrique.

La préparation des échantillons est réalisée par trois lixiviations successives avec chacune 3 à 4 mL d'eau ultrapure (MilliQ®, Millipore ; de résistivité = 18,2  $\text{M}\Omega\cdot\text{cm}$ ). Les lixiviats sont regroupés et filtrés sur une membrane d'acétate de cellulose de porosité 0,45 $\mu\text{m}$ .

L'étalonnage est réalisé à partir de solutions multi composés, et couvre une gamme de 0,2 à 50 mg/L.

Les analyses ont été effectuées par le laboratoire UCEIV de l'ULCO, à Dunkerque. La validité des méthodes d'analyse a été vérifiée dans le cadre de mesures d'inter-comparaison réalisées entre l'UCEIV et l'INERIS.

- *Eléments métalliques et autres éléments traces*

Les teneurs en métaux et éléments traces ont été déterminées par Spectrométrie d'Emission Atomique Induite par Couplage Plasma (ICP-AES, Thermo Scientific iCAP 6000 Series) pour les éléments Al, Ba, Fe, Mn, Sr, Ti et Zn et par Spectrométrie de Masse de Plasma à Couplage Inductif (ICP-MS, Varian® 820-MS) muni d'une cellule de gaz de collision (utilisant l'hélium dans le cadre de cette étude) pour minimiser les interférences poly-atomiques, pour les éléments traces Ag, As, Bi, Cd, Ce, Co, Cr, Cs, Cu, La, Ni, Nb, Pb, Rb, Sb, Sc, Se, Sn, Te, Tl et V . Cette méthode d'analyse est en accord avec la norme NF EN 14902.

La préparation des échantillons consiste à minéraliser une portion de filtre par un mélange d'acides (5,5 mL d'HNO<sub>3</sub>/HF/HClO<sub>4</sub> (4/1/0,5 v/v/v, Suprapur®, Merck®) à chaud. L'opération est menée en plaçant les échantillons dans des vials en PTFE, eux-mêmes introduits dans un système DigiPREP MS (SCP Science®) maintenu à une température de 120°C pendant 4 h. Les acides sont ensuite évaporés à la goutte en portant la température à 180°C. La solution finale a été : (i) ajustée à 13 mL avec de l'eau ultrapure (MilliQ®), (ii) acidifiée à 0,2% avec de l'HNO<sub>3</sub> (Suprapur®, Merck®), et (iii) filtrée sur membrane en acétate de cellulose (0,45 µm) avant l'analyse.

L'étalonnage est réalisé à partir de solutions multi-élémentaires couvrant une gamme de concentration de 5 à 500 µg/L (ICP-AES) et de 0,2 à 50 µg/L (ICP-MS).

Les analyses ont été effectuées par le laboratoire UCEIV au Centre Commun de Mesures de l'ULCO, à Dunkerque. La validité des méthodes d'analyse a été vérifiée dans le cadre de mesures d'intercomparaison réalisées entre l'UCEIV, le CCM de l'ULCO et l'Ecole des Mines de Douai, membre du LCSQA.

- *Carbone élémentaire et carbone organique*

L'analyse est réalisée directement sur une portion de filtre sans préparation. Celle-ci est placée dans un four où la température augmente par paliers successifs sous un flux d'hélium puis d'hélium-oxygène (

Tableau 6) afin de désorber le carbone organique (OC) puis le carbone élémentaire (EC) qui sont quantifiés par détecteur à ionisation de flamme (FID). Un laser He-Ne permet de suivre l'opacité du filtre au cours de la désorption et ainsi de bien séparer OC de EC. La méthode de traitement thermique de l'échantillon est celle du protocole EUSAAR-2 (Cavalli et al., 2010) ; cette méthode suit les recommandations du rapport technique TR-16 243 du CEN/TC 264.

Les analyses de OC et EC ont été effectuées par l'INERIS à Verneuil-en-Halatte.

Tableau 6 : Conditions d'analyse de OC et EC par méthode thermo-optique

Flux de gaz	Température (°C)	Temps (s)
He	200	120
He	300	150
He	450	180
He	650	180
He/O <sub>2</sub>	500	120
He/O <sub>2</sub>	550	120
He/O <sub>2</sub>	700	70
He/O <sub>2</sub>	850	80

- *Traceurs organiques de combustion de biomasse et de particules biogéniques primaires*

Les traceurs organiques de combustion de biomasse et les marqueurs de particules biogéniques (lévoglucosan, mannosan, galactosan, mannose, mannitol, arabitol et glucose) sont analysés par chromatographie liquide haute performance couplée à une détection par ampérométrie pulsée (HPLC-PAD).

Les échantillons sont préparés par extraction à l'eau ultrapure sous agitation mécanique pendant 30 minutes. Les extraits sont ensuite filtrés sur membrane Nucleopore de porosité 0,22µm.

L'analyse de ces traceurs organiques a été effectuée par le Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE) à Gif-sur-Yvette.

## 2.2. Résultats

### 2.2.1. Conditions météorologiques en 2013

Les données moyennes mensuelles de température et de précipitation (Figure 27) indique que l'année 2013 est caractérisée par :

- un hiver (premier trimestre) froid et neigeux, au cours duquel les températures moyennes des mois de janvier, février et mars ne dépassent pas 3°C ;
- un printemps qui arrive tardivement même si le mois d'avril présente quelques journées ensoleillées et clémentes. La hausse des températures n'est ressentie qu'à partir de la mi-mai. Le mois de mai est resté plutôt frais en moyenne (9°C) et a affiché 9 jours de vent fort sur le littoral de la région ;
- un été plutôt doux et peu contrasté. Le mois de juin a été relativement sec et a compté plusieurs périodes chaudes pour le littoral. Les mois de juillet, août et septembre ont été relativement conformes aux normales ;
- un automne doux et humide. Les normales mensuelles de précipitations ont été dépassées (de 110 à plus de 130 mm/mois ont été relevés en octobre et novembre). Une chute des températures moyennes a été observée entre octobre et décembre, mais ces dernières restent toutefois supérieures aux valeurs du début d'année.

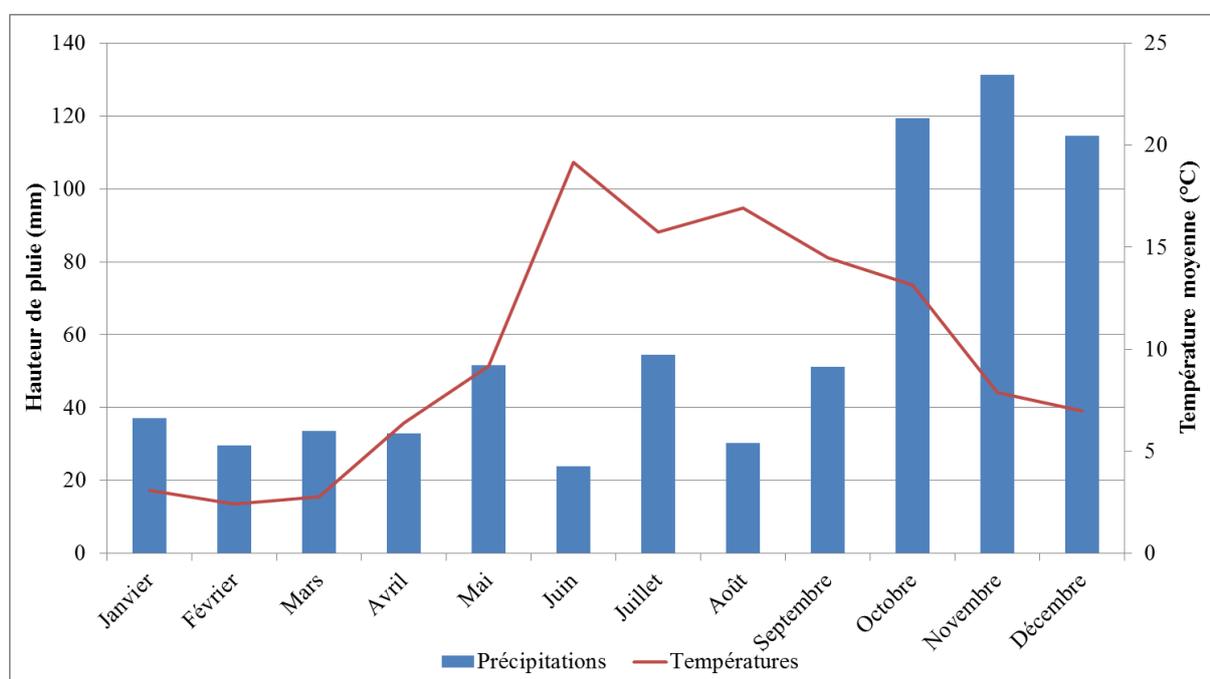


Figure 27 : Cumul de précipitations et températures moyennes sur le littoral NPdC pour l'année 2013

La rose des vents de l'année 2013 au Cap Gris-Nez (Figure 28) montre une prédominance des vents de secteur sud-ouest, et si la plupart présentent des vitesses faibles à moyennes comprises entre 4 et 8 m/s (15 à 30 km/h), il faut noter que c'est également sous ce secteur que sont relevés les vents plus

forts (> 30 km/h). En région Nord-Pas-de-Calais, cette situation se révèle être associée très fréquemment à des conditions dépressionnaires. Sous ce secteur de vent sud-ouest, le site est exposé à des entrées maritimes venant de la Manche, voire de l'Océan Atlantique. A l'inverse, la rose des vents permet de distinguer le secteur nord-est, comme deuxième secteur en terme de fréquence. Celui-ci coïncide le plus souvent à des conditions anticycloniques, stables et sans précipitation. Dans ce cas, les vents véhiculent des masses d'air majoritairement continentales, ayant traversé le nord du pays, et venant de pays européens voisins, dont la Belgique, les Pays-Bas, l'Allemagne, voire encore de pays plus distants de notre région situés en Europe de l'est.

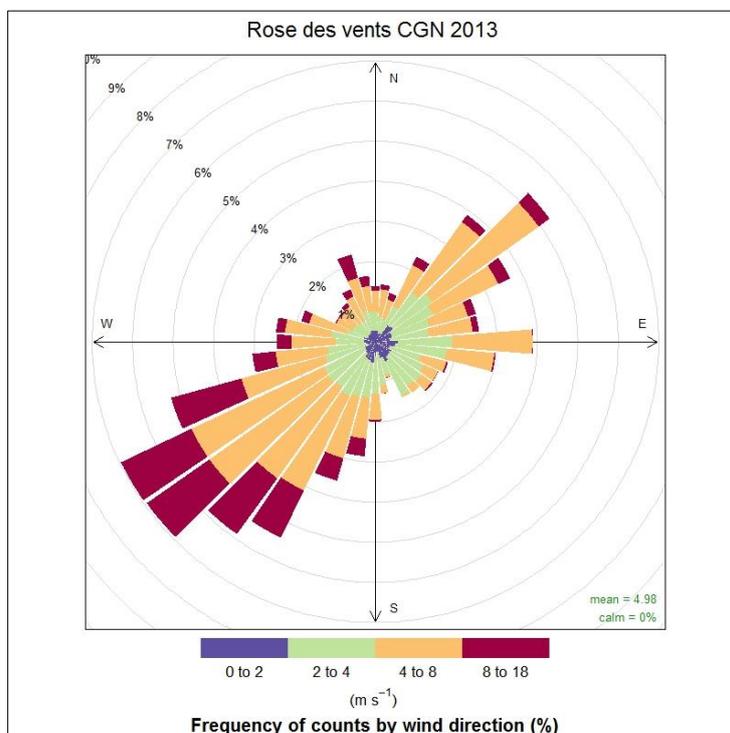


Figure 28 : Rose des vents au Cap Gris-Nez pour l'année 2013

### 2.2.2. Concentration de PM<sub>10</sub>

- *Moyenne annuelle*

En préalable à la présentation plus détaillée des mesures réalisées au cours de l'année 2013, une indication sur l'évolution de la concentration de PM<sub>10</sub> au cours de ces dernières années permet de situer historiquement les résultats de l'année 2013.

A partir des mesures effectuées par atmo au niveau régional, les concentrations moyennes annuelles de PM<sub>10</sub> apparaissent globalement à la baisse depuis 2007, après avoir fortement augmenté de 2006 à 2007 en raison de la prise en considération, à partir de cette date, de la fraction volatile dans les valeurs de PM<sub>10</sub> mesurées (Figure 29).

Les mesures enregistrées au niveau des stations de typologie différente (proximité automobile, urbaine et péri-urbaine, proximité industrielle, rurale) suivent les mêmes tendances annuelles. Néanmoins, il ressort clairement au fil des années que les stations de proximité automobile présentent des niveaux de concentrations de 1 à 5 µg.m<sup>-3</sup> plus élevés que les stations urbaines, péri-urbaines et industrielles, elles-mêmes présentant un niveau plus élevé que les stations rurales. En région Nord-Pas-de-Calais, des concentrations moyennes annuelles de PM<sub>10</sub> sensiblement plus élevées ont été enregistrées en 2013 par rapport aux années précédentes. Ainsi, les moyennes annuelles régionales de 2013 ont atteint 21 µg.m<sup>-3</sup> pour les stations rurales, 24 µg.m<sup>-3</sup> tant pour les stations péri-urbaines, urbaines et celles de proximité industrielle et enfin 28,5 µg.m<sup>-3</sup> pour les stations de proximité automobile. Ces valeurs demeurent en-dessous de la valeur moyenne annuelle limite de 40 µg.m<sup>-3</sup>.

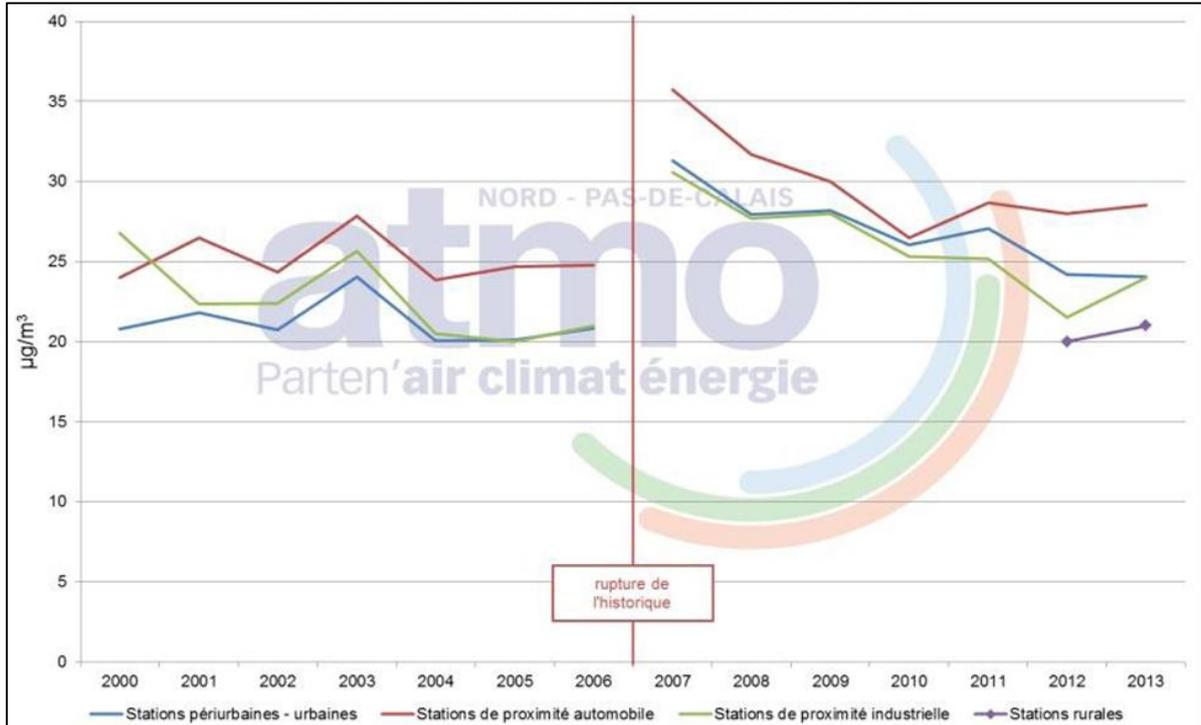


Figure 29 : Evolution des concentrations moyennes régionales depuis 2000 (d'après atmo, 2013).

Dans le cadre de cette étude, il a été proposé de comparer les mesures de concentration de PM<sub>10</sub> au Cap Gris-Nez avec celles d'autres stations plus ou moins distantes du littoral de la Région (Figure 30). Il s'agit de stations péri-urbaines ou urbaines (Calais, Saint-Omer, Lens, Salomé) et d'une station rurale (Cartignies). Cette dernière présente la valeur de concentration moyenne annuelle la plus basse en 2013 (20,3 µg.m<sup>-3</sup>), alors que la station du Cap Gris-Nez a enregistré une valeur de 22,8 µg.m<sup>-3</sup>, très proche de celle de stations urbaines et péri-urbaines comme Saint-Omer, Salomé ou Lens. Seule la station urbaine de Calais Berthelot (26,5 µg.m<sup>-3</sup>) se distingue par une valeur moyenne annuelle supérieure de 3,7 µg.m<sup>-3</sup> à celle du Cap Gris-Nez. (Tableau 7).



Figure 30 : Stations de mesures régionales retenues pour la comparaison des concentrations en PM<sub>10</sub>

Tableau 7 : Moyennes, minimum et maximum annuels des concentrations en PM<sub>10</sub> au Cap Gris-Nez et au niveau de 5 stations du réseau atmo NPdC

<b>2013</b>	<b>Moy</b>	<b>Min</b>	<b>Max</b>
<b>CGN</b>	22,8	4,0	74,0
<b>Calais Berthelot</b>	26,5	6,6	116,0
<b>Saint-Omer</b>	22,9	5,4	87,0
<b>Salomé</b>	23,3	7,0	110,0
<b>Lens Stade</b>	21,8	3,0	80,0
<b>Cartignies</b>	20,3	1,9	87,0

- *Evolution temporelle et saisonnière des concentrations de PM<sub>10</sub>*

La Figure 31 présente une comparaison des concentrations journalières de PM<sub>10</sub> relevées au niveau des 6 stations retenues. Elle montre des évolutions relativement simultanées des niveaux de PM<sub>10</sub> et révèle peu d'écart de concentration d'une station à l'autre. Ainsi, les minima et les maxima de concentration sont relevés pour les mêmes jours sur les différentes stations. Sur le site du Cap Gris-Nez, 11 jours de dépassement de la valeur limite en PM<sub>10</sub> ont été observés pour l'année 2013 (Tableau 5).

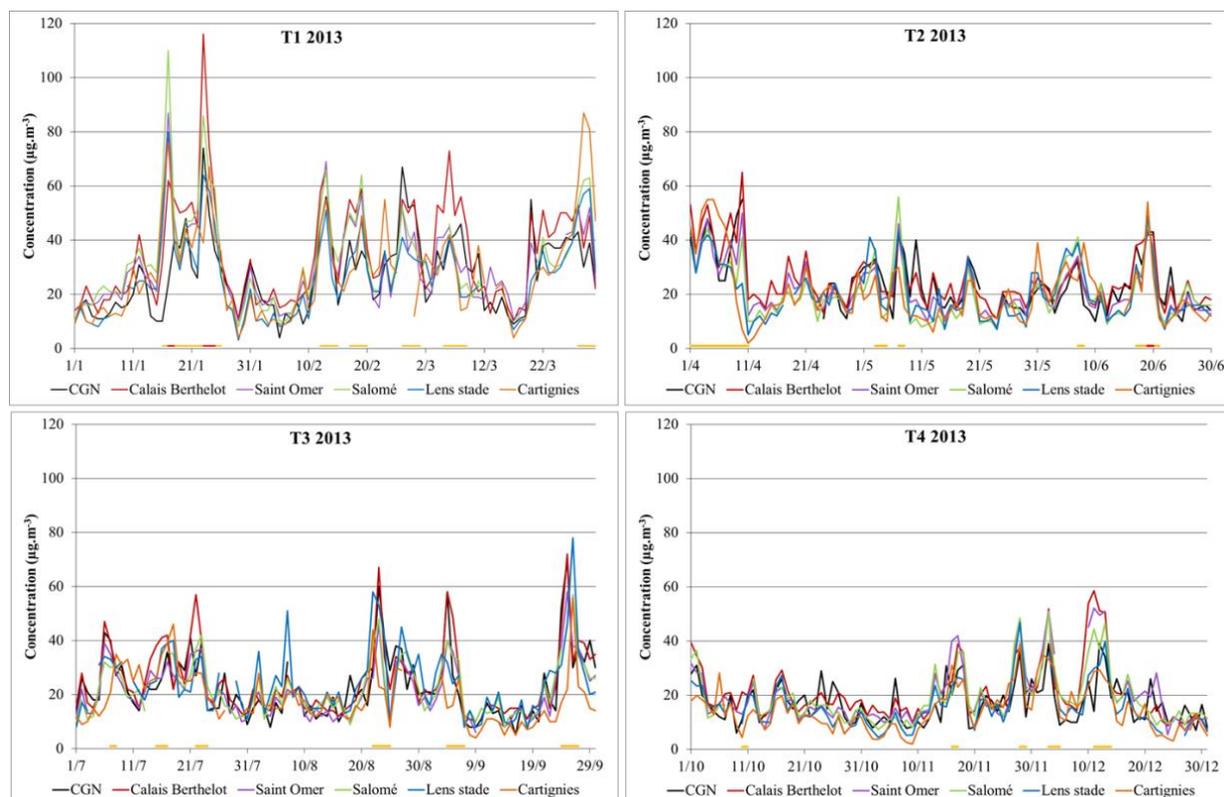


Figure 31 : Evolution de la concentration en PM<sub>10</sub> au CGN et sur 5 stations atmo NPdC au cours de l'année 2013 - Les traits orange et en rouge sous les courbes représentent les périodes de dépassement des seuils d'information et de recommandation et du seuil d'alerte, respectivement.

De même, les épisodes de pollution sont intervenus le plus souvent sur l'ensemble des stations ce qui reflète une pollution à l'échelle régionale. En 2013, 26 épisodes de pollution, soit 85 jours, concernant les PM<sub>10</sub> ont ainsi été observés, dont un seul était restreint à l'agglomération dunkerquoise, selon les mesures atmo. Le déclenchement du niveau d'information et de recommandation a eu lieu chaque mois, à l'occasion de un ou plusieurs épisodes. (Figure 32)

Le niveau d'alerte a été atteint pour les particules PM<sub>10</sub> à 4 reprises en 2013, dont trois fois pour la région entière et une fois pour l'agglomération dunkerquoise.

Le nombre total de jours de pollution aux particules fines a augmenté, de 77 jours en 2012 à 85 jours en 2013, avec toutefois une diminution notable du nombre de jours de pollution ayant atteint le niveau d'alerte passant de 21 jours en 2012 à 8 jours en 2013.

L'épisode de pollution le plus long de l'année s'est étendu du 16 au 26 janvier 2013 pour les particules PM<sub>10</sub> (avec le dépassement successif des deux niveaux). Cette situation a été favorisée par une absence de précipitation et des vents faibles. L'épisode a d'abord touché les agglomérations de Lens, Douai et Valenciennes, puis s'est étendu à toute la région. Au cours de cet épisode hivernal, atmo a constaté une part importante de la fraction des particules PM<sub>2,5</sub> dans les particules PM<sub>10</sub>.

On relève une succession de six épisodes de moindre ampleur entre le 12 février et le 10 mars (Figure 31 et Figure 32).

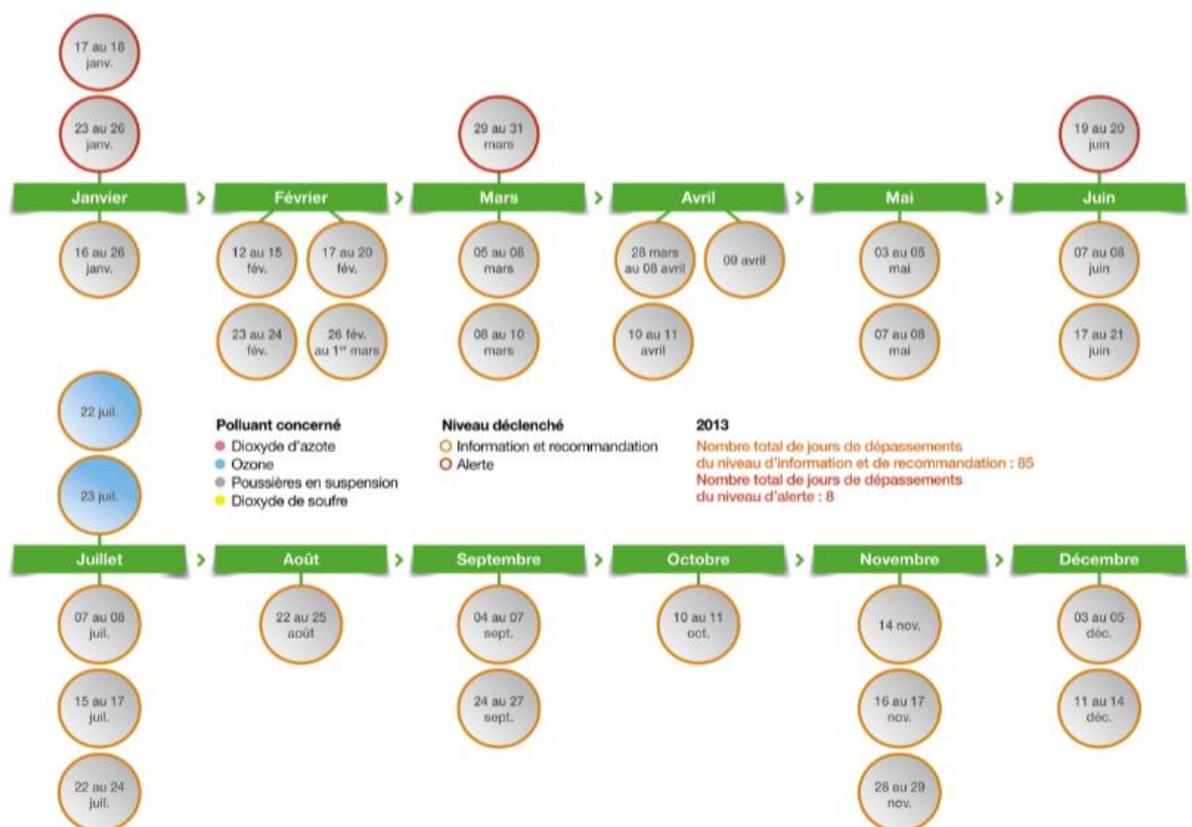


Figure 32 : Episodes de pollution au cours de l'année 2013 en Région Nord-Pas-de-Calais (source : rapport annuel d'activité atmo Nord-Pas-de-Calais, 2013)

Un épisode avec déclenchement du seuil d'alerte est intervenu entre le 29 et le 31 mars 2013. Au cours des trimestres 2 et 3, les épisodes relevés restent très proches de la limite journalière de 50 µg.m<sup>-3</sup>, à l'exception de ceux du 22 au 25 août, 4 au 7 septembre, 24 au 27 septembre. L'automne 2013 a été caractérisé par une succession de périodes dépressionnaires qui ont favorisé la dispersion et l'abattement des particules ; les épisodes de pollution relevés à la fin de l'automne ont été de durée relativement courte, sans déclenchement du seuil d'alerte.

En définitive, les épisodes de pollution aux particules sont intervenus en plus grande proportion entre la fin de l'automne et le début du printemps, en accord avec les tendances observées entre 2007 et 2011 au niveau de l'ensemble des stations de mesures des AASQA en France (Favez et al., 2012b).

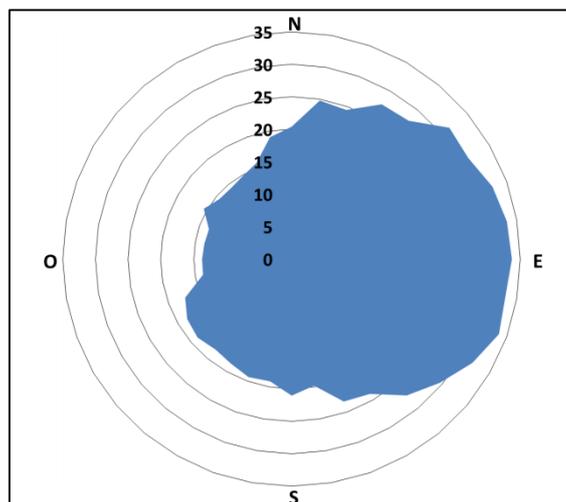


Figure 33 : Rose de concentration ( $\mu\text{g.m}^{-3}$ ) en  $\text{PM}_{10}$  au Cap Gris-Nez pour l'année 2013

La concentration moyenne en  $\text{PM}_{10}$  au Cap Gris-Nez en 2013 est de  $22,8 \mu\text{g.m}^{-3}$ . L'étude de la rose de concentration en  $\text{PM}_{10}$  montre que les concentrations moyennes de particules mesurées diffèrent sensiblement selon la direction des vents (Figure 33). Sous des vents marins (entre  $0^\circ$  et  $50^\circ$  et entre  $200^\circ$  et  $360^\circ$ ), la concentration en  $\text{PM}_{10}$  est en moyenne de  $18 \mu\text{g.m}^{-3}$ , tandis que celle-ci est de  $28 \mu\text{g.m}^{-3}$  pour des vents d'origine continentale ( $50^\circ$ - $200^\circ$ ), reflétant que les masses d'air issues de secteur continental renferment une concentration plus grande de particules.

En 2013, la concentration moyenne annuelle de  $\text{PM}_{10}$  au Cap Gris-Nez a atteint  $22,8 \mu\text{g.m}^{-3}$ . Ce niveau se situe entre la valeur relevée sur le site rural de Cartignies ( $20,3 \mu\text{g.m}^{-3}$ ) et celles de sites urbains comme Saint-Omer ( $22,9 \mu\text{g.m}^{-3}$ ) ou Calais Berthelot ( $26,5 \mu\text{g.m}^{-3}$ ).

En 2013, 26 épisodes de pollution concernant les  $\text{PM}_{10}$  ont été observés dans les stations du Nord-Pas de Calais, représentant au global 85 jours ayant entraîné un déclenchement de la procédure d'information et de recommandation. Les concentrations moyennes journalières y évoluent le plus souvent en suivant la même tendance, ce qui illustre l'existence d'un phénomène d'ampleur régionale.

Sur le site du Cap Gris-Nez, le seuil de  $50 \mu\text{g.m}^{-3}$  en moyenne journalière a été dépassé à 11 reprises en 2013. Les concentrations de  $\text{PM}_{10}$  relevées par des vents provenant de la façade maritime ne sont pas négligeables et peuvent atteindre  $25 \mu\text{g.m}^{-3}$ .

### 2.2.3. Composition chimique des $\text{PM}_{10}$

- *Moyenne annuelle*

Pour l'année 2013, 184 échantillons ont été analysés, parmi lesquels 122 représentent la sélection systématique de 1 jour sur 3. Rappelons que les autres échantillons correspondent aux jours de dépassement et à d'autres permettant de prendre en compte des secteurs de vent insuffisamment considérés en suivant les deux premiers critères. Une comparaison de la rose des vents pour la sous-série de 122 jours à celle obtenue pour l'année montre qu'elles sont similaires. La moyenne de concentration en  $\text{PM}_{10}$  en considérant ces 122 jours est de  $24,2 \mu\text{g.m}^{-3}$ , et apparaît légèrement supérieure (+7%) à la valeur moyenne annuelle de  $22,8 \mu\text{g.m}^{-3}$  calculée en considérant l'ensemble des mesures effectuées au cours de l'année 2013. Nous vérifions ainsi que la sous-série d'échantillons retenue pour analyse chimique est assez bien représentative des conditions relevées en moyenne sur l'ensemble de l'année.

Tableau 8 : Concentrations moyennes (arithmétiques et géométriques), médianes, écart-types ( $\mu\text{g.m}^{-3}$ ) et contributions moyennes (%) des espèces chimiques dans les  $\text{PM}_{10}$  collectées 1j/3 au CGN en 2013 (122 échantillons) ;  $[\text{PM}_{10}]_{\text{moy}} = 24,2 \mu\text{g.m}^{-3}$

Espèce	Moyenne arithmétique ( $\text{ng.m}^{-3}$ )	Moyenne géométrique ( $\text{ng.m}^{-3}$ )	Médiane ( $\text{ng.m}^{-3}$ )	Ecart-type ( $\text{ng.m}^{-3}$ )	% $\text{PM}_{10}$
Ca <sup>2+</sup>	210	155	138	258	0,9%
Cl <sup>-</sup>	2482	1148	1442	2558	10,3%
K <sup>+</sup>	140	118	119	89,7	0,6%
Mg <sup>2+</sup>	245	182	179	185	1,0%
Na <sup>+</sup>	2105	1594	1613	1517	8,7%
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	1937	777	876	2539	8,0%
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	5155	2829	2390	5922	21,3%
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	3009	2396	2216	2467	12,4%
EC	317	219	243	282	1,3%
OC	2140	1529	1440	2046	8,8%
Ag	0,04	0,02	0,03	0,06	< 0,001%
Al	74,6	42,9	51,53	85,8	0,3%
As	0,29	0,10	0,14	0,38	0,001%
Ba	1,85	0,50	0,58	3,13	0,008%
Bi	0,21	0,01	0,01	0,44	0,001%
Cd	0,11	0,04	0,04	0,15	< 0,001%
Ce	0,12	0,05	0,07	0,12	< 0,001%
Co	0,18	0,11	0,12	0,20	0,001%
Cr	1,06	0,73	0,97	1,06	0,004%
Cu	2,22	1,01	1,13	3,08	0,009%
Fe	104	50,9	48,6	130	0,4%
La	0,17	0,11	0,13	0,13	0,001%
Mn	4,31	1,39	1,37	7,03	0,018%
Ni	4,69	2,49	3,11	5,12	0,019%
Nb	0,01	0,01	0,01	0,02	< 0,001%
P	11,0	7,42	7,39	12,8	0,045%
Pb	4,67	2,51	2,52	5,62	0,019%
Rb	0,29	0,17	0,14	0,34	0,001%
Sb	0,59	0,32	0,40	0,61	0,002%
Sc	2,77	1,48	2,93	2,76	0,011%
Sn	0,69	0,30	0,35	0,88	0,003%
Sr	1,75	1,45	1,60	1,05	0,007%
Te	0,21	0,05	0,13	0,30	0,001%
Ti	4,61	2,05	2,48	6,23	0,019%
Tl	0,02	0,01	0,01	0,05	< 0,001%
V	5,68	3,35	3,30	6,19	0,023%
Zn	14,6	5,58	5,98	21,6	0,060%
Lévoglucosan	55,2	9,1	13,0	110	0,228%
Mannosan	7,6	2,1	3,0	12,2	0,031%
Galactosan	3,2	0,2	0,4	7,2	0,013%
Arabitol	10,7	2,3	2,8	25,1	0,044%
Mannitol	10,7	3,6	4,1	20,0	0,044%
Glucose	6,7	1,3	3,1	9,9	0,028%
Mannose	1,9	0,2	0,9	2,8	0,008%

La masse des  $\text{PM}_{10}$  est expliquée à 68,6% en moyenne par 6 espèces uniquement, comme le Tableau 8 le montre :  $\text{NO}_3^-$ , OC,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Na}^+$  et  $\text{NH}_4^+$ . Les autres espèces analysées contribuent peu à la masse totale de particules en suspension : entre 0,2 et 1,3% pour Al, Fe, Mg, K, Ca et EC, entre 0,01% et 0,23% pour les traceurs de combustion de biomasse et moins de 0,1% pour les traceurs des émissions biogéniques primaires et les éléments traces métalliques. Néanmoins, leur suivi s'avère important car certaines de ces espèces chimiques sont spécifiques à des sources d'émission en particulier, et l'exploitation de ce type de données est essentielle pour l'identification

ainsi qu'à la quantification de leur contribution. De plus, certains éléments, à savoir Pb, Ni, As et Cd font l'objet d'une réglementation et nécessitent un intérêt tout particulier en dépit de leur faible contribution à la masse de PM<sub>10</sub>. Pour le Cap Gris-Nez en 2013, les valeurs de concentration de ces éléments apparaissent bien inférieures aux valeurs limites annuelles fixées à 250 ng.m<sup>-3</sup>, 20 ng.m<sup>-3</sup>, 6 ng.m<sup>-3</sup> et 5 ng.m<sup>-3</sup> respectivement pour les éléments Pb, Ni, As et Cd.

Lors de la combustion du bois, des émissions atmosphériques très spécifiques se produisent sous la forme de sucres, comme le lévoglucosan, le mannosan et le galactosan. Ces derniers se forment principalement au moment de la dégradation thermique de la cellulose et de l'hémicellulose (Fraser and Lakshmanan, 2000; Fuller et al., 2014; Puxbaum et al., 2007; Schauer et al., 2001; Schmidl et al., 2008; Simoneit, 2002). De manière générale, on relève en ordre décroissant de concentration : lévoglucosan > mannosan > galactosan, avec des concentrations en moyenne annuelle au Cap Gris-Nez de 55,2 ng.m<sup>-3</sup>, 7,6 ng.m<sup>-3</sup> et 3,2 ng.m<sup>-3</sup> respectivement. A titre de repère, ces niveaux de concentration sont supérieurs à ceux d'éléments traces métalliques, en particulier dans le cas du lévoglucosan.

La contribution des émissions naturelles végétales à la teneur en particules dans l'air a été relativement peu étudiée jusqu'à présent. Comme dans le cas de l'impact de la combustion de la biomasse, des études relativement récentes ont permis de proposer des traceurs d'émissions biogéniques primaires. Ceux-ci ont été recherchés dans des particules issues de fragments de végétaux mais aussi dans les sols qui renferment une fraction biologique. Les principaux traceurs biogéniques primaires proposés sont l'arabitol, le mannitol, le mannose et le glucose.

L'arabitol et le mannitol apparaissent comme deux traceurs de la présence de spores fongiques dans l'air (Bauer et al., 2008), sans exclure leur émission par les sols. Le mannose et le glucose sont davantage associés à la présence de pollens et de débris de végétaux (écorce et feuilles) (Simoneit et al., 2004; Speranza et al., 1997). Des concentrations moyennes équivalentes d'arabitol et mannitol (10,7 ng.m<sup>-3</sup>), ont été observées au Cap Gris-Nez en 2013, tandis que celles de glucose et de mannose atteignent 6,7 et 1,9 ng.m<sup>-3</sup>.

- *Répartition par groupe d'espèces chimiques*

Certaines espèces chimiques sont reliées entre elles au sein des particules en fonction de leur origine. On distingue ainsi les sels marins, les poussières crustales, les aérosols inorganiques secondaires et les particules carbonées, qui présentent chacun des spécificités de composition chimique. La méthode de calcul de l'évaluation massique des groupes d'espèces chimiques est donnée en annexe 1.

Une répartition par groupe d'espèces chimiques permet ainsi d'avoir une première explication de l'origine des particules qui composent les PM<sub>10</sub> et d'envisager une comparaison avec les observations disponibles pour d'autres sites d'études (Figure 34 et Figure 35).

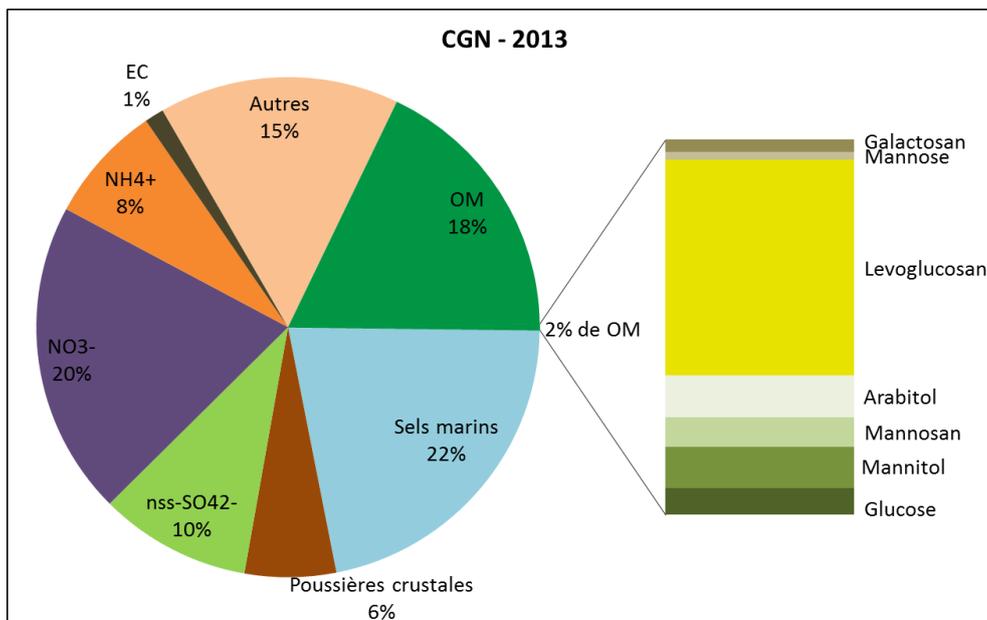


Figure 34 : Répartition des  $PM_{10}$  par type d'aérosol pour l'année 2013 au Cap Gris-Nez

Pour 2013, au Cap Gris-Nez, les aérosols inorganiques secondaires constitués des espèces nitrate  $NO_3^-$ , ammonium  $NH_4^+$  et de la part non marine des sulfates  $nss-SO_4^{2-}$  contribuent le plus à la concentration de  $PM_{10}$ , ils représentent 38% de leur masse ( $9,5 \mu g.m^{-3}$ ). Les sels marins ( $5,5 \mu g.m^{-3}$ , 22%) et la matière organique ( $4,5 \mu g.m^{-3}$ , 18%) sont également deux constituants principaux des  $PM_{10}$ . Dans de moindres proportions, la part des poussières crustales s'élève à  $1,5 \mu g.m^{-3}$  (6%) et celle du carbone élémentaire EC à  $0,3 \mu g.m^{-3}$  (1%). Mentionnons que 15% de la masse des  $PM_{10}$  en moyenne mesurée à partir de la technique de jauge bêta (MP 101 M RST) ne sont pas expliqués par les analyses chimiques. Cette différence s'expliquerait essentiellement par la présence d'eau fortement liée aux particules (Harrison et al., 2003), sans ne pouvoir exclure une volatilisation partielle de composés organiques légers.

Nous avons voulu comparer ces résultats avec ceux obtenus dans le cadre d'études menées également sur de longues durées, non seulement dans la région Nord-Pas-de-Calais à Lens (site de fond urbain CARA, Waked et al. (2014)) mais aussi dans des régions ou pays voisins de notre site d'étude : Rouen (site de fond urbain CARA, (Favez et al., 2012a)), Flandre belge, (sites de typologies variées CHEMKAR, (Vercauteren et al., 2011)), Royaume Uni, (site rural, 2005-2006 (Yin and Harrison, 2008)).

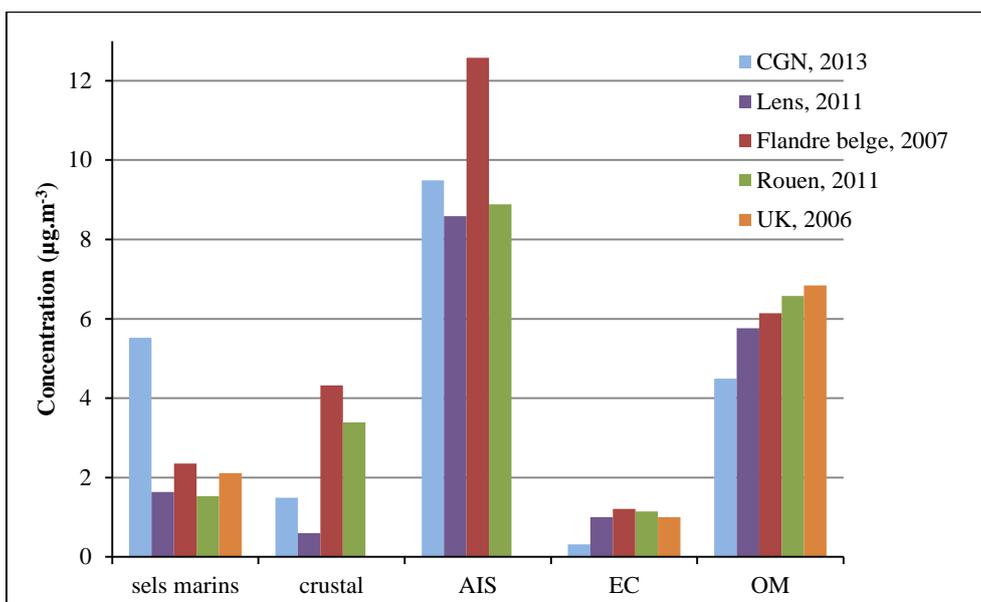


Figure 35 : Comparaison de la concentration des différents groupes d'espèces chimiques ( $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) au Cap Gris-Nez avec d'autres sites

Les aérosols inorganiques secondaires sont les constituants majoritaires des  $\text{PM}_{10}$ , quels que soient les sites considérés. La valeur la plus élevée est relevée sur le site belge et pourrait s'expliquer en partie par les conditions météorologiques rencontrées au cours de l'année 2007 qui ont été défavorables à l'abatement et la dispersion des PM. Pour les sites de comparaison, la matière organique apparaît être le second contributeur à la masse des  $\text{PM}_{10}$ , ce qui constitue une différence avec les observations au Cap Gris-Nez. Il ressort nettement aussi que le carbone élémentaire est entre 3 et 4 fois plus concentré sur les sites de fond urbain, en comparaison avec le Cap Gris-Nez. Les principaux contributeurs à ces fractions particulières sont des processus de combustion (trafic, chauffage domestique, industries). Il n'est donc pas surprenant d'enregistrer les concentrations les plus faibles d'OM et EC sur le site du Cap Gris-Nez.

Concernant les poussières crustales ou minérales, des concentrations plus élevées sur les sites de fond urbain (Rouen et Flandre belge) s'expliquent par la remise en suspension de particules notamment par le trafic, en accord avec des observations antérieures sur différents sites européens (Putaud et al., 2004). La valeur obtenue sur le site de Lens est relativement faible ; néanmoins, ceci est à rapprocher de la concentration moyenne de  $\text{PM}_{10}$  de  $21 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  mesurée en 2011-2012, contre  $24,4 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  au Cap Gris-Nez en 2013.

Quant aux sels marins, leur niveau de concentration est généralement dépendant de la distance à la façade maritime des sites de mesure (Manders et al., 2010; Putaud et al., 2004). A titre de repère, une compilation de données sur les sels marins pour 89 sites européens et une modélisation à l'échelle de l'Europe de l'ouest, a permis d'estimer leur concentration à des valeurs comprises entre  $0,3$  et  $13 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , avec en particulier des valeurs de l'ordre de  $5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  pour les côtes de la Mer du Nord (Manders et al., 2010). Des niveaux de concentration très proches sont enregistrés au niveau des sites de Rouen, Lens et en Flandres (entre  $1,7$  et  $2,3 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) qui sont distants d'au moins 50 kilomètres de la côte tandis que la valeur de  $5,5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  observée au Cap Gris-Nez est directement liée au caractère très exposé aux entrées maritimes de ce site.

- *Effets saisonniers*

La répartition des groupes d'espèces chimiques au Cap Gris-Nez a également été déterminée pour chaque trimestre 2013 (Figure 36). La part des sels marins est très variable : de 12% en été à 35% en automne pour une moyenne annuelle de 22%. La part des poussières crustales est, quant à elle, constante tout au long de l'année, proche de 6%. La part des ions inorganiques secondaires est très

variable selon le trimestre. Elle va de 22% en automne à 49% en hiver. Ceci est à mettre en relation avec la concentration totale en  $PM_{10}$  qui va de  $19 \mu g.m^{-3}$  en automne à  $28 \mu g.m^{-3}$  en hiver.

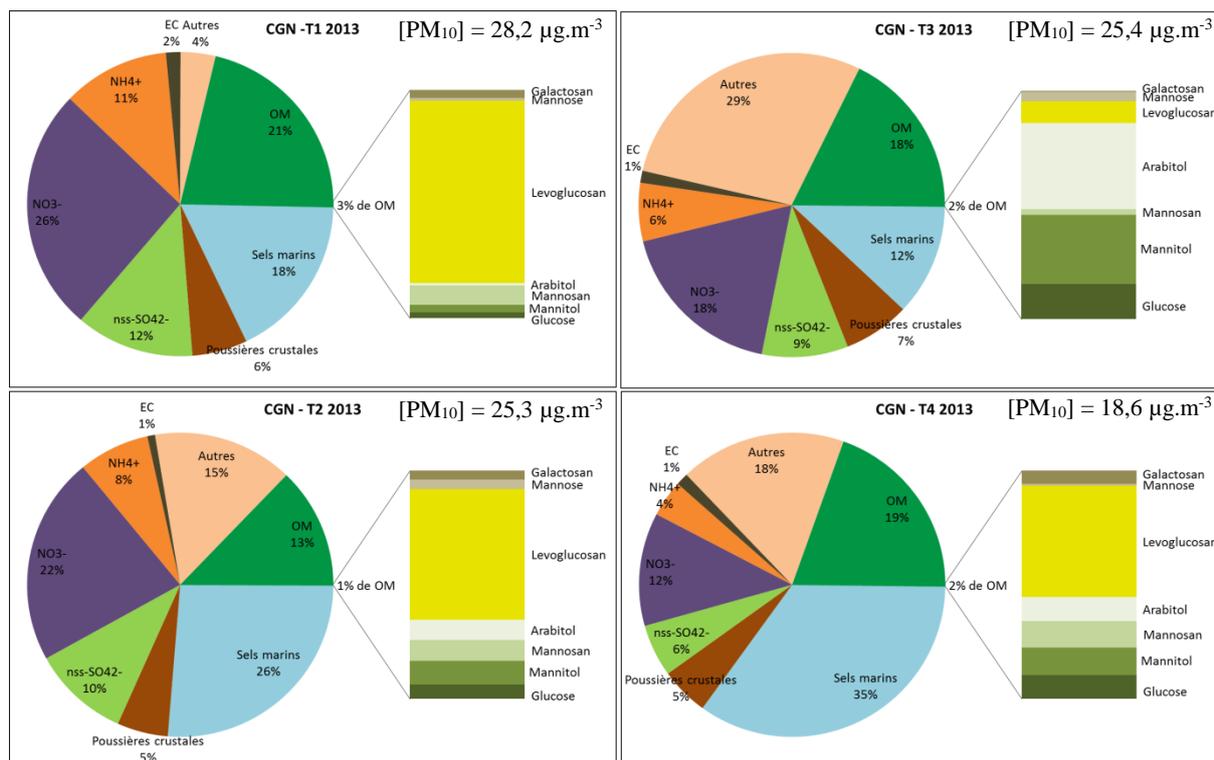


Figure 36 : Répartition des espèces chimiques des  $PM_{10}$  pour chaque trimestre de l'année 2013 au Cap Gris-Nez

Le carbone élémentaire constitue une part quasi constante (proche 1%) des  $PM_{10}$  dans notre étude. La matière organique varie faiblement avec une moyenne annuelle de 18%, en notant toutefois que la proportion de OC la plus faible a été observée au printemps (13%).

Les traceurs organiques dans leur globalité représentent une part à peu près constante de la matière organique. Cependant, leur distribution entre les différentes espèces varie selon les saisons. Ainsi, la Figure 36 : montre clairement que les traceurs de combustion de biomasse sont plus abondants que les traceurs de source biogénique en hiver, au printemps et en automne, alors que la situation contraire – majorité de composés biogéniques- est observée l'été. Une observation similaire avait également été constatée pour le site CARA de Lens en 2011-2012 (Waked et al., 2014).

La composition des  $PM_{10}$  présente une variation saisonnière, notamment au niveau :

- des ions inorganiques secondaires, représentant jusque 49% des  $PM_{10}$  en hiver, contre 27 et 22%, en été et en automne respectivement ;
- de la matière organique, dont une fraction est associée à la combustion de la biomasse en hiver, alors que des contributions des émissions biogéniques primaires sont plus significatives en été ;
- des sels marins qui contribuent peu à la masse des  $PM_{10}$  en été (12%) contrairement à la situation observée en automne (35%) ;
- la part des poussières crustales est relativement constante tout au long de l'année (6%).

#### • Les éléments traces

Les concentrations moyennes ont été comparées à celles obtenues au cours d'études précédentes portant sur les  $PM_{10}$  en région Nord-Pas-de-Calais et sur d'autres sites nationaux et belges (Gaudry et al., 2008; Hleis, 2010; Lamaison, 2006; Vercauteren et al., 2011). Chaque étude ayant été réalisée sur

des périodes différentes et au cours d'années différentes, ces comparaisons doivent donc être considérées avec précaution.

Parmi l'ensemble des sites de comparaison, les sites de Grande-Synthe et Dunkerque sont des sites urbains sous influence industrielle, le site de Saclay est proche d'une voie avec un trafic très important, le site de Montagney est rural et les sites belges sont de typologies variées.

Pour l'ensemble des éléments traces considérés (Figure 37), les concentrations relevées au Cap Gris-Nez sont inférieures (Ba, Cd, Co, La, Ni, Pb et V) à celles mesurées sur les autres sites non ruraux, voire très inférieures pour certains éléments (As, Cr, Cu, Pb, Mn et Zn). Les concentrations obtenues au Cap Gris-Nez sont assez proches de celles enregistrées sur le site rural de Montagney (proche de Besançon). Ba est un élément aux origines variées, terrigène et industrielle. Cela explique que les concentrations de notre site ne soient que peu inférieures à celles des autres sites d'étude. Cu est connu pour être émis par le trafic routier, plus précisément par l'usure des freins des véhicules (Adachi and Tainosho (2004); Gietl et al. (2010)). Il est donc émis en plus grande quantité en zone urbaine et à proximité des grands axes routiers. Sr est surtout émis par la mer et est ici mesuré à un niveau dit de fond atmosphérique. Les éléments Ni et V sont connus pour être des traceurs de la combustion de fioul lourd, ils sont trouvés en concentration légèrement inférieure au Cap Gris-Nez, par rapport à Dunkerque et à la Flandre. Cependant, les concentrations de ces éléments sont plus importantes au Cap Gris-Nez que sur le site proximité trafic de Saclay. Les observations concernant Co sont les mêmes que pour Ni et V.

Pb, Mn et Zn sont des éléments émis par les industries, en particulier les activités métallurgiques et sidérurgiques. Les concentrations plus élevées à Dunkerque par rapport au Cap Gris-Nez et aux autres sites s'expliquent par la proximité des sources émettrices à Dunkerque.

Concernant les deux autres éléments réglementés (en plus de Ni et Pb, déjà mentionnés plus haut), les concentrations en As et Cd sont les plus faibles dans cette étude. Toutefois, les différences ne sont pas les mêmes en fonction du site de comparaison. En effet, les concentrations au Cap Gris-Nez sont environ 10 fois plus faibles que celles mesurées à Dunkerque par Gaudry et al. (2008) mais seulement 2 fois plus faibles que les concentrations relevées à Saclay ou à Montagney dans la même étude.

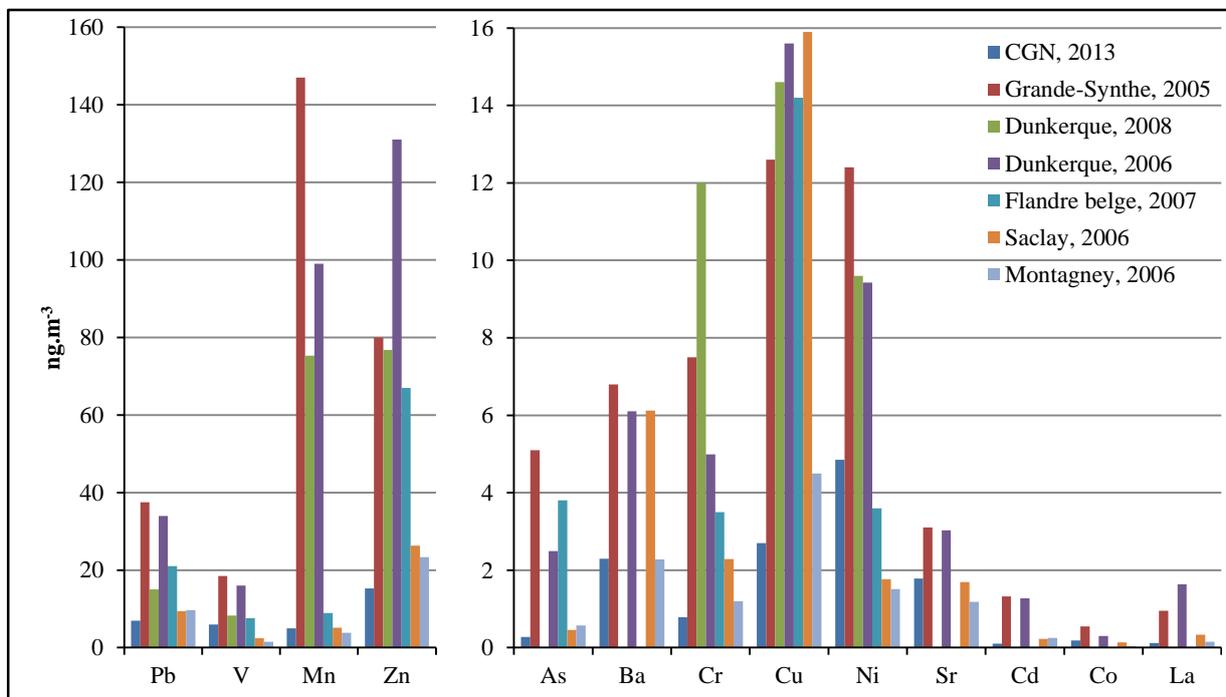


Figure 37 : Comparaison des concentrations en éléments traces au Cap Gris-Nez avec celles observées en différents sites nationaux

#### 2.2.4. Etude des épisodes de dépassement de la valeur limite de concentration de PM<sub>10</sub>

- *Bilan de l'année 2013*

En 2013, 26 épisodes de pollution (répartis sur 85 jours) concernant les PM<sub>10</sub>, dont un seul était restreint à l'agglomération dunkerquoise, ont ainsi été signalés par atmo Nord-Pas-de-Calais. Le déclenchement du niveau d'information et de recommandation a eu lieu chaque mois, à l'occasion de un ou plusieurs épisodes (Figure 32). Le niveau d'alerte a été atteint pour les particules PM<sub>10</sub> à 4 reprises en 2013, dont trois fois pour la région et une fois pour l'agglomération dunkerquoise.

- *Variation de la composition chimique en fonction des teneurs de PM<sub>10</sub>*

Il a été examiné de quelle manière la composition chimique des particules pouvait varier en fonction de la gamme de concentration des PM<sub>10</sub> et notamment en situation de dépassement de la valeur limite journalière de 50 µg.m<sup>-3</sup>. Pour ce faire, nous avons étudié la composition d'échantillons collectés en situation de "basses teneurs" ([PM<sub>10</sub>] < 15 µg.m<sup>-3</sup>), ainsi qu'en situation de "hautes teneurs" ([PM<sub>10</sub>] > 50 µg.m<sup>-3</sup>) en comparaison à la composition moyenne des échantillons sur l'année 2013 (Figure 38).

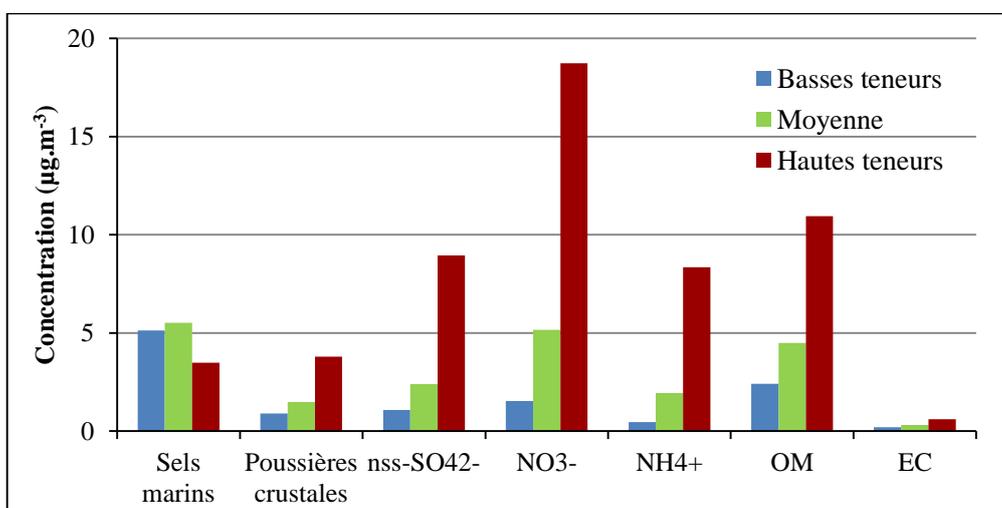


Figure 38 : Concentrations des espèces chimiques au Cap Gris-Nez, pour l'année 2013, pour les épisodes de basses teneurs (<15µg.m<sup>-3</sup>), hautes teneurs (>50µg.m<sup>-3</sup>) - Comparaison avec la concentration moyenne

Lors d'épisodes de faibles concentrations en PM<sub>10</sub>, la concentration de sels marins s'élève à 5,2 µg.m<sup>-3</sup> contre 6,1 µg.m<sup>-3</sup> en moyenne sur l'année et 3,7 µg.m<sup>-3</sup> lors d'épisodes de fortes concentrations, ce qui représente 40%, 22% et 5% de la masse de PM<sub>10</sub> respectivement (Figure 39). La part des sels marins apparaît donc majoritaire lors d'épisodes de faibles concentrations et minoritaire lors d'épisodes de forte teneur. A l'inverse, nous pouvons constater que les concentrations de poussières crustales, OM, EC augmentent fortement, tandis que la concentration en espèces inorganiques secondaires NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup> est multipliée en situation de dépassement (Figure 38). Le rapport NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> est quelque peu modifié avec la variation de la concentration en PM<sub>10</sub>. En effet, il est de 1,4 lors des périodes où la concentration en PM<sub>10</sub> est inférieure à 15 µg.m<sup>-3</sup>. Il augmente à 2,1 en situation moyenne ou au cours des épisodes de forte concentration. De plus, pour les jours hors dépassement, le rapport NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> vaut 1,9. A Rouen en 2010-2011, (Favez et al., 2012a) avaient observé un rapport de 1,5 pour les jours hors dépassement de 50 µg.m<sup>-3</sup> et de 3 pour les jours de dépassement. Dans notre zone d'étude, il apparaît ainsi un écart moindre du rapport NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> entre la situation hors dépassement et celle de dépassement. Ceci pourrait être expliqué par une plus grande variabilité de ce rapport en situation de dépassement (entre 1 et 4,8).

Si l'on s'intéresse à l'évolution de la proportion de chacun des types de particules (Figure 16), il apparaît que les parts de poussières crustales (5,9 à 6,8%), de OM (17,8 à 18,2%) demeurent relativement constantes quelle que soit la situation considérée. En revanche, la proportion de nss-

SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> et surtout NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup> augmente fortement entre la situation "basses teneurs" et "fortes teneurs" passant respectivement de 8,2 à 14,8%, de 3,5 à 13,8%, et de 11,6 à 31,0%. La part de EC passe quant à elle de 1,5 à 1,0%, tandis que la proportion de sels marins diminue avec l'augmentation des teneurs en PM<sub>10</sub> (de près de 39 à 6%).

Les situations de fortes teneurs en PM<sub>10</sub> sont donc caractérisées par une forte augmentation des teneurs en espèces associées aux aérosols inorganiques secondaires. Ce phénomène bien connu illustre le poids du nitrate d'ammonium dans les AIS, lors des épisodes de dépassement (Favez et al., 2012b).

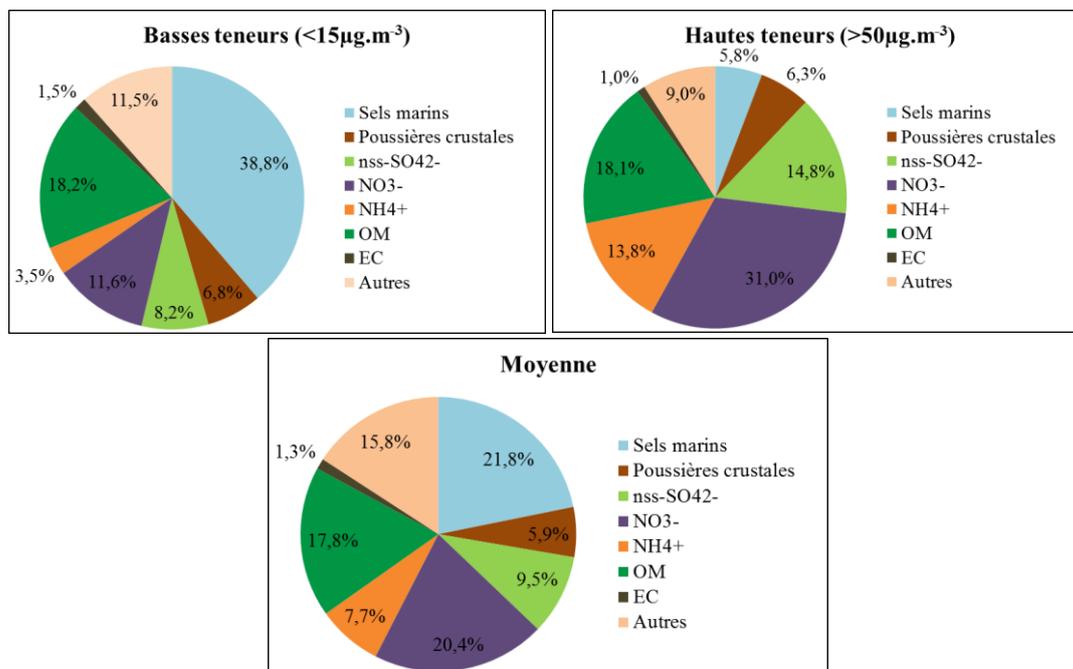


Figure 39 : Répartition des différents groupes d'espèces chimiques au Cap Gris-Nez, pour l'année 2013, pour les épisodes de basses teneurs (<15µg.m<sup>-3</sup>), hautes teneurs (>50µg.m<sup>-3</sup>) - Comparaison avec la répartition moyenne

En situation de dépassement de la limite journalière de 50 µg.m<sup>-3</sup>, la proportion en espèces inorganiques secondaires (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> et surtout NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> croît fortement pour atteindre près de 60% de la masse des PM<sub>10</sub>. Les proportions de OM (18%) et particules crustales (6%) demeurent constantes, tandis que la part de sels marins diminue (6%).

- *Analyse des épisodes*

Nous avons voulu examiner quelles étaient les conditions météorologiques rencontrées lors des épisodes de dépassement ou de fortes concentrations et établir ainsi si certaines orientations de vent, conditions de température et/ou origines de masse d'air se présentaient comme des situations propices à une augmentation des niveaux de PM<sub>10</sub>. Pour soutenir cette analyse, nous avons rassemblé en annexe 2, les évolutions temporelles des teneurs en PM<sub>10</sub>, des températures, pression atmosphériques, hauteur de pluie, direction et vitesse de vent pour chacun de trimestres de l'année 2013. En complément, nous avons illustré l'étude de certains événements marquants en s'appuyant sur des rétrotrajectoires de masse d'air (Draxler and Rolph, 2012). Ces dernières peuvent contribuer à mieux comprendre l'origine de particules, et en particulier l'importance des phénomènes de transport sur de longues distances. Nous avons choisi de tracer les rétrotrajectoires à 72h et pour les 48 h qui précèdent la journée de l'épisode de concentrations élevées (Jpic) à raison d'une trajectoire tous les

12 heures; ainsi pour chaque épisode étudié, 5 rétrotrajectoires seront considérées correspondant à l'origine de la masse d'air à Jpic , Jpic - 12h , Jpic - 24h, Jpic - 36h, Jpic - 48h.

- **Période du 17 au 25/01/2013**

Sur la période du 17 au 25/01/2013 marquée par un temps plutôt froid ( $T < 0^{\circ}\text{C}$ ), deux journées où des valeurs de concentrations en  $\text{PM}_{10}$  élevées sont relevées au Cap Gris-Nez: les 20 et 23 janvier 2013. L'examen des directions de vent local montre que celui-ci, initialement orienté de secteur nord-ouest, avant cette période vient s'établir à l'est sud-est en début de période, pour se stabiliser au secteur est. Le premier maximum de concentration est alors observé au bout de 3 jours de vent dans ces conditions. Après une légère remontée des températures, associée à un vent changeant de direction (passage au S puis NO) et à un épisode neigeux entraînant une légère baisse des teneurs en  $\text{PM}_{10}$ , les valeurs de ces dernières repartent à la hausse pour atteindre un maximum de  $74 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Ce phénomène est associé à un retour des vents de quart SE et à des températures devenues à nouveau plus froides.

L'examen des rétrotrajectoires de masse d'air (Figure 40) montre clairement l'implication des transports longue distance : les jours précédents les deux pics observés, les masses d'air avaient connu un parcours majoritairement continental, traversant l'est de l'Europe dans le premier cas, puis davantage le territoire français, dans le second cas.

Un épisode pluvieux associé à une montée des températures et à un vent s'orientant au S-SO met fin à cet épisode.

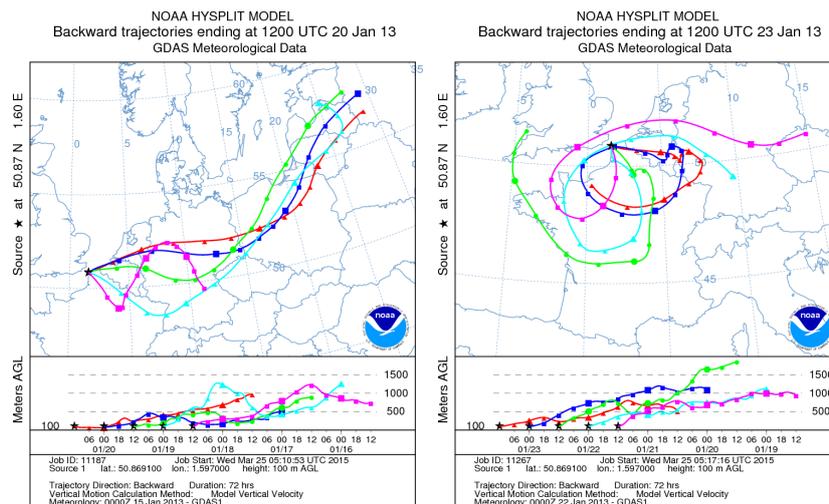


Figure 40 : Rétrotrajectoires de masse d'air (72h) au Cap Gris Nez, pour les 48h précédant les épisodes de concentrations élevées des 20 et 23 janvier 2013

- **Période du 10/02 au 12/03/2013**

La période du 10 Février au 12 Mars 2013 est marquée par l'occurrence de trois périodes de concentrations élevées centrées sur les journées des 13/02, 26-28/02 et 8/03.

Les températures oscillent entre  $-3^{\circ}\text{C}$  et  $9^{\circ}\text{C}$  et le vent apparait majoritairement orienté à l'est. Le premier épisode intervient alors que les températures sont négatives les deux jours précédents cette période, les vents étaient orientés de quart sud est. Les rétrotrajectoires de masse d'air confirment une influence typiquement continentale (Figure 41 :).

La situation est sensiblement la même pour le second épisode (26/02/2013). Les vents repassés provisoirement de la direction nord, associés à des masses d'air traversant la Mer du Nord basculent progressivement à l'est. Ce phénomène s'accompagne d'une augmentation progressive des teneurs en  $\text{PM}_{10}$ .

Entre le 26/02/2013 et le 8/03/2013, la pression atmosphérique diminue sensiblement. La vitesse de vent ne fait que décroître, et la direction de vent durablement de nord-est, en début de période devient très variable ; nous sommes en présence de conditions météorologiques compatibles avec une atmosphère très stagnante et où la dispersion n'est pas favorisée. L'examen des rétrotrajectoires sur les 24h précédant la journée du 8 mars (Figure 41), confirme le caractère stagnant des conditions météorologiques : les trajectoires sont exclusivement continentales et montrent une distance parcourue très courte le 7 Mars. Le 8 Mars, les vents locaux sont observés au sud-sud-est, ce que l'on peut mettre en parallèle avec la trajectoire des masses d'air échantillonnées, ayant traversé pour l'essentiel le territoire français ou le sud de l'Europe. Un évènement pluvieux et des vents s'orientant au NO mettent fin à cet épisode.

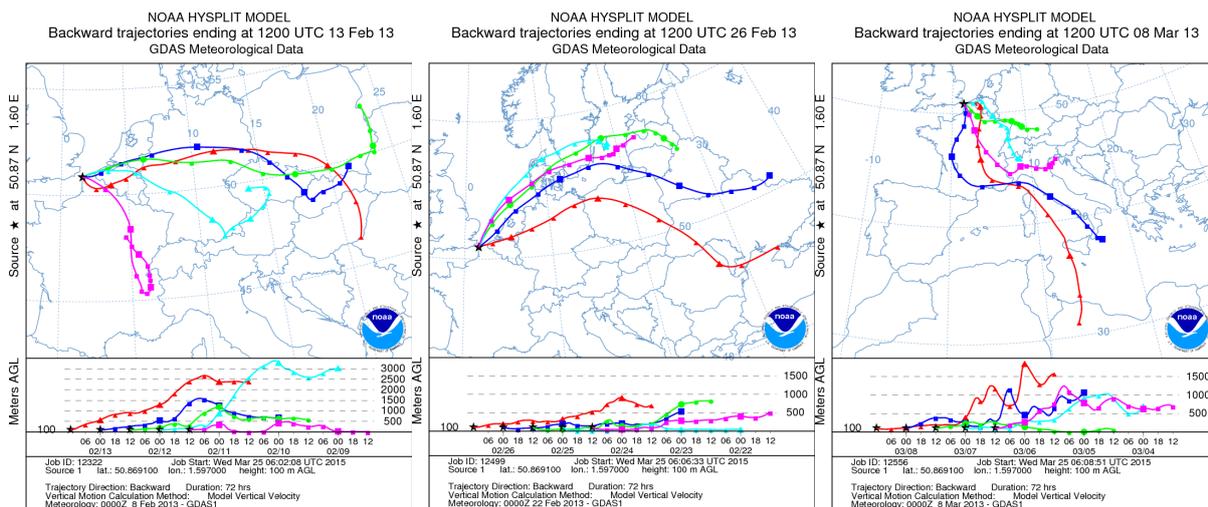


Figure 41 : Rétrotrajectoires de masse d'air (72h) au Cap Gris Nez, pour les 48h précédant les épisodes de concentrations élevées des 13, 26 février et 8 mars 2013

#### - Période du 19/03 au 11/04/2013

La période du 19 mars au 11 Avril, fait suite à 8 jours de précipitations plus ou moins marquées. Les niveaux de PM<sub>10</sub> apparaissent ici plutôt constants et élevés (40 µg/m<sup>3</sup> en moyenne). Les vents sont établis durablement à l'est. Deux maxima sont relevés les 20 mars et 10 avril. Le premier fait suite à des directions de vent d'apparence marine mais les rétrotrajectoires de masses d'air montre une situation plus complexe avec un flux tout d'abord de sud (trajectoire finale continentale) s'orientant à l'est, le 20 mars (Figure 42). Lors du second épisode, les masses d'air apparaissent typiquement continentales de France et d'Europe du nord. Cet épisode prend fin avec l'arrivée d'une dépression accompagnée par le passage des vents au sud-ouest et la pluie.

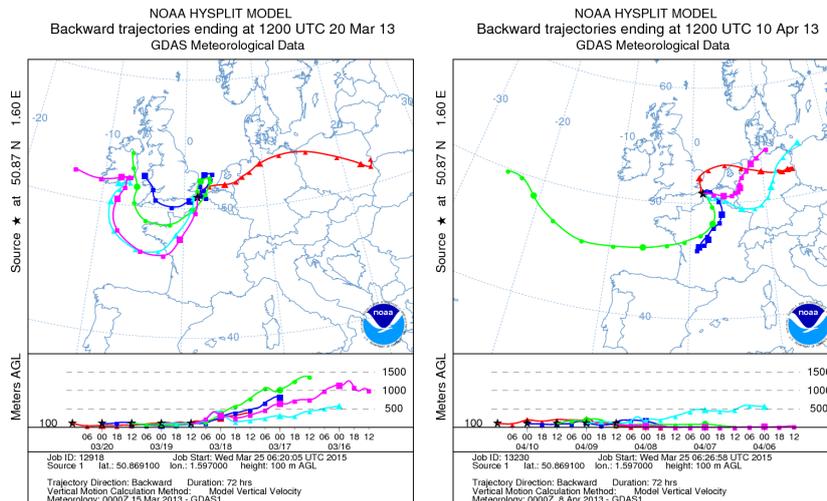


Figure 42 : Rétrotrajectoires de masse d'air (72h) au Cap Gris Nez, pour les 48h précédant les épisodes de concentrations élevées des 20 mars et 10 avril 2013

- Période du 15/06 au 21/06/2013

Sur la période du 15 au 21 juin 2013, la teneur en PM<sub>10</sub> mesurée augmente graduellement puis décroît fortement le 21. Notons toutefois que sur la période mentionnée le phénomène est beaucoup moins marqué sur le site du Cap Gris-Nez que sur les autres stations régionales (Figure 31). Les directions de vent local oscillent entre O-SO et E-NE. Quelques précipitations sont observées mais celles-ci ne sont pas suffisantes pour influencer efficacement sur les teneurs en PM<sub>10</sub>. Les vitesses de vent de l'ordre de 10 m/s en début de période s'établissent à moins de 5 m/s en fin de période. Un maximum de concentration en PM<sub>10</sub> est observé le 20 juin dans des conditions de vents revenus passagèrement au nord-est avec des vitesses très faibles (2 à 3 m/s). Les rétrotrajectoires de masse d'air calculées pour les 24 heures précédant cet épisode montrent que les directions de vents SO observées localement sont associées à des trajectoires continentales et non marines comme cela aurait pu être supposé (Figure 43). Les directions de vent NE, quant à elles, sont associées à des masses d'air ayant traversé les Pays-Bas, puis la Mer du Nord. Cet épisode prend fin avec l'arrivée de vents forts de sud-ouest de vitesse plus élevée, et de conditions pluvieuses.

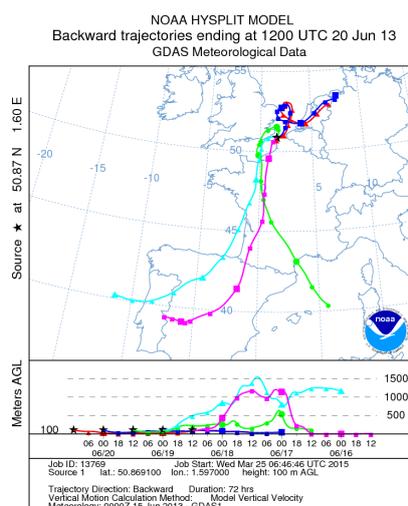


Figure 43 : Rétrotrajectoires de masse d'air (72h) au Cap Gris-Nez, pour les 48h précédant l'épisode du 20 juin 2013

- **Période du 19/08 au 10/09/13**

Sur la période allant du 19 Août au 10 Septembre 2013, les directions de vent apparaissent très changeantes. La température moyenne journalière varie entre 12 et 21°C. Deux pics de concentrations en PM<sub>10</sub> sont relevés les 23/08 et 4/09. Ces deux épisodes se produisent alors que les vents initialement d'ouest repassent au secteur est. Les vitesses de vents sont alors très faibles, de l'ordre de 1 à 3 m/s. Les rétrotrajectoires de masses d'air calculées pour les 24h précédant cet épisode illustrent très bien cette situation (Figure 44) : les masses d'air proviennent tout d'abord de l'ouest, traversant le Royaume-Uni pour finalement atteindre le territoire français ainsi que les pays nord-frontalier où elles vont se charger davantage en particules avant d'atteindre le Cap Gris-Nez par flux d'est. Ces deux pics sont observés conjointement avec une augmentation sensible des températures moyennes, probablement due à un changement de régime météorologique. Cet épisode prend fin brutalement avec le basculement des vents dans la direction sud-ouest.

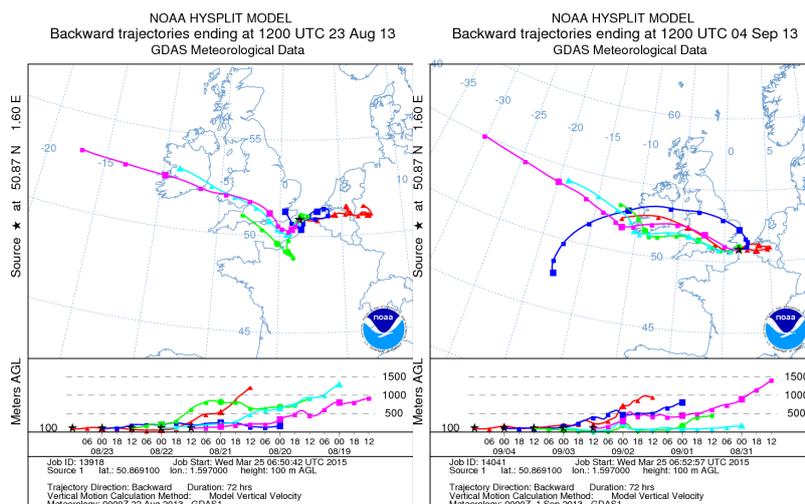
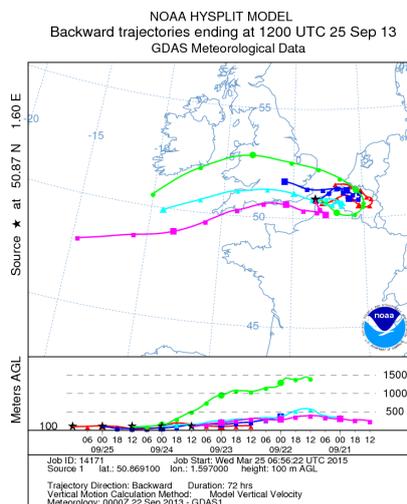


Figure 44 : Rétrotrajectoires de masse d'air (72h) au Cap Gris-Nez, pour les 48h précédant l'épisode des 23 Août et 4 Septembre 2013

- **Période du 20/09 au 4/10/2013**

Les observations durant la période du 20 Septembre au 4 Octobre 2013 sont assez similaires à celles de la période précédente. Après un long épisode pluvieux, nous observons un changement rapide de la direction des vents, de l'ouest vers le NE avec des vitesses de vents très faibles (< 3 m/s). Les masses d'air apparaissent clairement stagner sur les régions nord de la France et la Belgique les quelques heures précédant cet épisode, comme l'illustre la Figure 45. Ces conditions sont propices à l'accumulation des particules et des polluants dans l'air et peuvent expliquer le pic observé. Cet épisode prend fin brusquement avec une légère augmentation des vitesses de vent.



*Figure 45 : Rétrotrajectoires de masse d'air (72h) au Cap Gris-Nez, pour les 48h précédant l'épisode du 25 septembre 2013*

#### - Période du 27/11 au 15/12/2013

La période du 27 Novembre au 15 Décembre 2013 est marquée par des conditions de hautes pressions ( $P_{atm} > 1025hPa$ ), durablement sèches, et où les températures oscillent entre 4 et 9°C. Le vent est de vitesse très variable avec des périodes calmes et d'autres où celui-ci souffle davantage, jusqu'à 18 m/s en moyenne journalière. Trois maxima de concentrations sont observés, associés aux vitesses de vent les plus faibles (< 2 m/s) mais aussi à 3 situations de vent locales totalement différentes.

Le premier maximum est observé le 28 novembre par vent local d'ouest précédé d'un passage au sud-ouest. Le second maximum succède à deux journées de vent de secteur est, plus typiquement rencontrés lors des épisodes relevés tout au long de l'année. Enfin le dernier maximum est observé après plusieurs jours de vent de secteur sud. L'examen des rétrotrajectoires de masse d'air permet de mieux expliquer ces situations. Les masses d'air accompagnant l'épisode atypique du 28 novembre, atteignent le Cap-Gris-Nez par l'ouest après avoir séjourné au-dessus du Royaume-Uni (Figure 46). Les masses d'air se sont ainsi chargées en particules, et ceci d'autant plus facilement qu'elles ont traversé les îles britanniques à basse altitude. Le niveau de  $PM_{10}$  enregistré ce jour-là ne dépasse pas les valeurs limites mais cet exemple montre qu'à l'occasion, les émissions du Royaume-Uni peuvent influencer directement sur les valeurs de  $PM_{10}$  mesurées en région Nord-Pas-de-Calais.

Le 3 décembre, la situation est plus commune ; nous sommes en présence de masses d'air ayant une trajectoire finale au-dessus des Pays-Bas, Belgique et France. Nous avons montré à plusieurs reprises qu'il s'agit de conditions typiquement rencontrées lors d'épisodes de concentrations élevées.

Le 12 décembre, nous sommes en présence d'un flux de sud. La direction de vent locale SO est trompeuse dans la mesure où l'on peut constater que les masses d'air (Figure 46) ont connu un parcours majoritairement continental avant d'atteindre le Cap Gris-Nez. Nous ne sommes donc pas ici en présence d'une influence marine, comme un examen rapide l'aurait suggéré mais bel et bien d'une influence continentale. Cette situation est atypique dans la mesure où les influences continentales sont le plus souvent observées lors de masses d'air ayant une trajectoire terminale venant de l'est.

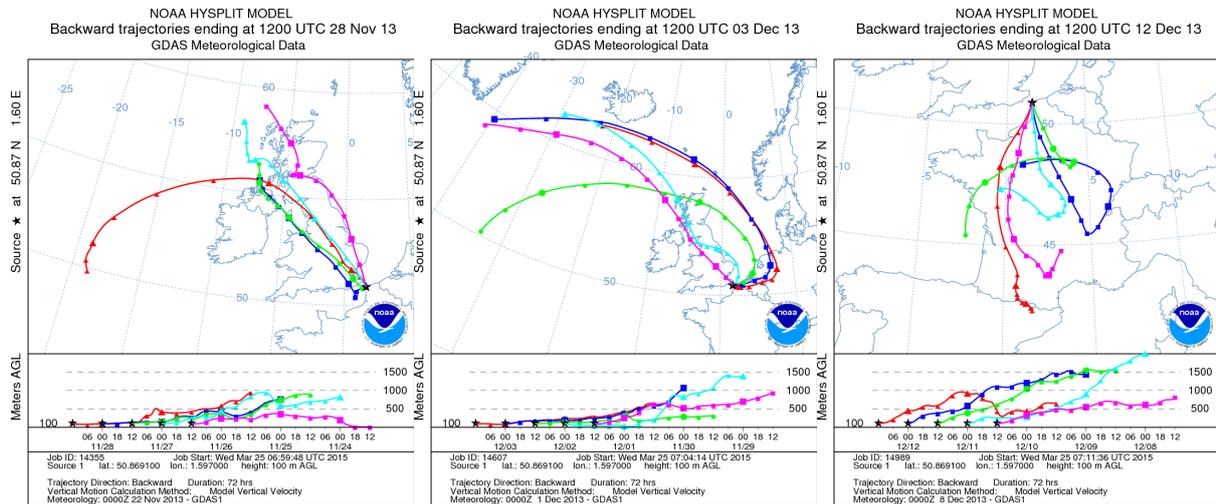


Figure 46 : Rétrotrajectoires de masse d'air (72h) au Cap Gris-Nez, pour les 48h précédant les épisodes des 28/11, 3/12 et 12/12/2013

Les épisodes de fortes concentrations de  $PM_{10}$  sont associés à des rétro-trajectoires de masse d'air ayant suivi un parcours continental avec la distinction de cas où la masse d'air a parcouru une très longue distance en venant de l'est et d'autres cas, où sa vitesse de déplacement est faible ( $< 3$  m/s).

Le retour à des valeurs de concentrations nettement en dessous de la limite journalière résulte du changement de conditions météorologiques : vitesse de vent plus élevée, pluie, vent de secteur ouest.

## 2.3. Récapitulatif

La concentration des PM<sub>10</sub> a été mesurée tout au long de l'année 2013 sur le site du Cap Gris-Nez et un échantillonnage journalier de particules a permis de déterminer les teneurs en ions et métaux majeurs, métaux traces, carbone organique et élémentaire, ainsi que les concentrations en traceurs de combustion de biomasse et de particules biogéniques primaires.

En 2013, au niveau de la région Nord-Pas-de-Calais, 26 épisodes de pollution concernant les PM<sub>10</sub>, représentant au global 85 jours où la situation a nécessité un niveau d'information et de recommandation ou d'alerte de la population, ont été observés.

Au Cap Gris-Nez, la concentration moyenne de PM<sub>10</sub> a atteint 22,8 µg.m<sup>-3</sup> pour l'année 2013. Ce niveau se situe entre la valeur relevée sur le site rural de Cartignies (20,3 µg.m<sup>-3</sup>) et celles de sites urbains comme Saint-Omer (22,9 µg.m<sup>-3</sup>) ou Calais Berthelot (26,5 µg.m<sup>-3</sup>). En région Nord-Pas-de-Calais, les concentrations moyennes journalières de PM<sub>10</sub> varient le plus souvent de manière coordonnée d'une station à l'autre, illustrant l'existence d'un phénomène d'ampleur régionale gouvernant l'évolution des niveaux de concentration.

La masse des PM<sub>10</sub> est expliquée à 68,6% en moyenne par les 6 espèces chimiques : NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, OC, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, Cl<sup>-</sup>, Na<sup>+</sup> et NH<sub>4</sub><sup>+</sup>. La contribution des espèces constituant les ions inorganiques secondaires (NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> et NH<sub>4</sub><sup>+</sup>) apparaît plus importante en hiver (49%) et au printemps (40%) qu'elle ne l'est aux autres saisons (été, 33% et automne, 22%). Les périodes de forte concentration de sels marins (Cl<sup>-</sup>, Na<sup>+</sup>) interviennent majoritairement au moment de périodes venteuses qui précèdent ou accompagnent parfois des périodes pluvieuses. Ces situations ont été rencontrées en hiver, au printemps et à la fin de l'automne 2013, mais ne sont pas simultanées avec les épisodes de forte concentration en ions inorganiques secondaires.

Le carbone organique OC représente, en moyenne sur l'année 2013, près de 9% de la masse des PM<sub>10</sub> au Cap Gris-Nez. L'analyse des traceurs organiques a permis de montrer une contribution très significative de la combustion de la biomasse en hiver à la teneur en OC (jusque près de 40% en janvier 2013, par rapport à 15-20 % en moyenne annuelle) et des émissions biogéniques primaires l'été (jusque 17% de OC en août 2013, par rapport à 4,5% en moyenne annuelle).

Sur l'année 2013, 11 jours de dépassement de la valeur limite journalière ont été relevés au Cap Gris-Nez. Les épisodes de fortes concentrations sont associés à des rétrotrajectoires de masse d'air ayant suivi un parcours continental avec la distinction de cas où la masse d'air a parcouru une très longue distance en venant de l'est, et d'autres cas où sa vitesse de déplacement est faible (< 3m/s). Dans cette situation, la proportion en espèces inorganiques secondaires (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> et surtout NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> croît fortement atteignant près de 60% de la masse des PM<sub>10</sub>. Les proportions de OM (18%) et particules crustales (6%) demeurent constantes, tandis que la part de sels marins diminue (6%), en comparaison avec une situation moyenne. Le retour à des valeurs de concentrations dans la moyenne résulte du changement de conditions météorologiques : vitesse de vent plus élevée, pluie, vent de secteur ouest. La contribution d'émissions résultant du trafic maritime a pu être observée sur certains échantillons de PM<sub>10</sub>, de part notamment l'augmentation des teneurs en Ni, V, et l'obtention de quantités de carbone organique (OC) supérieures à celles du carbone élémentaire (EC).

### 3. Mise en évidence de l'influence des émissions du trafic maritime : étude comparative menée dans le Port de Calais et au Cap Gris-Nez

**Auteurs :** Cloé Roche, Frédéric Ledoux & Dominique Courcot

Une campagne de mesures a été réalisée, entre le 29 janvier et le 21 avril 2014, dans le port de Calais, afin de recueillir des informations sur la nature des émissions liées au trafic maritime. Celle-ci s'est déroulée en parallèle sur le site du cap Gris-Nez afin d'obtenir des données comparatives sur une période identique. Cette partie présente et compare les évolutions des concentrations en particules, oxydes d'azote et dioxyde de soufre enregistrées sur les deux sites. L'objectif est de mettre en évidence comment les émissions de bateaux peuvent influencer la concentration et la distribution granulométrique des particules et des espèces chimiques étudiées.

#### 3.1. Le site du Port de Calais

Une seconde campagne de mesures, plus courte, a été menée au niveau du port de Calais (Figure 48) dans une station mobile d'Atmo Nord-Pas-de-Calais. Ce site est localisé sur le quai Paul Dévot (50°57'46" N, 1°51'15" E). Il est soumis aux émissions portuaires pour des secteurs de vent allant du nord au nord-est. Il est également bien situé pour détecter les émissions des ferries dans le chenal du port au nord-ouest (Figure 47).



Figure 47 : Position du site de mesures à Calais (en bleu clair, la Mer du Nord, en bleu foncé, le port et le trajet des ferries, en jaune, la zone industrielle, en rouge, les autoroutes)

La ville de Calais compte environ 73 000 habitants et son aire urbaine environ 126 000 habitants. Le port de Calais est le premier port français pour le transport des passagers. Il est le deuxième au niveau européen (juste après Douvres au Royaume-Uni) (préfecture Manche-Mer du Nord). Il possède 8 quais destinés au trafic des ferries et des navires rouliers (Ro-Ro, pour Roll-on/Roll-off), c'est-à-dire transportant des marchandises chargées par des engins roulants. En 2014, plus de 29 000 mouvements de navires ont eu lieu et 1 820 000 camions ont été transportés. Ce port est encore destiné à s'agrandir avec le projet Calais Port 2015.



Figure 48 : Localisation de la station de mesure dans le port de Calais

Un trafic routier assez intense a lieu aux alentours de Calais, avec la présence des autoroutes A26 et A16 (liaison France-Royaume-Uni via le tunnel sous la Manche). Une zone industrielle est localisée à l'est nord-est de notre site de prélèvement. Sur les Figure 47 et 48, le site de mesure est situé par rapport au centre-ville de Calais, au port, aux voies de trafic routier et à la zone industrielle.

Cette seconde campagne de mesures a eu lieu du 29 janvier au 21 avril 2014, simultanément à la fin de la campagne réalisée au Cap Gris-Nez.

## 3.2. Concentrations en PM<sub>10</sub>, NO<sub>x</sub> et SO<sub>2</sub>

### 3.2.1. Concentration moyenne et évolution chronologique

Le Tableau 9 regroupe les concentrations moyennes en PM<sub>10</sub>, NO<sub>x</sub>, et SO<sub>2</sub> enregistrées au Cap Gris-Nez et sur le port de Calais entre le 29 janvier et le 21 avril 2014. On peut ainsi remarquer que les concentrations en PM<sub>10</sub> sont légèrement plus faibles sur le site du Cap Gris-Nez que dans le Port de Calais. Ces niveaux de concentration sont dans la normale des niveaux enregistrés en moyenne sur les deux sites. Cette question sera mieux décrite et discutée dans le Chapitre 4, dans lequel une comparaison de la situation observée au Cap Gris-Nez et sur d'autres sites régionaux sera proposée à l'échelle de l'année 2013. Concernant les composés gazeux, les concentrations en dioxyde de soufre et oxydes d'azote sont environ deux fois plus élevées à Calais qu'au Cap Gris-Nez. A titre de repères, les concentrations moyennes en NO<sub>x</sub> et SO<sub>2</sub> à Calais sont proches de 30 µg/m<sup>3</sup> et 2 µg/m<sup>3</sup> respectivement, qui sont les valeurs moyennes relevées pour les stations de fond urbain en France en 2013 (MEDDE, 2014).

Tableau 9 : Moyennes des concentrations en PM<sub>10</sub>, NO<sub>2</sub>, NO et SO<sub>2</sub> au Cap Gris-Nez et à Calais entre le 29 janvier et le 21 avril 2014 (µg.m<sup>-3</sup>)

	PM <sub>10</sub>	NO <sub>2</sub>	NO	SO <sub>2</sub>
CGN	22,5	12,5	2,4	1,2
Calais	25,3	22,0	8,2	2,6

L'évolution des concentrations moyennes journalières de PM<sub>10</sub> au Cap Gris-Nez et à Calais est représentée sur la Figure 49. On peut ainsi remarquer que ces évolutions sont synchrones, avec des niveaux de concentration très proches sur les deux sites. Au début de la période d'étude, les concentrations sont assez faibles (entre 10 et 20 µg.m<sup>-3</sup>). Ensuite, plusieurs épisodes de forte concentration ont été enregistrés : entre le 10 et le 16 mars, puis entre le 28 mars et le 2 avril et finalement entre le 20 et le 22 avril. Ces mesures sont conformes avec les observations d'Atmo pour la région : aucun épisode de dépassement de PM<sub>10</sub> en janvier et février, contre 3 en mars allant jusqu'au déclenchement de la procédure d'alerte (> 80 µg.m<sup>-3</sup>) en région entre le 11 et le 15 mars, et enfin survenue de deux épisodes successifs en avril (20-22/04 et 24-26/04).

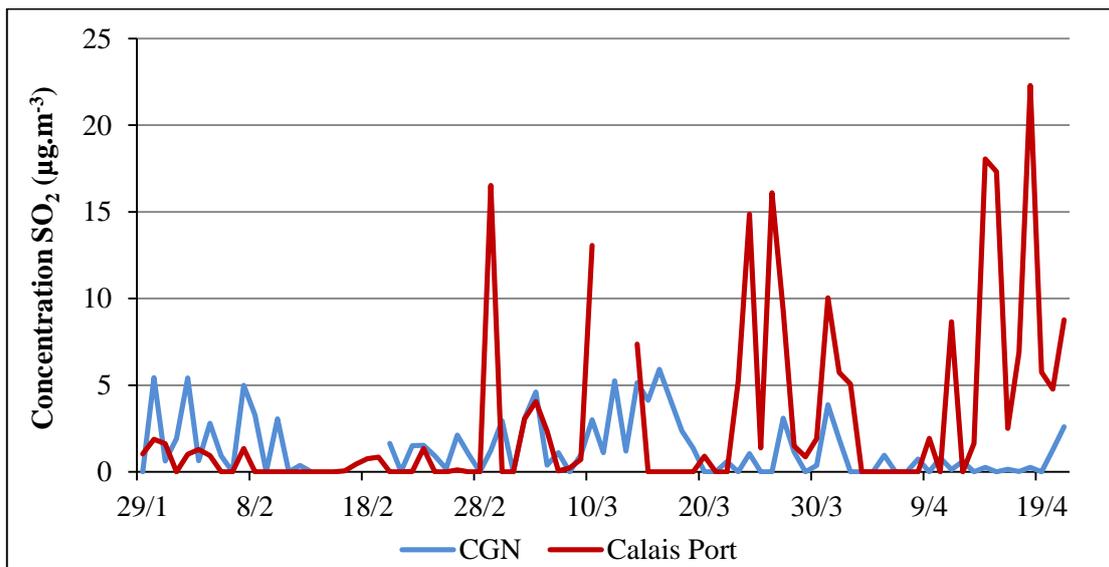
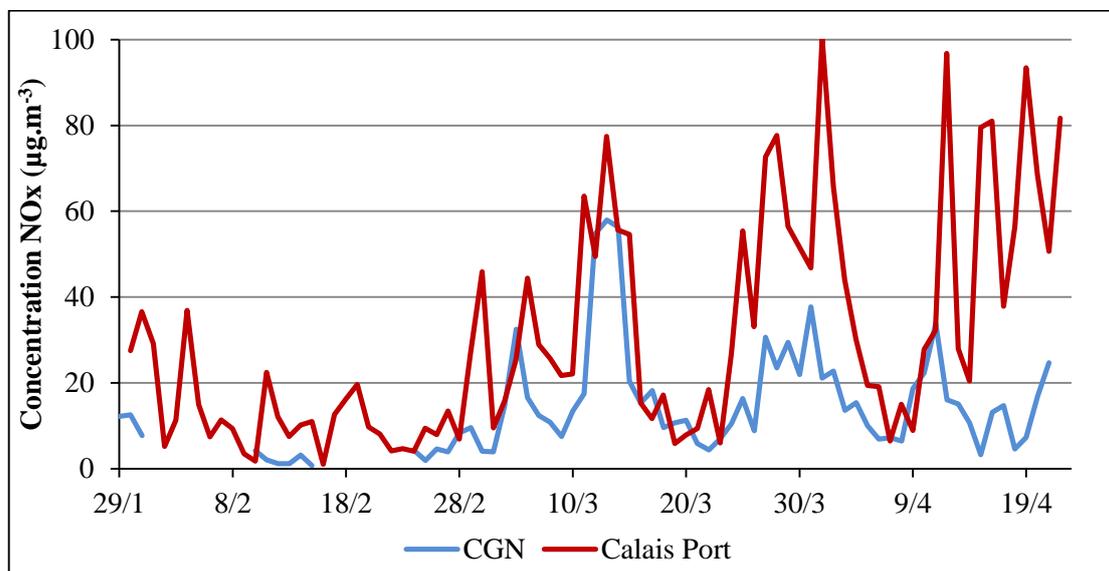
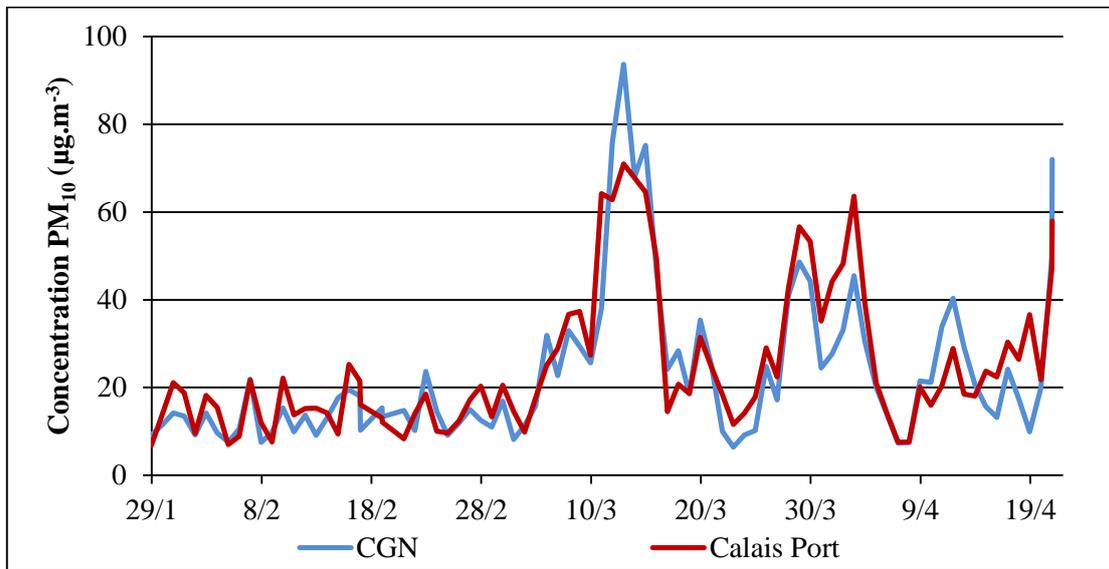


Figure 49 : Evolution des concentrations journalières de  $PM_{10}$ ,  $NO_x$  et  $SO_2$  au Cap Gris-Nez et à Calais entre le 29 janvier et le 21 avril 2014

La Figure 49 représente l'évolution des concentrations moyennes journalières en NO<sub>x</sub>. Les concentrations sont très variables sur nos deux sites. Elles sont comprises, sur la période d'étude, entre 1 et 100 µg.m<sup>-3</sup>. Les valeurs réglementaires concernant le NO<sub>2</sub> sont fixées pour les concentrations horaires et moyennes annuelles à 200 µg.m<sup>-3</sup> et 40 µg.m<sup>-3</sup>, respectivement. Sur nos stations, comme sur l'ensemble de la région Nord-Pas-de-Calais (Atmo, 2014), les concentrations moyennes sont très inférieures à la valeur limite annuelle.

Les maxima horaires enregistrés sur nos deux stations (NO<sub>2</sub> : 176 µg.m<sup>-3</sup> à Calais et 91,5 µg.m<sup>-3</sup> au CGN) respectent également la réglementation en vigueur. Une certaine synchronisation des augmentations des concentrations existe entre les deux sites. La majeure partie du temps, le site de Calais enregistre des valeurs bien supérieures à celui du Cap Gris-Nez, en particulier sur la fin de la période de mesure.

L'évolution des concentrations moyennes journalières de dioxyde de soufre est représentée sur la Figure 49. Comme pour les NO<sub>x</sub>, ces concentrations sont variables d'un jour à l'autre et sont comprises, sur la période, entre 0 et 23 µg.m<sup>-3</sup>. La réglementation impose une valeur limite moyenne journalière de 125 µg.m<sup>-3</sup> à ne pas dépasser plus de 3 jours par an et un objectif de qualité de 50 µg.m<sup>-3</sup> en moyenne annuelle. Sur nos deux sites, les concentrations mesurées sont très inférieures à ces valeurs réglementaires. Toutefois, pour le site de Calais, des pics de concentration de SO<sub>2</sub> et de NO<sub>x</sub> sont observés certains jours et il sera intéressant d'examiner si ces phénomènes interviennent lorsque la station de mesure se trouve sous le vent des émissions des ferries. Les concentrations relevées au Cap Gris-Nez sont, dans l'ensemble, inférieures à celles de Calais, mais dans des situations de faible concentration, les écarts entre les deux sites sont minimes, comme dans le cas des NO<sub>x</sub>.

### 3.2.2. [Evolution en fonction des secteurs de vent](#)

Sur la période d'étude, nous avons tracé des roses de concentrations de PM<sub>10</sub>, NO<sub>2</sub>, NO et SO<sub>2</sub> pour les deux sites (Figure 50). Les données journalières de composition chimique des particules ont été distribuées sur les directions de vent rencontrées et des représentations des concentrations moyennes par secteur et intégrant les vitesses de vent ont permis de tracer les roses de concentration, avec l'aide du package "openair" (Carslaw and Ropkins, 2012) fonctionnant sous environnement R (2008). Le dégradé de couleur indique la concentration moyenne de l'espèce sous une direction de vent et en fonction de sa vitesse.

Concernant les PM<sub>10</sub>, les concentrations les plus élevées sont enregistrées sous des vents du secteur NE-SE sur les deux sites. Ce sont surtout par des vitesses de vent supérieures à 5 m/s et de secteur NE que les concentrations les plus élevées ont été observées (jusque 90 µg.m<sup>-3</sup> au Cap Gris-Nez et 60 µg.m<sup>-3</sup> à Calais). Pour le site de Calais, on relève également des concentrations comprises entre 40 et 50 µg.m<sup>-3</sup> sous le secteur NO, observation qui est partiellement compatible avec des émissions venant du chenal et probablement reliée aux mouvements des bateaux.

Les roses de concentration en NO<sub>2</sub>, NO et SO<sub>2</sub> sont très différentes entre nos deux sites. Il ressort très nettement sur le site de Calais que ces composés gazeux sont majoritairement apportés par des vents de nord nord-ouest, qui, comme mentionné précédemment, correspond à la direction du chenal. L'impact des émissions des ferries sur les niveaux de concentrations de ces espèces gazeuses est clairement mis en évidence. Au Cap Gris-Nez, où les concentrations sont nettement plus basses, les concentrations en NO<sub>2</sub> et NO sont plus élevées par des vents de NE-E, de vitesse faible. Ce secteur tend à pointer dans la direction du port de Calais, mais aussi vers la Mer du Nord (route des ferries et/ou zone où la densité de bateaux est toujours la plus élevée).

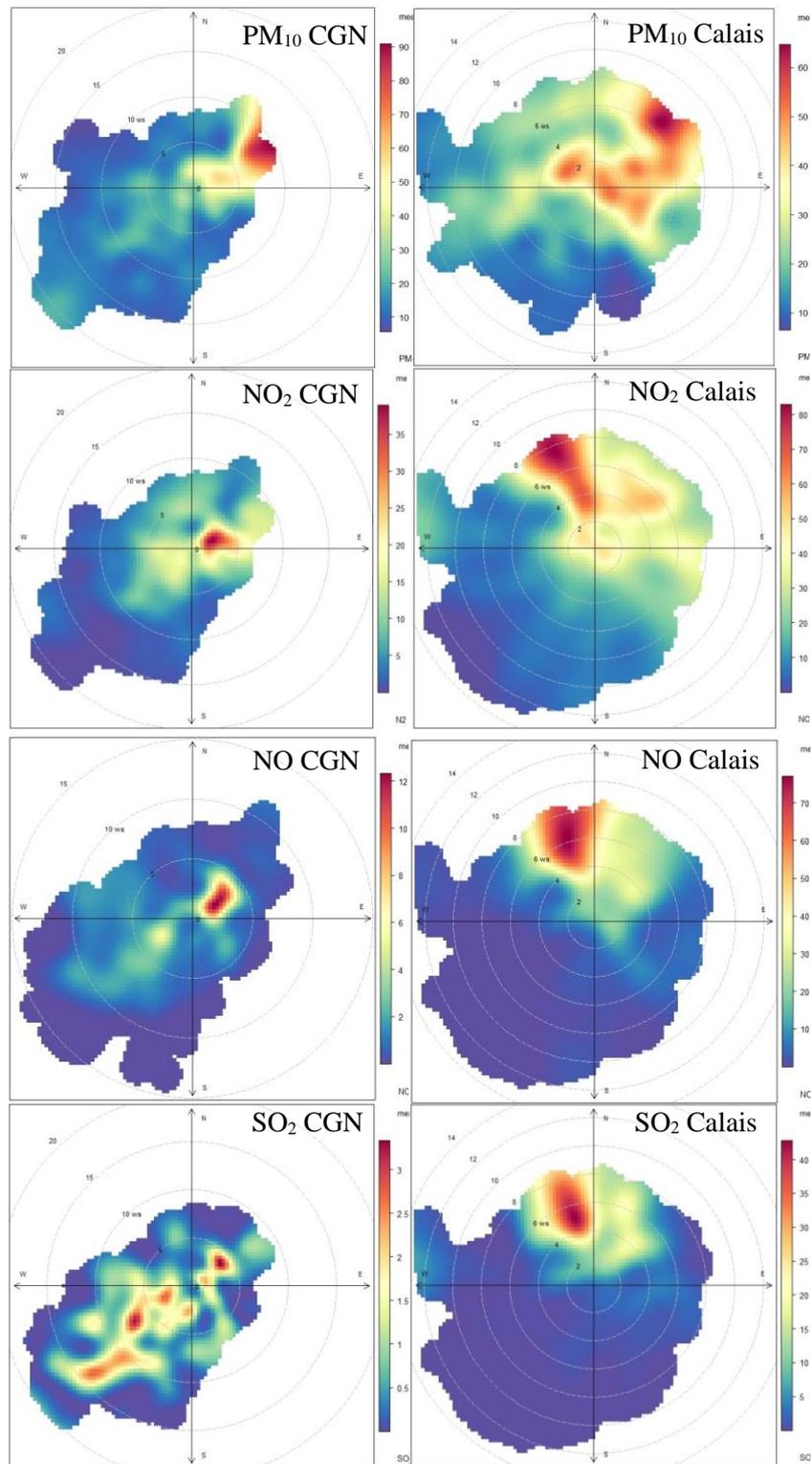


Figure 50 : Roses de concentration en  $PM_{10}$ ,  $NO_2$ ,  $NO$  et  $SO_2$  au Cap Gris-Nez et à Calais pour la période du 29 janvier au 21 avril 2014

Il faut aussi remarquer que lors de vents de sud-ouest, des concentrations non négligeables en  $NO_x$  sont mesurées. Le  $SO_2$  présente davantage de spots de concentration par des vents venant soit du NE, soit du SO et pour des vitesses de vent différentes. Rappelons que ces roses ont été tracées pour des périodes relativement courtes (de l'ordre de 2 mois et demi), elles traduisent bien la situation rencontrée durant la période considérée mais celle-ci est peut-être trop limitée dans le temps pour obtenir une situation moyenne représentative. Néanmoins, l'allure des roses de  $NO_x$  et  $SO_2$  semble indiquer que le site a été influencé par des émissions venant de l'espace maritime.

La concentration de PM<sub>10</sub> présente une évolution synchrone avec un écart faible entre le site de Calais et celui du Cap Gris-Nez, contrairement aux NO<sub>x</sub> et SO<sub>2</sub> qui présentent des pics de concentration beaucoup plus importants et bien souvent exclusivement sur le site de Calais. Les roses de concentration présentent, surtout dans le cas des composés gazeux (NO<sub>2</sub>, NO et SO<sub>2</sub>) des allures différentes sur les deux sites, mais mettent dans tous les cas en évidence l'influence des émissions des bateaux.

### 3.2.3. Evolution sur une courte échelle temporelle sur le site du Port de Calais

Dans le but de mieux comprendre l'origine des NO<sub>x</sub>, SO<sub>2</sub> et des PM<sub>10</sub> dans le port de Calais, un suivi sur une échelle de temps courte a été entrepris. Nous avons en particulier examiné la variabilité éventuelle des niveaux de concentration lorsque les vents soufflent depuis la zone portuaire. En complément des caractéristiques chimiques utilisées jusqu'à présent, un suivi de la granulométrie en temps réel des particules a été réalisé afin de disposer d'informations plus fines.

La Figure 51 présente l'évolution des concentrations en NO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub>, le nombre et la concentration de PM<sub>10</sub> et la direction du vent en fonction du temps (valeurs quart-horaires) sur le site du port de Calais entre le 17 avril à 16h30 et le 18 avril à 3h45. Cette période est particulièrement intéressante dans la mesure où elle présente un changement de l'orientation du vent, qui provient de la direction 250° (OSO) en début de période, puis tourne progressivement pour se stabiliser temporairement sous la direction 340° (NNO) entre 20h30 le 17 avril et 2h le 18 avril. Cette direction est celle du chenal, dans lequel circulent des bateaux en entrée et sortie du port. Au-delà de 2h le 18 avril, le vent s'oriente au nord (0°) puis au nord-est. Au cours de cette période et suite au changement de l'orientation de vent, des variations très marquées de concentration de NO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub> et du nombre de particules ont été enregistrées. Bien que cela ne soit présenté ici, il peut être mentionné que des observations similaires à celle de NO<sub>2</sub> ont été obtenues pour NO.

En effet, entre 16h30 et 17h30, le 17 avril (situation 1), lorsque le vent vient d'une direction voisine de 250°, les concentrations de SO<sub>2</sub> (< 3 µg.m<sup>-3</sup>) et de NO<sub>2</sub> (< 10 µg.m<sup>-3</sup>) sont faibles et relativement stables, de même que le nombre de particules (≈ 2000 cm<sup>-3</sup>). La répartition granulométrique en nombre (Figure 52 (1)) montre deux fractions majoritaires : la plus fine entre 0,03 et 0,06 µm (37% du total) et celle comprise entre 0,17 et 0,27 µm (14%).

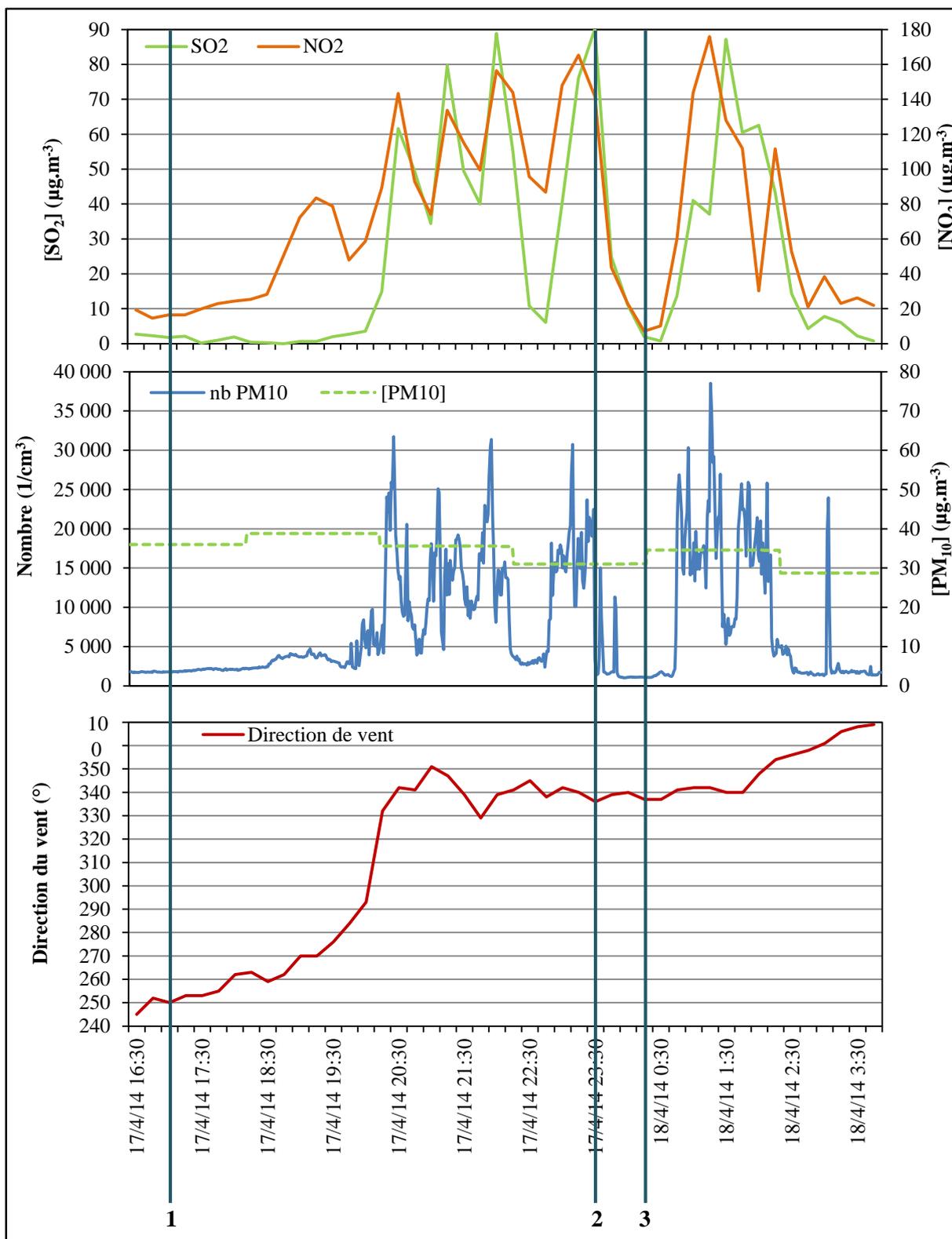


Figure 51 : Evolution des concentrations en SO<sub>2</sub> et NO<sub>2</sub>, PM<sub>10</sub> et de la direction de vent entre le 17 avril à 16h30 et le 18 avril à 3h45 sur le site du port de Calais

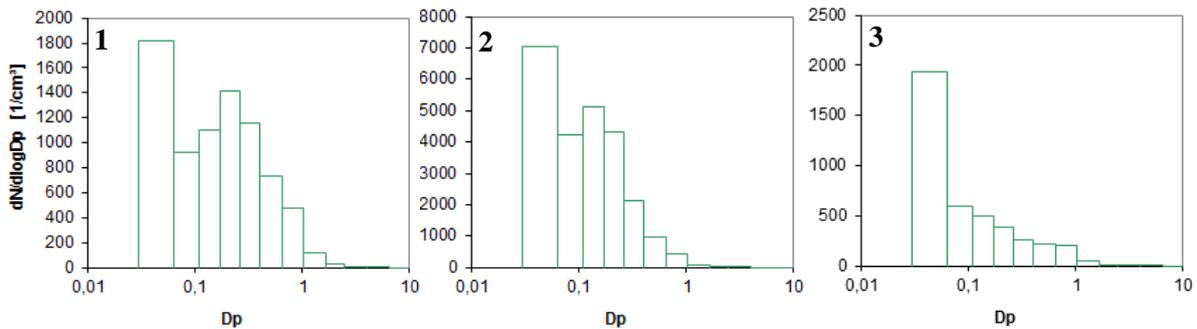


Figure 52 : Répartition granulométrique en nombre des PM le 17 avril à 17h (1), à 23h30 (2) et le 18 avril à 0h15 (3)

Lorsque le vent vient du NO-N (340°) entre 20h le 17 avril et 2h le 18 avril, un enchaînement de concentrations élevées et basses de SO<sub>2</sub> et NO<sub>2</sub> est observé. Cette alternance donne l'impression d'une succession d'émissions distinctes, suggérant des émissions par "bouffées". Quatre pics sont observés à des intervalles d'environ une heure, puis deux autres, également séparés d'une heure. Ces pics d'émissions peuvent être mis en parallèle avec la rotation des entrées et sorties des ferries du port environ toutes les heures avec une pause un peu plus longue au milieu de la nuit.

En parallèle, les données ELPI de concentration en nombre des particules montrent également cette alternance de maxima et de minima, comme dans le cas de SO<sub>2</sub> et NO<sub>2</sub>, alors que la concentration de PM<sub>10</sub> ne varie que faiblement. La répartition granulométrique des particules a donc été examinée au niveau de chaque maximum et de chaque minimum afin de comprendre pourquoi les fortes variations en nombre n'étaient pas corrélées à des variations de concentration de PM<sub>10</sub>. Les maxima étant similaires, nous avons choisi de présenter seulement celui de 23h30 (Figure 52 (2)). Le nombre total de particules est alors élevé, > 20 000 cm<sup>-3</sup>, soit dix fois plus que sous le secteur SO-O (Figure 51). Les particules les plus fines (0,03-0,06 µm) représentent 39% des PM<sub>10</sub> en nombre. Parmi les autres fractions, celle comprise entre 0,11 et 0,17 µm est la plus importante avant celle entre 0,17 et 0,27 µm, ce qui constitue également une différence par rapport aux observations sous le secteur SO-O.

Enfin, les minima étant également similaires, nous présentons ici la répartition granulométrique enregistrée à 0h15 (Figure 52 (3)). Le nombre de particules a fortement diminué (≈ 2000 cm<sup>-3</sup>) et est revenu au même niveau que sous le secteur SO-O. Cependant, la répartition de ces particules est différente. En effet, la fraction granulométrique la plus fine est, cette fois, beaucoup plus importante que les autres fractions, elle représente ainsi 54% du total des PM<sub>10</sub>. Les autres fractions sont de moins en moins nombreuses à mesure que leur taille augmente. L'évolution de la distribution granulométrique concernant principalement les particules ultrafines, ceci explique pourquoi la concentration en PM<sub>10</sub> varie peu au regard du nombre de particules total.

Ces observations nous permettent de conclure que les émissions des bateaux entraînent des élévations très marquées des concentrations de NO<sub>x</sub>, SO<sub>2</sub> et du nombre de particules, qui ne sont pas continues mais surviennent au moment des arrivées et départs des bateaux dans le port. Sous l'influence des émissions, le nombre de particules est plus de 10 fois plus élevé que celui rencontré en situation de fond. Les particules émises appartiennent essentiellement au mode ultrafin ainsi qu'au mode fin, vu la forte élévation du nombre de particules de taille (0,03-0,06 µm) et (0,11 et 0,17 µm).

## 3.3. Composition chimique des PM<sub>10</sub>

### 3.3.1. Concentration moyenne au Cap Gris-Nez et dans le Port de Calais

Cette partie présente les résultats de composition chimique moyenne des prélèvements journaliers de PM<sub>10</sub> dans le port de Calais et au Cap Gris-Nez, entre le 29 janvier et le 17 avril 2014. L'objectif est de rechercher des spécificités de composition chimique des particules afin de pouvoir identifier une influence des émissions des bateaux.

Au cours de la campagne d'étude 2014 (entre le 29 janvier et le 17 avril), pendant laquelle la comparaison entre nos deux sites est réalisée, 27 échantillons prélevés sur chacun des sites ont été analysés, selon la sélection systématique de 1 jour sur 3. La moyenne des concentrations en PM<sub>10</sub> relative aux échantillons sélectionnés à Calais est de 23,7 µg.m<sup>-3</sup>, ce qui est très légèrement inférieur (6%) à la concentration moyenne en PM<sub>10</sub> calculée pour l'ensemble de la période (25,1 µg.m<sup>-3</sup>). Au Cap Gris-Nez, la valeur moyenne associée aux échantillons sélectionnés est de 22,0 µg.m<sup>-3</sup> contre 22,5 µg.m<sup>-3</sup> pour la période complète, soit une différence de 2%.

Les concentrations moyennes de chaque espèce chimique sur la période de mesures sont indiquées dans le Tableau 10. La majeure partie de la masse totale des PM<sub>10</sub> (67% à Calais, 66% au Cap Gris-Nez) est expliquée par seulement 6 espèces : NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, Cl<sup>-</sup>, OC, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup> et Na<sup>+</sup>. La septième espèce qui contribue le plus à la masse de particules est EC, dont la part est beaucoup plus importante à Calais qu'au Cap Gris-Nez (3,4% et 1,6% respectivement). Les autres espèces représentent une part assez faible (entre 0,5 et 1,9% sur les deux sites pour Ca<sup>2+</sup>, K<sup>+</sup>, Mg<sup>2+</sup>, Al, Fe). Enfin, le cumul des éléments traces représente 0,25% et 0,48% au Cap Gris-Nez et à Calais respectivement.

Les concentrations enregistrées à Calais (site urbain et portuaire) sont presque toutes supérieures à celles du Cap Gris-Nez (site rural proche de la mer). Seules les espèces majeures présentes dans les sels marins, Na<sup>+</sup>, Cl<sup>-</sup> et Mg<sup>2+</sup>, apparaissent en plus grande quantité au Cap Gris-Nez, et la différence n'est pas très marquée. Parmi les espèces majoritaires, les ions inorganiques secondaires (NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> et NH<sub>4</sub><sup>+</sup>) ont des concentrations moyennes assez proches sur nos deux sites. Cette observation est en accord avec une étude précédente, dans laquelle un site rural et un urbain ont été comparés sur le littoral de la région Nord-Pas-de-Calais (Ledoux, 2003). Les espèces carbonées (OC, EC) montrent des concentrations environ deux fois supérieures sur le site urbain par rapport au site rural. Cela peut s'expliquer par le fait que ces espèces sont émises en grande partie par les processus de combustion, bien plus présents en zone urbaine que rurale tels que le trafic routier ou encore le chauffage domestique. On ne peut exclure également une influence des émissions des bateaux, plus conséquente dans le port de Calais, pour expliquer ces teneurs en OC et EC plus élevées.

Les éléments majeurs et traces sont également plus concentrés à Calais qu'au Cap Gris-Nez, mais dans des proportions variables. Ainsi, Al et Sr ont des concentrations assez proches sur les deux sites. Ces deux éléments sont surtout issus des poussières crustales et des sels marins, respectivement. D'autres éléments sont retrouvés en plus grande quantité à Calais, comme le Ti, par exemple. A Calais, une usine de production de dioxyde de titane est présente et pourrait expliquer la forte concentration en Ti dans les particules. Les éléments V, Ni et Co montrent également des concentrations plus élevées à Calais.

Tableau 10 : Concentrations moyennes des espèces dans les PM<sub>10</sub> collectées au Cap Gris-Nez (CGN) et à Calais entre le 29 janvier et le 21 avril 2014

Espèce	CGN			Calais		
	Moyenne (ng.m <sup>-3</sup> )	Ecart-type (ng.m <sup>-3</sup> )	%PM <sub>10</sub>	Moyenne (ng.m <sup>-3</sup> )	Ecart-type (ng.m <sup>-3</sup> )	%PM <sub>10</sub>
Ca <sup>2+</sup>	353	927	1,60%	458	562	1,90%
Cl <sup>-</sup>	2572	2084	11,70%	2251	1970	9,50%
K <sup>+</sup>	115	49,6	0,50%	134	66,3	0,60%
Mg <sup>2+</sup>	225	134	1,00%	192	115	0,80%
Na <sup>+</sup>	1861	1135	8,50%	1640	1095	6,90%
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	1624	2465	7,40%	1676	2482	7,10%
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	5134	6519	23,40%	5400	6581	22,80%
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	1698	1126	7,70%	1859	1292	7,80%
EC	362	277	1,60%	809	486	3,40%
OC	1640	1354	7,50%	3048	2386	12,90%
Ag	0,02	0,03	< 0,001%	0,02	0,03	< 0,001%
Al	93,1	202	0,40%	120	224	0,50%
As	0,21	0,31	0,00%	0,35	0,49	0,00%
Ba	1,77	2,15	0,01%	3,6	3,53	0,02%
Bi	0,03	0,07	< 0,001%	0,06	0,12	< 0,001%
Cd	0,11	0,17	< 0,001%	0,16	0,22	0,00%
Co	0,11	0,12	0,00%	0,21	0,26	0,00%
Cr	1,32	1,32	0,01%	2,49	1,88	0,01%
Cu	1,81	2,09	0,01%	4,79	4,35	0,02%
Fe	119	175	0,50%	211	252	0,90%
La	0,12	0,13	0,00%	0,2	0,18	0,00%
Mn	5,99	12,1	0,03%	11,6	25,01	0,05%
Ni	2,08	3,15	0,01%	4,95	6,78	0,02%
P	6,57	6,4	0,03%	8,37	8,75	0,04%
Pb	3,43	3,65	0,02%	5,45	5,56	0,02%
Rb	0,24	0,28	0,00%	0,37	0,44	0,00%
Sb	0,55	0,48	0,00%	1,29	1,96	0,01%
Sn	0,67	0,75	0,00%	1,32	1,68	0,01%
Sr	1,95	1,51	0,01%	2,13	1,61	0,01%
Ti	7,73	13,9	0,04%	32,6	97,1	0,14%
V	3,91	4,66	0,02%	7,7	11,1	0,03%
Zn	14,4	20,3	0,07%	23,9	33,9	0,10%

### 3.3.2. Impact portuaire et urbain

Afin d'affiner l'interprétation sur les différences de concentration entre les deux sites, nous avons calculé l'impact portuaire et urbain. Ce paramètre a été utilisé sous le nom d'impact industriel dans différentes études pour estimer l'impact de sources industrielles sur la composition chimique des particules (Arruti et al. (2011); Kfoury (2013); Puxbaum et al. (2004)). Deux jeux de données avaient alors été utilisés : des données relatives au fond urbain et des données issues d'un site sous l'influence de la source d'intérêt.

Dans cette étude, nous avons appliqué une méthodologie similaire afin d'estimer l'impact de la zone portuaire sur la composition des PM<sub>10</sub>. Ainsi, nous avons utilisé les données du Cap Gris-Nez comme données de fond et les celles de Calais comme données impactées. En effet, alors que les deux sites sont côtiers, le premier est un site plutôt rural et le second est situé en zone urbaine, en plus d'être à

proximité du port. L'impact que nous pouvons ici calculer porte donc à la fois sur le caractère urbain et portuaire.

L'impact portuaire et urbain (IP&U) est calculé par l'équation suivante :

$$IP\&U (\%) = ([X]_{\text{Calais}} - [X]_{\text{CGN}}) \times \frac{100}{[X]_{\text{Calais}}}$$

où [X] est la concentration moyenne en élément X dans les échantillons de Calais et dans ceux du Cap Gris-Nez (CGN).

La Figure 53 représente l'impact portuaire et urbain pour la période de notre étude. Certains éléments sont présents en quantité plus importante sur le site rural (impact négatif) : Na<sup>+</sup>, Mg<sup>2+</sup> et Cl<sup>-</sup>. Ces trois dernières espèces sont les constituants principaux des sels marins et le site du Cap Gris-Nez apparaît donc plus impacté par cette source que le port de Calais. Les ions inorganiques secondaires (NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup> et SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>) ne montrent pas de différence significative entre les deux sites. Ces espèces sont des constituants majoritaires des PM<sub>10</sub> dans notre zone d'étude et l'évolution de leur concentration est plutôt liée aux fluctuations de la concentration du fond régional comme nous le verrons dans le Chapitre 4. Il n'est donc pas surprenant qu'elles soient en quantité similaire sur l'ensemble du littoral. Sr et K<sup>+</sup> sont également dans ce cas (IP&U < 15%), partiellement en raison de leur origine marine. Tous les autres éléments sont présents en quantité plus importante à Calais. Les éléments Al, P et Ca<sup>2+</sup> présentent un comportement similaire (20 < IP&U < 25), qui peut s'expliquer par la même origine crustale de ces éléments ; la contribution de cette source pourrait donc être plus conséquente à Calais qu'au Cap Gris-Nez. Enfin, l'impact urbano-portuaire est très marqué pour Ba, Bi, Co, Cr, Cu, Fe, Mn, Ni, Sb, Sn, Ti, V et les espèces carbonées EC et OC, avec des valeurs de IP&U ≥ 40.

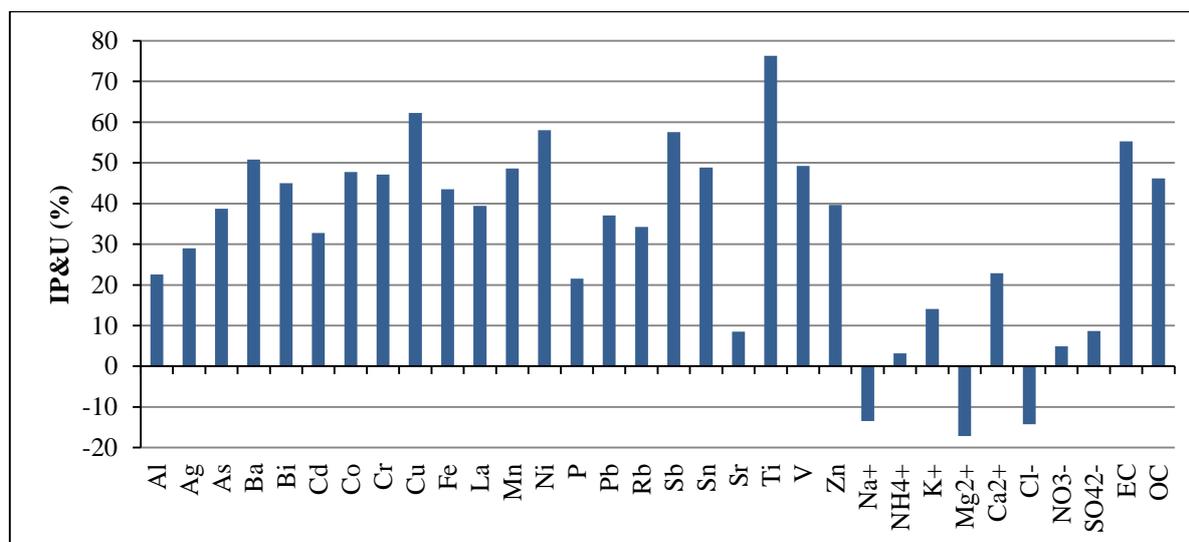


Figure 53 : Impact portuaire et urbain (%) calculé sur le site de Calais (référence Cap Gris-Nez) entre le 29 janvier et le 21 avril 2014

### 3.3.3. Evolution des concentrations en fonction des secteurs de vent dans le Port de Calais

L'étude des roses de concentration nous permet de préciser l'origine des différents constituants des PM<sub>10</sub>. Ces roses ont été tracées à partir des résultats d'analyse de 39 échantillons journaliers à Calais (27 échantillons correspondant à la sélection systématique 1 jour sur 3, ajoutés aux échantillons associés aux jours de dépassement de valeur limite et sous l'influence du port). Précisons ici que ces résultats ne représentent pas la situation moyenne à l'échelle d'une année étant donné le nombre limité d'échantillons et la courte période de mesure.

Les roses des ions inorganiques secondaires ( $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$  et  $\text{NH}_4^+$ ), constituants majoritaires des  $\text{PM}_{10}$  sont présentées sur la Figure 54. Elles montrent toutes les trois, des concentrations importantes lorsque les masses d'air viennent du secteur NE-E. Cependant, la rose des sulfates montre une composante significative (entre 4000 et 5000  $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$ ) pour des vents faibles (< 4 m/s) venant de la direction du chenal du port (nord-ouest) ; ceci est moins nettement observé sur la rose des nitrates. Il apparaît de plus des concentrations supérieures à 2000  $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$  sous un secteur NO à NE pour des vents de vitesse > 4 m/s. Nous avons vu dans le premier chapitre que des ions  $\text{SO}_4^{2-}$  primaires peuvent être présents en sortie de cheminée des bateaux, contrairement aux ions  $\text{NO}_3^-$  dont la formation intervient de manière prépondérante dans l'atmosphère à partir des  $\text{NO}_x$  émis par la combustion du fioul lourd des bateaux (Agrawal et al., 2008).

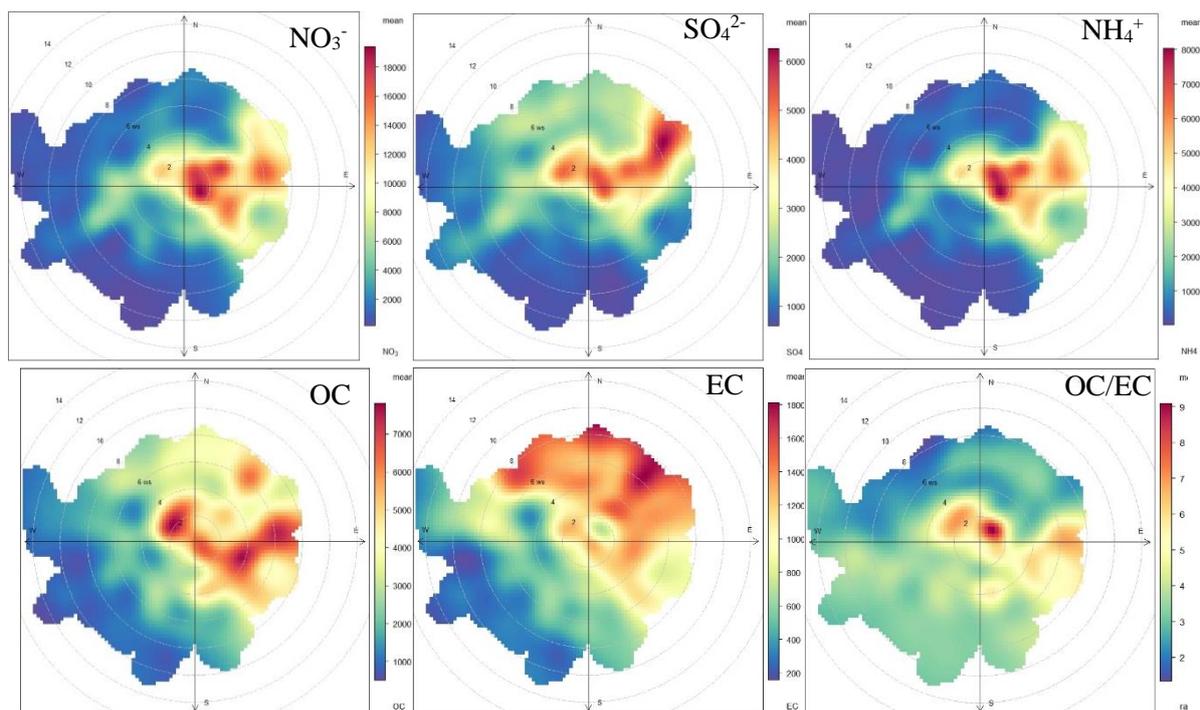


Figure 54 : Roses de concentration des espèces  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NH}_4^+$ , OC et EC et du ratio OC/EC à Calais entre le 29 janvier et le 21 avril 2014 ( $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$ )

En ce qui concerne la fraction carbonée (OC, EC), les roses obtenues présentent des différences marquées. Dans le cas de OC, apparaissent les concentrations les plus élevées, jusque 7000  $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$ , sous le secteur NE à SE et la distinction d'un spot de concentration par vent faible de NO. Dans le cas de EC, on distingue des concentrations élevées, jusque 1700  $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$  environ, principalement par NO à ENE. Ces observations montrent une influence des émissions des bateaux par secteur NO à NE, et afin de mieux caractériser ces émissions, la rose du rapport OC/EC a été tracée. Cette dernière indique l'obtention par secteur NO à NE de valeurs de ratio  $6 < \text{OC}/\text{EC} < 8$  pour des vitesses de vent faible et des valeurs de ratio proches de 3 pour des vents plus soutenus. Ces observations sont compatibles avec une influence des émissions de bateaux, caractérisées par des proportions de OC supérieures à celles de EC (Fridell et al., 2008).

Les éléments Ni et V sont couramment cités comme des traceurs des émissions du trafic maritime (Becagli et al., 2012; Pandolfi et al., 2011; Viana et al., 2014). Sur la Figure 55, nous constatons que les éléments V, Ni et Co sont majoritairement apportés par des vents des secteurs NO et NE plutôt forts (vitesses > 4 m/s). Le premier secteur correspond à la direction du chenal emprunté par les ferries et le second secteur est celui des ferries à quai et de la direction de la Mer du Nord et sa forte densité de navires. Le lanthane montre des concentrations plus importante pour des vents de secteur nord nord-est et pourrait être associé aux trois premiers éléments liés au trafic maritime. Pour ces

éléments Ni, V, Co, La, les roses de concentration tracées de la même manière au Cap Gris-Nez (non représentées) pointent toutes vers la direction NE, prouvant que les observations sur le site de Calais sont spécifiques à ce site. Les cinq autres roses de concentrations (Ti, Pb, Mn, Cu et Fe) présentées pour le site de Calais (Figure 55) permettent de comparer les origines et de constater que les autres éléments métalliques n'ont pas les mêmes secteurs majoritaires. Ainsi, le Ti montre une seule origine bien définie à l'est nord-est, qui correspond à la direction de l'usine de production de dioxyde de titane. Les roses de Mn, Cu, Pb et Fe indiquent que ce sont les masses d'air originaires de l'est qui transportent majoritairement ces éléments.

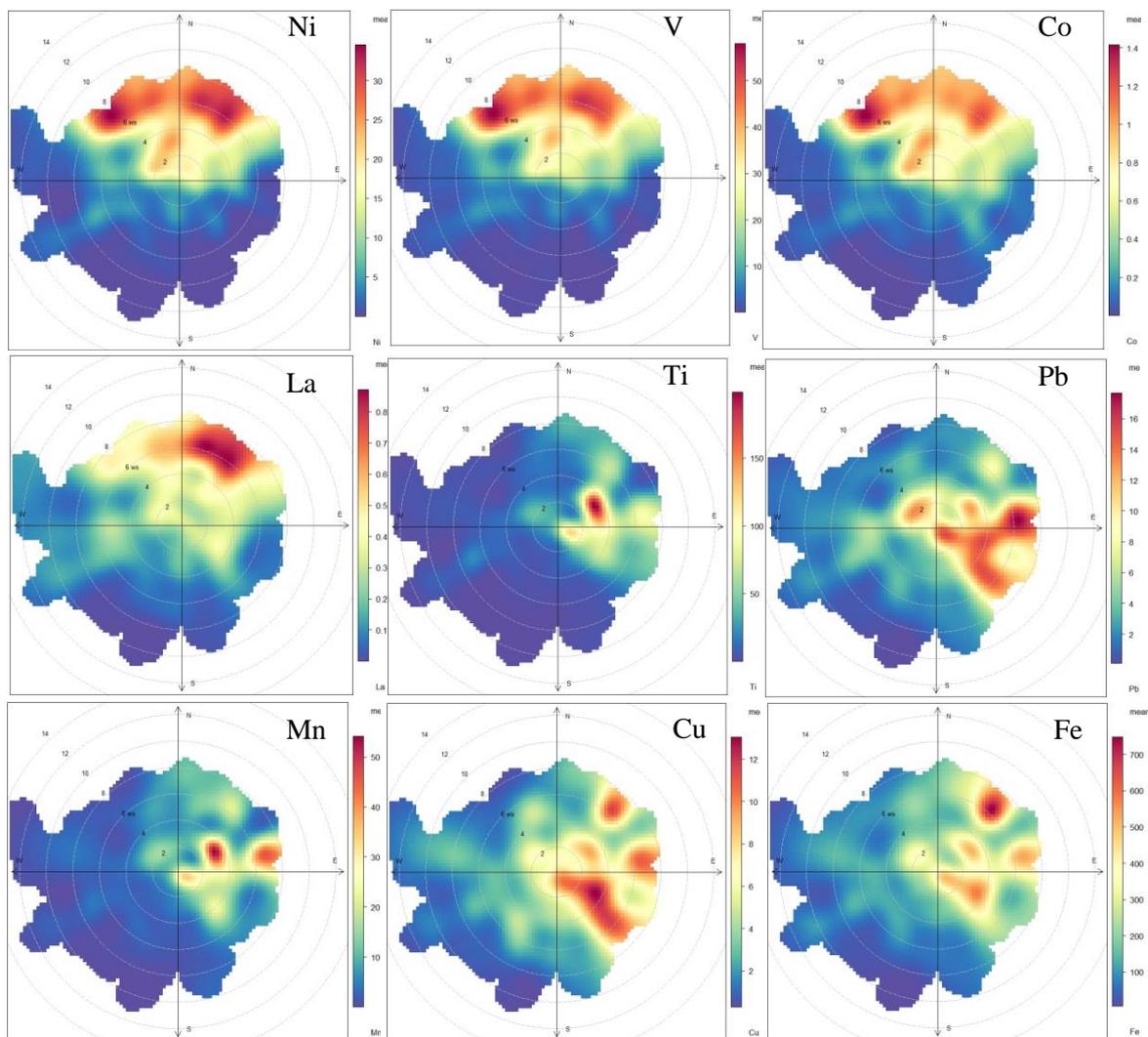


Figure 55 : Roses de concentration des éléments Ni, V, Co, La, Al, Ti, Mn, Cu et Fe à Calais entre le 29 janvier et le 21 avril 2014 ( $ng.m^{-3}$ )

Les roses de concentration du nitrate, sulfate et ammonium montrent des maxima pour des vents provenant du secteur est. Cependant, le sulfate enregistre également une concentration élevée lorsque le vent vient de la direction du port, comme dans le cas des espèces EC et OC.

La plupart des éléments majeurs et traces, comme Fe, Ti, Pb, Cu, Mn montrent également leur concentration la plus élevée pour des vents d'est. Toutefois, les roses de concentration de Ni, V, Co, La ont des formes similaires et présentent leur maximum pour des vents venant du port, sous un secteur entre nord-ouest et nord-est, ce qui permet de proposer ces éléments comme des traceurs du trafic maritime.

### 3.4. Récapitulatif

L'étude de la concentration et de la composition des particules ainsi que des concentrations en oxydes d'azote et dioxyde de soufre a été menée entre le 29 janvier et le 21 avril 2014 en parallèle dans le port de Calais et au Cap Gris-Nez, deux sites côtiers distants de 20 km l'un de l'autre.

Dans un premier temps, la comparaison entre les concentrations moyennes sur l'ensemble de la période et leurs évolutions journalières nous montrent que si les concentrations en  $PM_{10}$  sont assez homogènes entre les deux sites, ce n'est pas le cas pour les composés gazeux  $NO_x$  et  $SO_2$ . Le site du Cap-Gris-Nez enregistre des concentrations plus faibles en  $NO_x$  et  $SO_2$ . Cette différence s'explique en partie par le fait que les bateaux sont responsables des élévations très marquées des concentrations de  $NO_x$ ,  $SO_2$  et du nombre de particules, qui ne sont pas continues mais surviennent au moment des arrivées et départs des navires dans le port. Sous l'influence des émissions des bateaux, le nombre de particules est plus de 10 fois plus élevé que celui rencontré en situation de fond. Les particules émises appartiennent essentiellement au mode ultrafin ainsi qu'au mode fin.

La comparaison des compositions chimiques des  $PM_{10}$  prélevées sur les deux sites fait apparaître des différences. La plupart des espèces analysées est retrouvée en plus grande quantité à Calais, excepté les ions sodium, chlorure et magnésium. Les concentrations des autres ions majeurs, sulfate, nitrate et ammonium sont relativement similaires sur les deux sites. Des espèces métalliques telles que Co, Cr, Cu, Fe, Mn, Ni, Ti, V, dont l'origine anthropique a été confirmée par l'approche d'impact portuaire et urbain (IP&U) et les espèces carbonées OC et EC sont présentes en concentration plus grande à Calais en comparaison au Cap Gris-Nez.

L'exploitation des roses de concentration a permis de montrer que les espèces  $SO_4^{2-}$ , OC, EC (avec  $OC > EC$ ), les éléments métalliques V, Ni, Co et très probablement La sont des caractéristiques des émissions des bateaux.

A ce stade de l'étude, une influence des émissions des bateaux a donc été mise en évidence sur la concentration des  $NO_x$ , de  $SO_2$ , sur la concentration en nombre et sur la composition des particules. La partie suivante de cette étude s'efforcera, à partir d'un modèle source-récepteur de proposer des profils affinés pour les différentes sources identifiées et d'en estimer la contribution quantitative à la concentration de  $PM_{10}$  pour les sites du Cap Gris-Nez et du port de Calais.

## 4. Evaluation des contributions de source à la teneur en PM10 par l'utilisation d'un modèle récepteur

**Auteurs :** Cloé Roche, Frédéric Ledoux & Dominique Courcot

Afin d'identifier et d'estimer les contributions de chacune des sources à la masse des particules, une méthode de factorisation matricielle à l'ensemble des données de composition chimique a été appliquée. Les informations découlant des parties précédentes vont permettre, non seulement de guider le modèle, mais également de vérifier la pertinence des résultats fournis par ce dernier. Ainsi, les caractéristiques des diverses sources identifiées et constituant des connaissances *a priori* seront introduites dans le modèle.

Les résultats des contributions de chaque source à la charge particulaire seront décrits. Nous nous intéresserons plus particulièrement à leur évolution saisonnière, aux situations de dépassement de valeurs limites, et enfin à la contribution de l'espace maritime.

### 4.1. Principe de la factorisation matricielle

Les modèles récepteurs utilisés dans les études portant sur la qualité de l'air ont pour objectif d'identifier les profils de sources impactant la composition chimique des particules prélevées sur un site et d'en estimer les contributions. Différentes formes de calcul existent et ces dernières supposent plus ou moins de connaissances préalables sur les sources de pollution potentielles. La Figure 56, tirée de (Viana et al., 2008), illustre un classement de ces méthodes en fonction de la quantité de connaissances nécessaires *a priori* pour les utiliser. Ainsi, la factorisation matricielle, ici la PMF (Factorisation Matricielle Positive), dans sa version la plus simple, figure parmi les méthodes nécessitant le moins d'information *a priori* sur les sources de pollution. Ce qui peut paraître un atout à première vue, peut néanmoins être un désavantage lorsqu'il s'agit de traiter des cas complexes, notamment où des sources ont des profils de composition très proche (Viana et al., 2008).

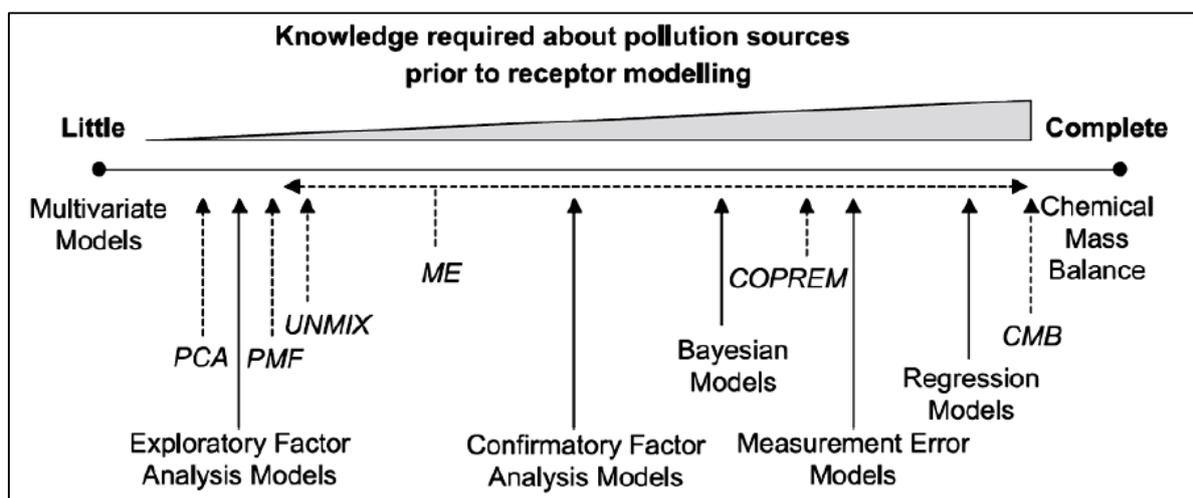


Figure 56 : Classification des méthodes d'identification de sources en fonction des connaissances nécessaires *a priori* (d'après (Viana et al., 2008))

En Europe, de nombreux types de modèles sont principalement utilisés (Frangkou et al., 2011) pour étudier la répartition des sources de particules. Les plus couramment rencontrés sont les modèles de dispersion, suivis par les modèles récepteurs, parmi lesquels, la PMF et l'ACP (Analyse en Composantes Principales) sont les plus utilisées. Par rapport à ces deux approches, des améliorations à apporter sont suggérées, telles que l'utilisation d'incertitudes sur les valeurs d'entrée, la recherche de traceurs de source spécifiques, l'utilisation de grandes matrices de données couvrant

une large période temporelle. De plus, un travail doit être fait pour améliorer la séparation des sources chimiquement proches (Frangkou et al., 2011; Viana et al., 2008).

Pour répondre à ces recommandations, l'Agence de protection de l'Environnement des Etats-Unis (US-EPA) a développé la PMF-ME-2 (Positive Matrix Factorization – Multilinear Engine 2) qui permet notamment d'apporter des informations d'absence ou de présence de certaines espèces dans certaines sources (Norris, 2014; Paatero, 1999; Ramadan et al., 2003). Cependant, le temps de calcul de la PMF est long (Paatero and Tapper, 1994).

La factorisation matricielle non-négative, très utilisée dans le domaine du traitement de signal, constitue une alternative à la PMF et nécessite un temps de calcul bien plus raisonnable (Gobinet, 2006). Le principe est le même que celui de la PMF, à savoir que le modèle cherche à expliquer une matrice  $X$  par le produit de deux matrices positives  $G$  et  $F$  en minimisant l'erreur restante (matrice  $E$ ) :

$$X = GF + E$$

Dans notre cas :

- $X$  est de taille  $n \times m$ .  $x_{ij}$  représente la concentration mesurée en  $\text{ng.m}^{-3}$  de l'espèce  $j$  dans l'échantillon  $i$ ,  $n$  le nombre d'observations et  $m$  le nombre de variables
- $G$  est la matrice de contribution de taille  $n \times p$ .  $g_{ik}$  représente la contribution en  $\text{ng.m}^{-3}$  de la source  $k$  dans la concentration totale de l'échantillon  $i$ ;  $p$  est le nombre de sources considérées.
- $F$ , de taille  $p \times m$  est la matrice des profils de source.  $f_{kj}$  est la part de chaque espèce  $j$  dans la source  $k$  en  $\text{ng}/\mu\text{g}$  (dans un profil, la somme de toutes les espèces est égale à  $1000 \text{ ng}/\mu\text{g}$ ).
- $E$  est la matrice des erreurs, de même taille que la matrice  $X$ .  $e_{ij}$  représente la divergence entre la valeur calculée par le modèle et la valeur mesurée de l'espèce  $j$  dans l'échantillon  $i$ .  $E$  doit être positive, c'est-à-dire que  $GF \leq X$ .

La méthode que nous avons utilisée est la Factorisation Matricielle Non Négative (NMF) pondérée et contrainte (Constrained Weighted – Non-Negative Factorization ou CW-NMF) de divergence paramétrique  $\alpha \beta$ , qui est développée en collaboration avec le Laboratoire d'Informatique, Signal et Image de la Côte d'Opale (LISIC, EA 4491) de l'ULCO (Delmaire et al., 2010; Kfoury et al., 2016; Limem, 2014).

La méthode CW-NMF est dite pondérée, c'est-à-dire que le poids de l'erreur  $e_{ij}$  sur l'erreur globale varie en fonction des espèces et des échantillons. Cette pondération  $w_{ij}$  est inversement proportionnelle à l'incertitude de l'espèce  $i$  dans l'échantillon  $j$ ,  $\sigma_{ij}$ . Cela signifie que plus l'incertitude est petite et plus la donnée a d'importance pour le modèle.

Notre méthode permet de considérer des connaissances *a priori* introduites sous la forme de contraintes. Il est ainsi possible de donner au modèle des informations chiffrées sur certaines espèces dans certains profils en forçant à une valeur définie dans un profil (contrainte "égalité") ou bien en spécifiant un intervalle de valeurs possibles dans lequel la solution doit se situer (contrainte de bornes). La prise en compte des connaissances *a priori* sur les profils de sources par l'utilisation de contraintes permet ainsi une meilleure séparation des sources chimiquement proches.

La valeur des paramètres  $\alpha$  et  $\beta$  permet de s'affranchir plus ou moins des points aberrants et de privilégier la bonne reconstruction des concentrations plus ou moins élevées. L'étude de l'optimisation des valeurs de  $\alpha$  et  $\beta$  a été faite dans les travaux de Limem (2014) et il ressort que le couple  $\alpha = 0,8$  et  $\beta = 0,4$  constitue le meilleur compromis. Ainsi, la somme  $\alpha + \beta$  est suffisamment élevée ( $>1$ ) et la valeur de  $\alpha$  est bien inférieure à 1, ce qui permet d'avoir une bonne robustesse aux points aberrants et de favoriser une meilleure reconstruction des espèces majeures.

Les informations en entrée et en sortie du modèle sont résumées sur la Figure 57. Pour fonctionner, le modèle a donc besoin de la matrice d'observations  $X$  associée à ses incertitudes de mesures, d'une

matrice d'initialisation  $F_{init}$  et des matrices de contraintes égalité et de bornes permettant de prendre en compte les connaissances a priori sur les profils de source.

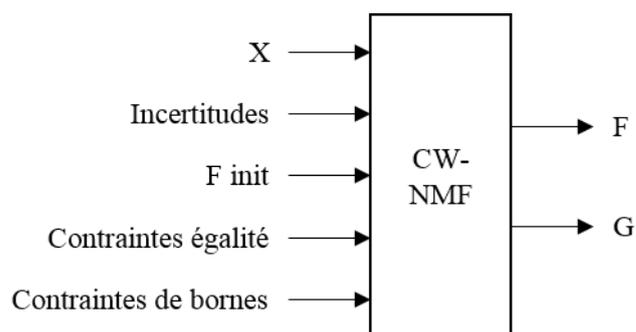


Figure 57 : Données d'entrée et de sortie du modèle CW-NMF ( $X$  correspond aux concentrations dans les échantillons,  $F_{init}$  est la matrice d'initialisation,  $F$  est la matrice de profils de source et  $G$ , la matrice de contributions)

L'algorithme est alors le suivant :

1. Recherche de la matrice  $F$  (respectant les contraintes "égalité") à  $G$  constant
2. Normalisation à 1000 des profils de sources (les valeurs contraintes à une valeur fixe ne sont pas impactées par la normalisation)
3. Respect des contraintes de bornes
4. Calcul de  $G$  à  $F$  constant

Cet algorithme constitue une itération, le modèle en effectue un certain nombre jusqu'à ce qu'une solution stabilisée et des matrices  $G$  et  $F$  optimales soient obtenues. Dans la version du modèle utilisée, l'utilisateur fixe le nombre d'itérations.

Ce modèle utilise les incertitudes sur les données d'entrée. Notre étude couvre une année de prélèvement et utilise l'analyse d'espèces très caractéristiques. Ainsi, les spécificités de ce modèle développé par le LISIC avec lequel nous avons collaboré, nous permettent de répondre aux recommandations de (Frangkou et al., 2011).

## 4.2. Résultats

### 4.2.1. Profils de source

Une démarche progressive a été adoptée lors de la recherche des profils de source. Dans un premier temps, nous avons considéré 8 profils : les deux sources marines, les poussières crustales, les nitrates et sulfates secondaires, la combustion de biomasse, le trafic routier et la source biogénique. Les résultats obtenus n'étaient pas satisfaisants, par exemple, le nickel et le vanadium se trouvaient mêlés à la source des sels marins anthropisés. Nous ne distinguons alors pas la source "sels marin âgés" de la source "combustion de fioul lourd". Par conséquent, dans un second temps, nous avons ajouté une neuvième source ("combustion fioul lourd"). Cette nouvelle solution montrait également quelques incohérences : en effet, des métaux étaient présents en grande proportion et parfois de manière non expliquée dans les profils comme le trafic routier et les aérosols inorganiques secondaires ou encore la source crustale. Une troisième étape a donc consisté en l'ajout d'une dixième source relative aux métaux, ce qui a dans le même temps permis d'aboutir à l'obtention de profils plus cohérents.

- *Cas 8 sources*

Lorsqu'on modélise avec 8 sources (les profils obtenus figurent en rouge sur la Figure 58), chaque facteur est identifiable même si l'on constate quelques améliorations possibles.

Les deux premiers profils sont liés aux aérosols marins en distinguant les sels marins fraîchement émis de ceux anthropisés ("sels marins âgés"). Le premier contient de grandes quantités de  $\text{Na}^+$  et  $\text{Cl}^-$  ainsi que les ions majeurs  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Ca}^{2+}$  et  $\text{K}^+$  qui sont les espèces caractéristiques. Le second profil contient également une grande quantité de sodium mais la proportion de chlorures a fortement diminué (ici, le cas extrême de leur complète disparition est atteint) et est compensée par l'augmentation de la proportion d'ions sulfates et l'apparition d'ions nitrates. Cette réaction entre les sels marins et les espèces gazeuses aboutissant à une perte de  $\text{Cl}^-$  est bien connue (Seinfeld and Pandis, 2006). Dans ce second profil, du carbone organique et des métaux sont également présents, ce qui montre une contribution anthropique. La présence des éléments nickel, vanadium, cobalt et dans une moindre mesure du lanthane, est notamment à remarquer et nous avons vu dans les chapitres précédents que ces espèces constituent des marqueurs du trafic maritime. Dans ces conditions, il nous apparaîtra judicieux, dans le contexte de ce travail, de paramétrer par la suite le modèle de manière à ce qu'il puisse considérer un neuvième profil lié à la combustion de fioul lourd que l'on pourrait assimiler aux émissions (directes) du trafic maritime. Le troisième profil contient majoritairement les éléments Al et Fe et les ions  $\text{Ca}^{2+}$  et  $\text{K}^+$  qui sont la signature d'une origine crustale (Mooibroek et al., 2011; Moreno et al., 2013). Ce profil contient également des espèces carbonées et une grande variété de métaux en différentes quantités qui pourraient venir d'un mélange avec des sources anthropiques. Les deux profils suivants contiennent d'importantes quantités d'ions inorganiques secondaires ( $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$  et  $\text{NH}_4^+$ ) qui permettent de les identifier aux nitrates secondaires pour le premier, et aux sulfates secondaires pour le second. La présence de carbone organique dans ces profils pourrait être liée au vieillissement de ces aérosols inorganiques secondaires et au mélange avec des aérosols de combustion (Cusack et al., 2013; Pey et al., 2013). Parmi les aérosols inorganiques secondaires, notre modèle a été capable de distinguer deux profils différents ce qui répond aux recommandations de Viana et al. (2008).

Le sixième profil est marqué par la présence de carbone majoritairement organique, de lévoglucosan et de potassium complété par du carbone élémentaire, des ions sulfates et nitrates. Cela nous permet de l'attribuer aux émissions de la combustion de biomasse (Waked et al., 2014). Le septième profil est marqué par la présence de carbone élémentaire et organique, de nitrate et de différents métaux. Il pourrait être un mélange entre le trafic routier et d'autres sources anthropiques (tels que le chauffage urbain). La présence caractéristique des polyols en plus des espèces carbonées dans le dernier profil nous indique qu'il est relatif aux émissions biogéniques primaires.

- *Cas 9 sources*

Les profils obtenus dans cette configuration sont présentés en vert sur la Figure 58. Le neuvième profil est bien caractéristique de la combustion de fioul lourd avec la présence des marqueurs nickel et vanadium, ainsi que le cobalt et le lanthane. On y trouve également du carbone organique et élémentaire, du sulfate et du nitrate. La contribution du carbone organique est supérieure à celle du carbone élémentaire contrairement à un profil issu du trafic routier, ce qui est conforme à la bibliographie (Zhang et al., 2015).

Ajouter une 9<sup>e</sup> source a permis d'obtenir un profil de sels marins âgés plus affiné et l'on constate que les métaux, Ni, V, Co et La n'y sont plus présents. Le profil "sulfates secondaires" contient également une proportion moindre de métaux traces (Al, Cr, Fe, V, Ni et Sb disparaissent) et de polyols. Dans cette configuration, certains métaux susceptibles d'avoir une origine industrielle sont retrouvés dans les profils crustal, combustion de biomasse et trafic routier. On retrouve notamment du chrome et du plomb dans le profil crustal, de l'antimoine dans celui de combustion de biomasse.

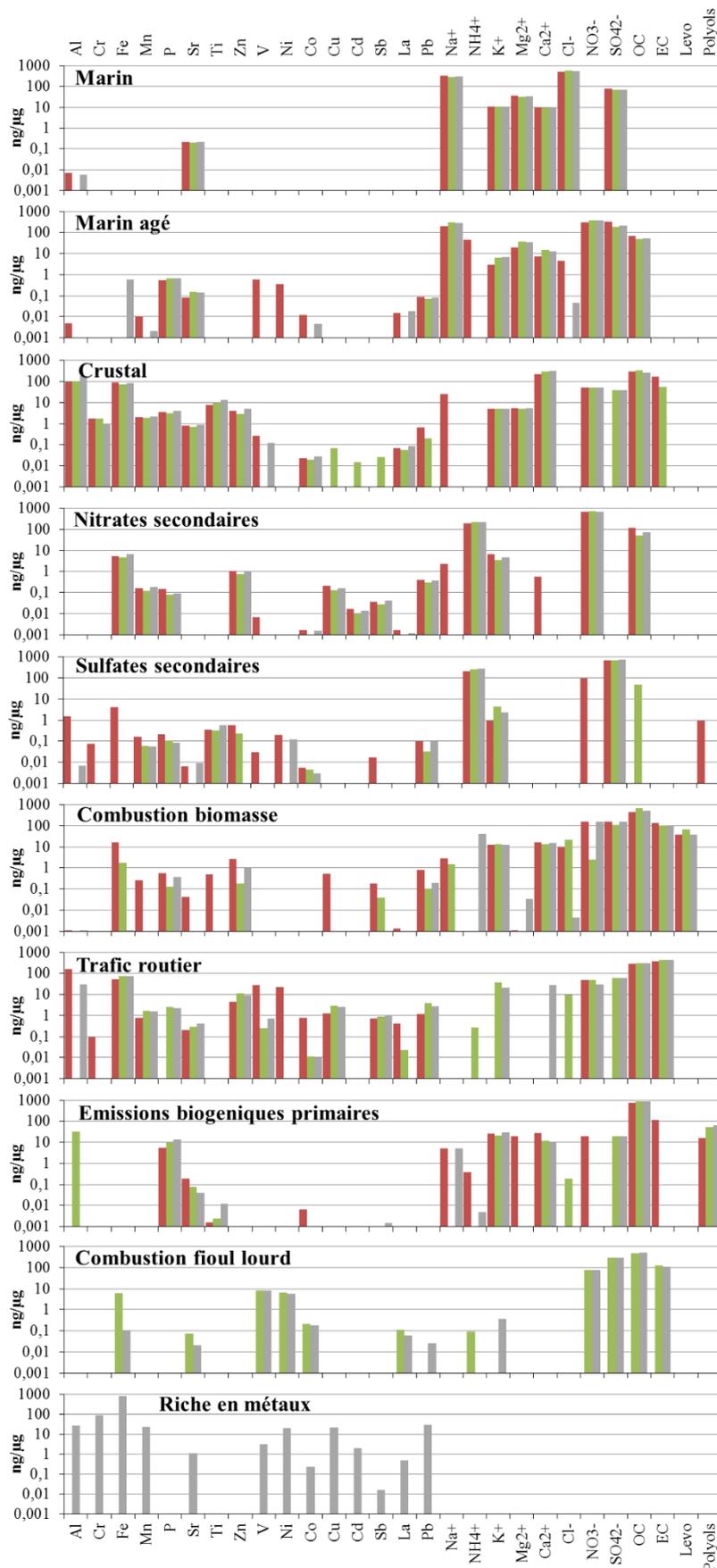


Figure 58 : Profils obtenus dans les configurations à 8 (rouge), 9 (vert) et 10 (gris) sources

- [Cas 10 sources](#)

Afin de limiter la présence de métaux dans l'ensemble de nos profils, nous avons testé la possibilité de considérer un dixième profil "riche en métaux" (Figure 58). Celui-ci s'explique par la présence d'activités industrielles en région ou sur le site de Calais dont les influences pourraient impacter la composition en métaux traces des PM<sub>10</sub> de manière très ponctuelle. Le profil obtenu apparaît très riche en Fe mais également en Al, Pb, Cr, Mn, Ni, Cu. D'autres éléments sont également présents en plus petite quantité (Co, Cd, Sb, La, Sr, V) mais ce profil ne contient pas d'espèces carbonées ou ioniques. L'ajout de cette dixième source a eu l'effet attendu sur les profils crustal, combustion de la biomasse et trafic routier. On observe également la forte diminution de la présence du fer dans le profil combustion de fioul lourd.

Afin d'apporter un autre niveau de comparaison, nous avons comparé les reconstructions globales obtenues dans les trois cas de figure considérés (8, 9 ou 10 sources) dans le Tableau 11. Nous pouvons constater qu'avec 8 sources les données sont moins bien reconstruites avec un ratio de 0,92 entre données reconstruites et données observées. La comparaison à ce niveau entre les cas à 9 et 10 sources est moins évidente, les résultats globaux de reconstruction des données sont très bons dans les deux cas, quoiqu'un peu meilleur pour le cas 9 sources (0,97 contre 0,95). Cependant, comme nous l'avons montré précédemment, les profils obtenus en considérant 10 sources sont plus cohérents et ce dernier critère nous apparaît plus déterminant.

*Tableau 11 : Pentes et coefficients de corrélation (R<sup>2</sup>) entre données reconstruites et données mesurées, en considérant 8, 9, 10 sources dans la procédure CW-NMF*

	<b>pente</b>	<b>R<sup>2</sup></b>
8 sources	0,92	0,95
9 sources	0,97	0,99
10 sources	0,95	0,98

Enfin, la méthode du bootstrap a été utilisée afin de valider les profils obtenus dans un calcul considéré comme une référence et de définir des incertitudes sur les espèces présentes dans les profils. Ainsi, des calculs de factorisation matricielle ont été réalisés sur 100 sous-jeux de données (données bootstrap) construits à partir du jeu de données initial, à l'image du protocole de la PMF 5.0 (Norris, 2014).

#### 4.2.2. [Contributions de source](#)

- [Origine des éléments](#)

A partir des données de contribution résultant de la modélisation, il est possible de calculer les contributions moyennes de chacune des sources à la présence des différentes espèces pour une période donnée. Ainsi, les contributions relatives de chacune des sources à la présence de chacun des éléments pour le site du Cap Gris-Nez et pour l'année 2013, sont présentées sur la Figure 59.

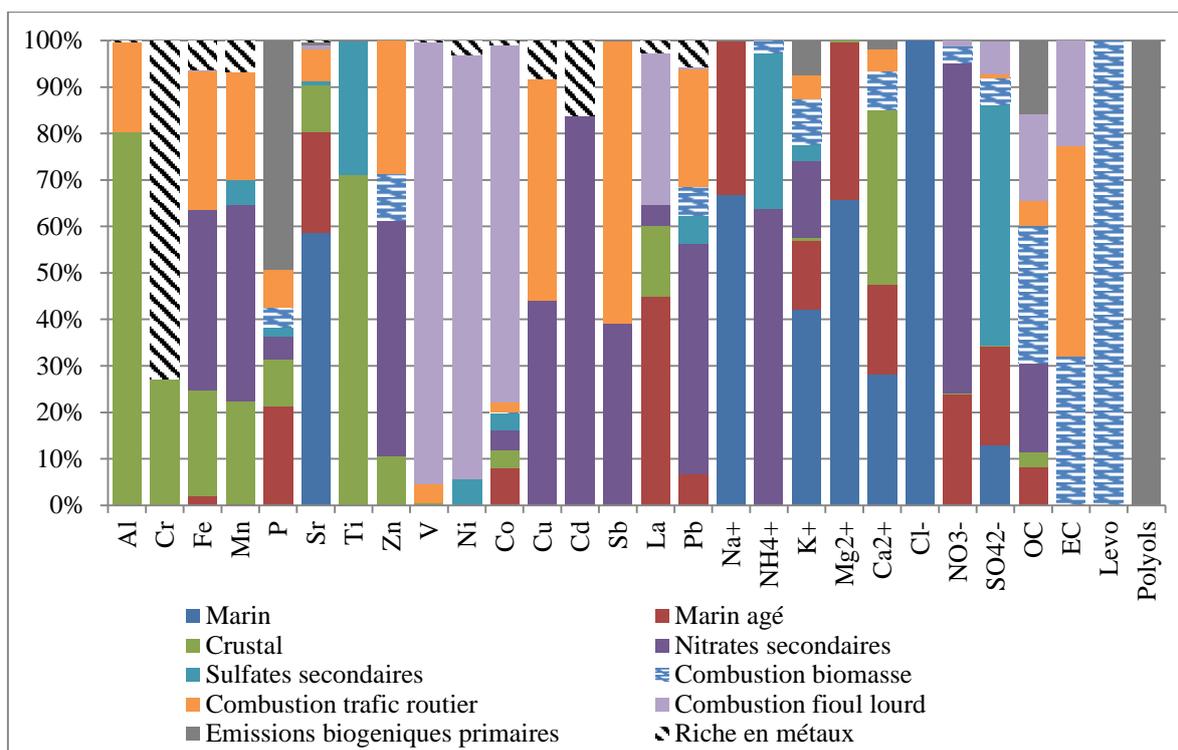


Figure 59 : Contributions moyennes de chaque profil par élément pour le Cap Gris-Nez en 2013

Les distributions de l'origine sur les différentes sources apparaissent cohérentes pour l'ensemble des espèces considérées. Notons que deux espèces montrent une seule origine, il s'agit du lévoglucosan et des polyols. Pour le lévoglucosan uniquement, cette caractéristique est contrainte par le modèle. Le résultat obtenu pour les polyols est totalement satisfaisant, car ces espèces sont bien connues pour être des traceurs spécifiques des émissions biogéniques primaires.

A partir de ces mêmes données de contributions, nous pouvons extraire celles concernant plus spécifiquement un site ou une période. Ainsi, nous avons travaillé sur les données du Cap Gris-Nez en 2013 dans un premier temps et, dans un second temps, les données de 2014 ont été traitées, avec d'un côté celles relatives au Cap Gris-Nez et de l'autre, celles de Calais.

- *Contributions au Cap Gris-Nez en 2013 : moyenne annuelle*

La Figure 60 représente les contributions relatives des 10 sources au Cap Gris-Nez, en moyenne sur les échantillons sélectionnés 1 jour sur 3, en 2013. La source qui présente la contribution la plus importante est celle des aérosols inorganiques secondaires (AIS) parmi lesquels les nitrates secondaires sont majoritaires devant les sulfates secondaires. Ils représentent respectivement des parts de 3/4 et 1/4 de l'ensemble des AIS sur la période. La contribution de ces deux sources est de 41% en 2013 au Cap Gris-Nez. Entre octobre 2010 et octobre 2011, près de Rouen, ces sources d'aérosols inorganiques secondaires représentaient 36% des PM<sub>10</sub> (Favez et al., 2012a). A Lens, au cours de leur étude en 2011-2012, Waked et al. (2014) ont conclu à une contribution de ces sources secondaires de 28%. Une autre étude réalisée à Talence, entre fin mars 2012 et début avril 2013, dans la région bordelaise, a quant à elle mis en évidence par PMF une contribution globale d'environ 32% (Guernion et al., 2014) pour les nitrates et sulfates secondaires, ces derniers renfermant très certainement une contribution du trafic maritime mais qui est négligeable selon les auteurs.

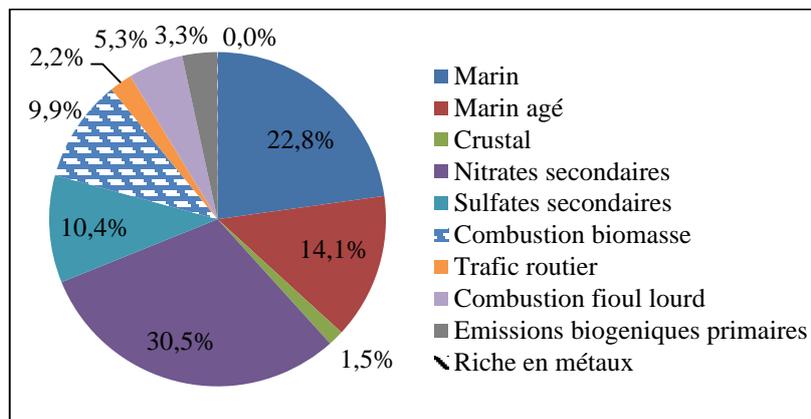


Figure 60 : Contributions moyennes de chaque profil au Cap Gris-Nez en 2013 en considérant uniquement les échantillons 1 jour sur 3

Les autres sources importantes en terme de contribution relative sont les sels marins. Si les deux sources d'origine marine (fraichement émis et anthropisé) sont regroupées, la contribution totale de la mer à la concentration de  $PM_{10}$  est de 37% sur l'année 2013. Dans la banlieue de Rouen, à 50 km de la mer, entre octobre 2010 et octobre 2011, la contribution des sels marins était de 21%. A Talence, celle-ci a été évaluée à environ 30%, valeur qui reste plus faible que celle observée dans notre étude.

La combustion de biomasse représente également une part importante, 10%. Cette valeur est comparable à celle déterminée à Rouen (10%) en 2010-11, mais plus faible que les 13% obtenus à Lens en 2011-2012 (Waked et al., 2014) ou encore des 17% calculés pour le site de Talence en 2012-2013. Les cinq autres sources représentent un total d'environ 10%. La contribution directe du trafic routier est ainsi estimée à 2,2% en comparaison aux 7%, 9,6% et 14% déterminés pour Lens, Talence et Rouen respectivement. Il est important de remarquer que la combustion de fioul lourd, qui peut être reliée à la contribution du trafic maritime sur notre site d'étude, représente 5,3%, soit une part plus importante que le trafic routier (2,2%). Cette valeur peut être comparée aux 3% de la part de  $PM_{10}$  (valeur obtenue après conversion de la part des 5% de  $PM_{2.5}$ ) estimée dans une étude réalisée en Belgique et au Pays-Bas (Viana et al., 2014), pays côtiers de la Mer du Nord. Nous obtenons ici une valeur légèrement supérieure, mais aussi la plus élevée des régions nord européennes, peut-être en raison de la position de notre site d'étude face au détroit du Pas-de-Calais, un des espaces maritimes les plus fréquentés au monde. Cependant, pour conclure définitivement, il conviendrait de regarder le résultat des contributions brutes (en  $\mu g.m^{-3}$ ) et non celles relatives car, de plus, les périodes d'études ne sont pas identiques. Enfin, il ne faut pas perdre de vue que nous estimons ici uniquement la part liée aux émissions directes. Les émissions de  $SO_2$ ,  $NO_x$  qui peuvent contribuer après conversion gaz-particules à une masse non négligeable de PM ne sont pas intégrées dans ce calcul. La valeur de 5% estimée ici pour la contribution du trafic maritime à la teneur en  $PM_{10}$  peut ainsi être considérée comme une valeur minimale.

- *Contributions au Cap Gris-Nez en 2013 : évolution trimestrielle*

Au cours de l'année, suivant la saison, les contributions relatives de chaque source varient de façon importante (Figure 61).

En hiver, les AIS sont les plus importants avec une contribution de presque 50%, tandis que les sels marins comptent pour 30%, ce qui représente leur plus petite contribution de l'année. Les rapports de contribution entre nitrates et sulfates et sels marins frais et âgés sont à peu près les mêmes que sur la moyenne annuelle. A cette saison, la combustion de la biomasse est à son maximum et représente 17%.

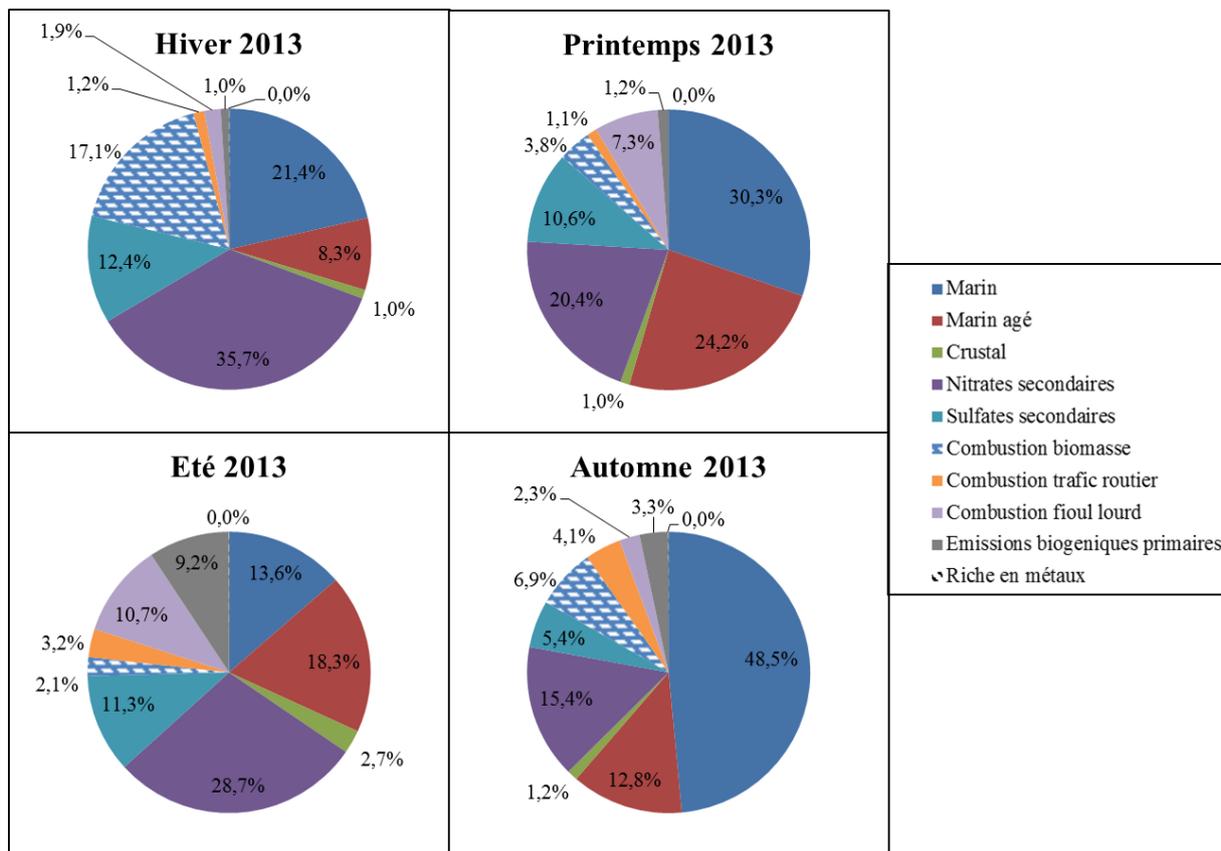


Figure 61 : Contributions relatives des 10 sources pour chaque trimestre 2013 au Cap Gris-Nez (1j/3)

Au printemps 2013, ce sont les sels marins qui prennent de l'importance avec une contribution totale de 54%. Parmi eux, les sels marins anthropisés représentent une part plus grande que précédemment. Au sein des AIS, le rapport entre sulfates et nitrates a changé entre ces deux premières saisons. La part de la combustion de biomasse a bien baissé pendant cette saison tandis que celle de la combustion de fioul lourd a augmenté pour atteindre 7%.

En été, les AIS redeviennent majoritaires et la part des nitrates réaugmente. Dans les sels marins, qui sont dans l'ensemble assez peu présents, la part anthropisée est majoritaire devant la part fraîchement émise. On peut également noter que la combustion de fioul lourd est à son maximum en été avec 11% et que la contribution des émissions biogéniques primaires n'est plus négligeable avec 9%.

Enfin, en automne 2013, où la météorologie a été particulièrement douce, humide et venteuse, les sels marins fraîchement émis représentent presque la moitié des  $PM_{10}$  au Cap Gris-Nez. La deuxième source qui contribue le plus est celle des nitrates secondaires. Ensuite, les sels marins anthropisés et les sulfates secondaires ne représentent plus que 13 et 5% respectivement. La combustion de fioul lourd ne contribue quasiment plus et la contribution de la combustion de biomasse augmente à nouveau.

- *Etudes des situations de dépassement*

La répartition moyenne des contributions relatives des sources pour les jours où la concentration en  $PM_{10}$  est supérieure à  $50 \mu g.m^{-3}$  est représentée sur la Figure 62. L'observation qui avait été faite sur la prédominance du nitrate d'ammonium pendant les épisodes de fortes teneurs, est ici confirmée. En effet, la source qui contribue majoritairement à ces concentrations élevées est celle des nitrates secondaire pour plus de 50%. Les sulfates secondaires sont également une source importante. Ces épisodes ont lieu surtout pendant les périodes froides de l'année, comme il l'a été observé dans

d'autres études (Favez et al., 2012b), et la combustion de biomasse contribue à hauteur de 10% à la concentration de PM<sub>10</sub>. Dans l'étude réalisée à Talence évoquée précédemment (Guernion et al., 2014), il a été montré que lors de certains épisodes de dépassement hivernaux, la contribution de la combustion de biomasse pouvait atteindre jusqu'à 66%, tandis que lors d'épisodes de dépassement printaniers, la part de nitrate d'ammonium peut atteindre 75%.

Les sources marines contribuent très peu (marin et marin âgé, 9%). Enfin, la contribution de la combustion de fioul lourd est plus faible que dans la situation moyenne. Elle est, en moyenne les jours de dépassement, de 3% (contre 5% en moyenne annuelle).

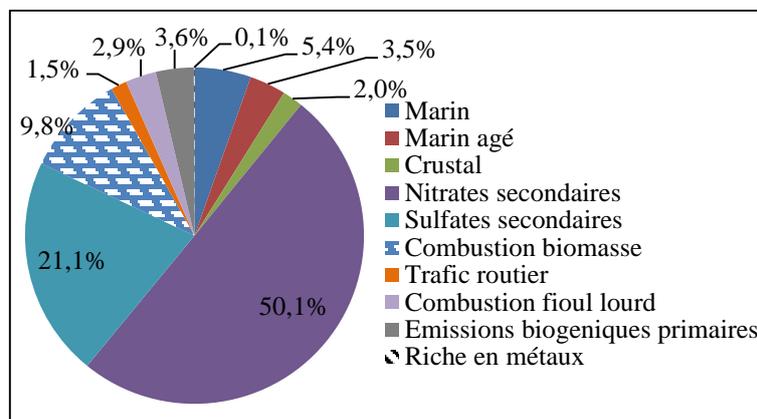


Figure 62 : Répartition moyenne des contributions de chaque profil au cours des jours de dépassement au Cap Gris-Nez en 2013

- *Comparaison des contributions de source entre le Port de Calais et le Cap Gris-Nez en 2014*

Nous nous sommes intéressés aux contributions relatives de chaque source au cours de notre campagne de 2014, entre le 29 janvier et le 17 avril 2014. Sur une même période, les données calculées pour nos deux sites d'étude, le Cap Gris-Nez et le port de Calais, peuvent être comparées (Figure 63 et Figure 64). Rappelons aussi qu'au cours de cette période, les niveaux de PM<sub>10</sub> sont très similaires sur ces deux sites, ainsi les conclusions tirées en raisonnant sur les contributions relatives peuvent être étendues aux contributions absolues.

Ainsi, les aérosols inorganiques secondaires, qui sont liés au transport longue distance contribuent dans des proportions équivalentes sur les deux sites. La part des sels marins est plus importante au Cap Gris-Nez qu'à Calais, ce qui peut s'expliquer par les positions respectives des deux sites de prélèvement : sur une falaise en bord de mer et donc plus exposé pour le premier et dans le port de Calais, plus protégé des embruns pour le second. A l'inverse, la combustion de la biomasse contribue deux fois plus à Calais que sur le site rural. Enfin, il faut noter que la combustion de fioul lourd est responsable de près de 6% des PM<sub>10</sub> dans le port de Calais, ce qui est loin d'être anecdotique, contre 3% au Cap Gris-Nez. Quant au trafic routier, il faut noter qu'il représente une contribution équivalente à celui du trafic maritime sur les deux sites.

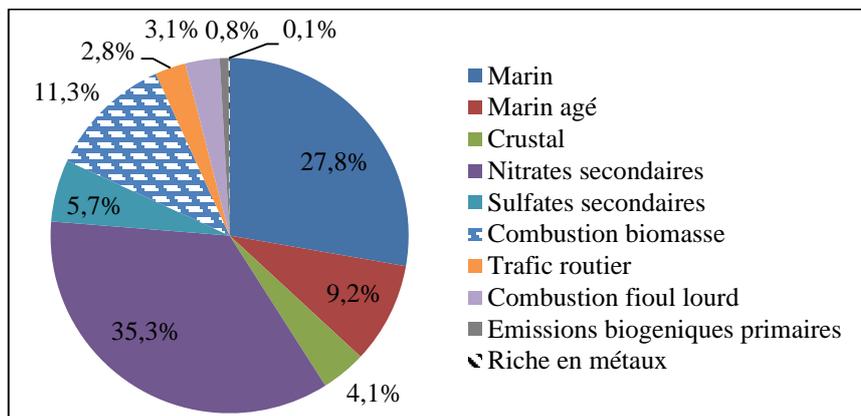


Figure 63 : Contributions moyennes de chaque profil au Cap Gris-Nez entre le 29 janvier et le 17 avril 2014 (données 1 jour/3)

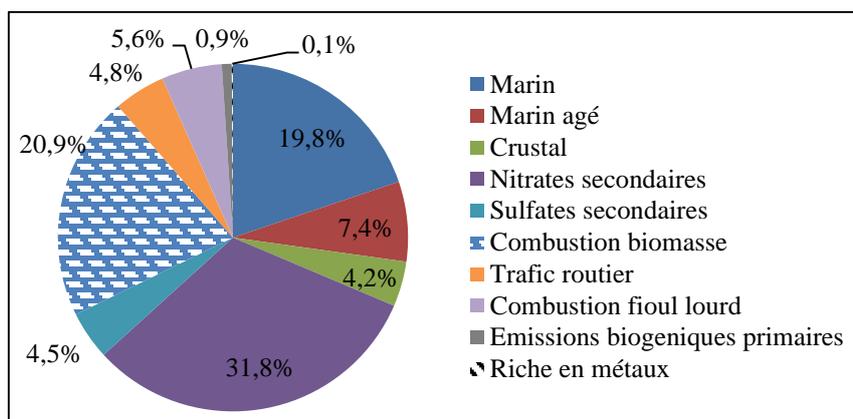


Figure 64 : Contributions moyennes de chaque profil à Calais entre le 29 janvier et le 17 avril 2014 (données 1 jour/3)

- Contributions par secteur de vent au Cap Gris Nez en 2013

De la même façon que nous avons tracé des roses de concentration de  $PM_{10}$  et par espèces chimiques, nous avons construit des roses de contribution, représentant la variation des contributions en fonction de la direction de vent locale. Cependant, dans un objectif de clarté, nous représentons ici la contribution moyenne observée en fonction du secteur de vent indépendamment de la vitesse de vent.

La Figure 65 représente ces roses pour le site du Cap Gris-Nez en 2013. Les profils de nitrates et sulfates secondaires, combustion de biomasse, trafic routier, riche en métaux, crustal et émissions biogéniques primaires montrent des contributions maximales pour des vents venant des secteurs entre est nord-est à sud-est, ce qui correspond à des origines continentales ainsi qu'à des conditions météorologiques propices à l'accumulation des particules. En particulier pour le trafic routier, nous pouvons remarquer une contribution légèrement plus élevée lorsque la direction de vent pointe vers le Royaume-Uni.

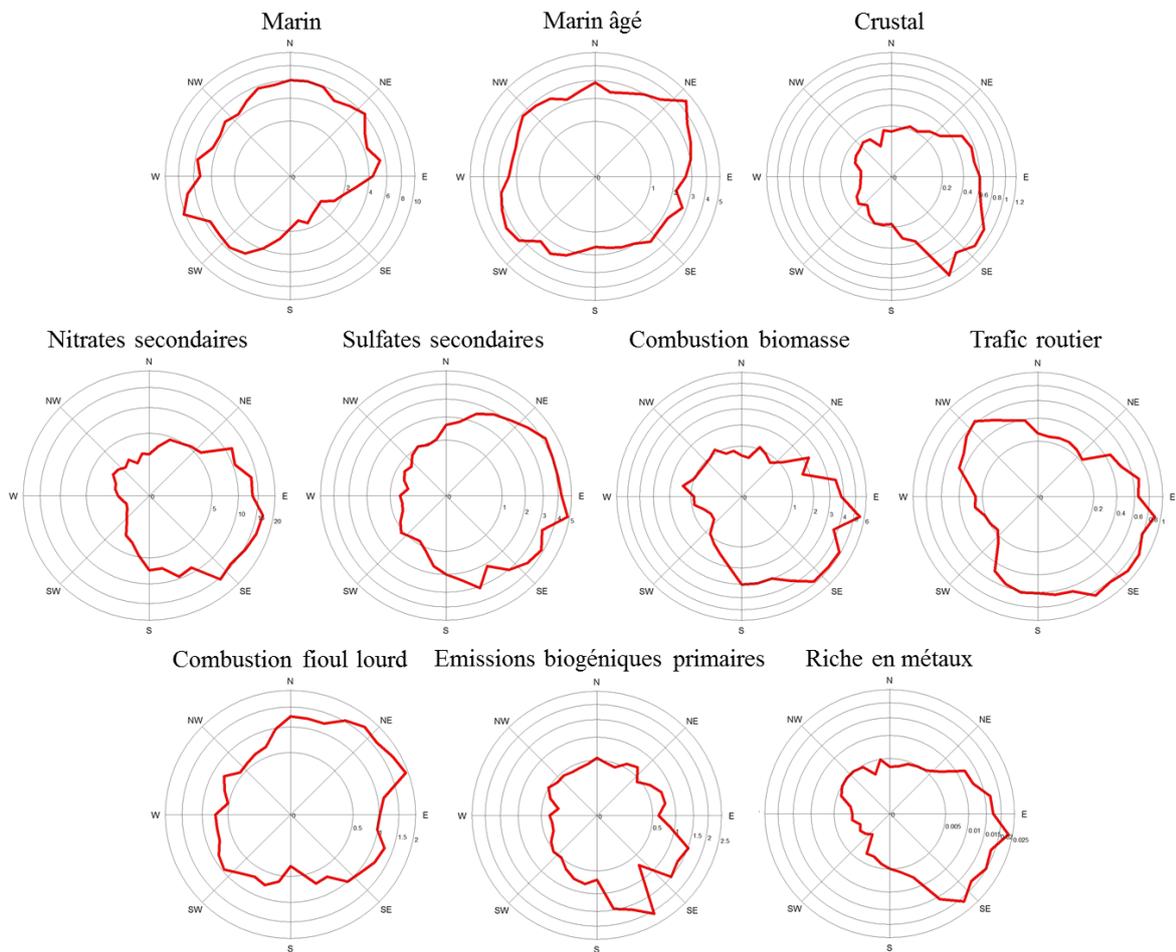


Figure 65 : Contribution de source en fonction des directions de vent au Cap Gris-Nez en 2013

Les sels marins fraîchement émis voient leur contribution augmenter lorsque les vents viennent de la mer, entre les secteurs sud-ouest et nord-est, en passant par le nord. Les sels marins âgés ne semblent pas montrer de direction privilégiée et sont amenés aussi bien de vents soufflant de la mer que du continent. Enfin, la combustion de fioul lourd est présente par des vents continentaux mais la contribution maximale est enregistrée par des vents de secteurs nord à est nord-est. Sur notre site, cette direction englobe la Mer du Nord et une partie du rail de navigation dans la Manche ainsi que le trajet de traversée des ferries Calais-Douvres, sans négliger le port de Calais, reliant fortement cette combustion de fioul lourd au trafic maritime.

### 4.3. Récapitulatif

L'utilisation du modèle de Factorisation Matricielle Non-Négative contrainte et pondérée (CW-NMF), développé par le Laboratoire d'Informatique, Signal et Image de la Côte d'Opale (LISIC) de l'ULCO a permis de mettre en évidence les profils de source ayant un impact sur la concentration et la composition chimique des PM<sub>10</sub> prélevées à Calais et au Cap Gris-Nez. En comparant les différents résultats obtenus dans les configurations à 8, 9 et 10 sources, il est ressorti que la solution à privilégier était celle mettant en jeu 10 sources : "marin", "marin âgé", "crystal", "nitrates secondaires", "sulfates secondaires", "combustion de biomasse", "trafic routier", "combustion fioul lourd" assimilable au trafic maritime, "émissions biogéniques primaires", et une dernière source "riche en métaux". Bien que cette dernière ne soit pas tout à fait validée lors de la procédure bootstrap, sa présence permet néanmoins d'affiner la plupart des autres profils de source. En parallèle, d'autres éléments (ratios caractéristiques, reconstructions des données, distribution des espèces sur les différents profils de source,...) ont permis de valider la pertinence des profils retenus.

Les contributions de chacune de ces sources à la teneur en PM<sub>10</sub> ont été déterminées. Ainsi, il ressort que sur l'année 2013, la majorité des particules contribuant à la masse provient des sources marines (37%) et par les sources d'aérosols secondaires (41%). L'importante contribution de la source marine (sels marins fraîchement émis et anthropisés) s'explique par la localisation côtière de notre site étude. Enfin, les contributions d'aérosols secondaires augmentent fortement lors des situations de dépassement.

La factorisation matricielle nous a également permis d'identifier le profil d'une source de combustion de fioul lourd, riche en carbones organique et élémentaire, en sulfate et contenant les éléments métalliques nickel, vanadium et cobalt. Cette source est liée à l'influence des émissions des bateaux et du trafic maritime. Sa contribution au Cap Gris-Nez est à son maximum en été 2013, saison à laquelle elle représente entre 2 et 3 µg.m<sup>-3</sup>, soit 11% des PM<sub>10</sub>. La comparaison des deux sites d'étude permet de montrer que la combustion de fioul lourd est plus impactante à Calais qu'au Cap Gris-Nez. Ainsi, à Calais, lors des premiers mois de l'année 2014, la part des PM<sub>10</sub> expliquée par cette source est de 6% soit deux fois plus qu'au Cap Gris-Nez.

## 5. Comparaison modèle/mesures

**Auteur :** Charles Beaugard

Les chaînes de modélisation Prev'air et ESMERALDA sont couramment utilisées au sein d'atmo Nord-Pas-de-Calais ainsi que d'autres associations de surveillance de la qualité de l'air à des fins de prévision, voire de diagnostic. Outre les concentrations en divers polluants réglementés comme les PM10, ces modèles, de par les schémas réactifs de chimie qu'ils mettent en œuvre, estiment les concentrations d'une série d'espèces chimiques sous forme particulaire.

L'étude Ecume fournit une base de données importante sur la composition chimique des particules sur des sites de mesure en contexte littoral. Afin d'évaluer les sorties de caractérisation chimique des particules de ces modèles, une étude de comparaison modèles / mesures a été effectuée : les séries de données journalières des modèles ont été comparées aux résultats des analyses des échantillons prélevés sur le site du Cap Gris-Nez.

### 5.1. Les modèles utilisés

#### 5.1.1. [ESMERALDA GN15](#)

La plate-forme inter-régionale ESMERALDA (EtudeS Multi RégionALes De l'Atmosphère) résulte de la collaboration de 10 Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air d'un grand quart nord-ouest de la France. ESMERALDA rassemble un modèle méso-échelle pour calculer les champs météo, le modèle CHIMERE comme modèle de chimie-transport et des inventaires d'émissions.

- [Météo](#)

C'est le modèle MM5 distribué par le NCAR<sup>9</sup> qui est exploité dans sa version V.7.3. Les données d'initialisation sont des prévisions du modèle GFS<sup>10</sup> du NCEP<sup>11</sup>. Trois domaines imbriqués du modèle MM5 sont mis en œuvre :

- sur l'Europe à 45 km,
- la France à 15 km,
- la zone ESMERALDA à 5 km.

---

<sup>9</sup> National Center for Atmospheric Research - <http://ncar.ucar.edu/home>

<sup>10</sup> Global Forecast System - <http://www.emc.ncep.noaa.gov/index.php?branch=GFS>

<sup>11</sup> National Centers for Environmental Prediction - <http://www.ncep.noaa.gov/>

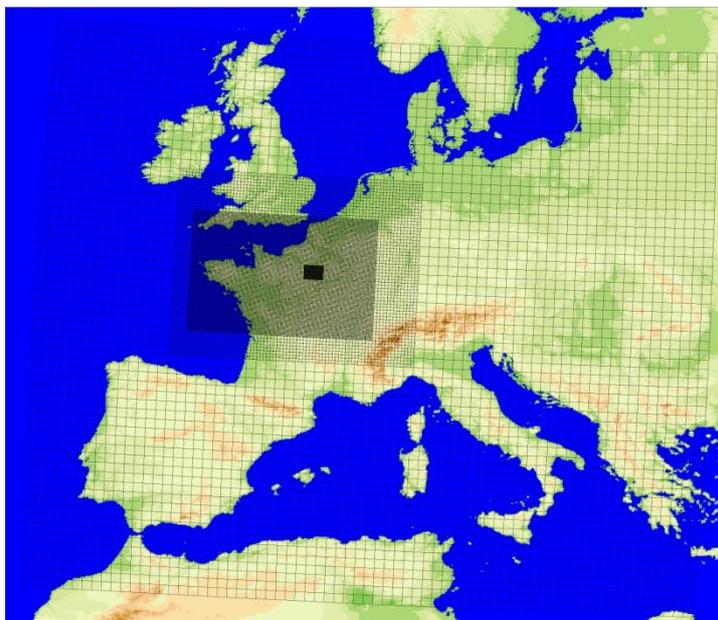


Figure 66 : Domaines MM5 45, 15, 5 km

Un domaine supplémentaire à 1.67 km est centré sur l'agglomération Parisienne.

- [Intégration des émissions dans la plate-forme ESMERALDA](#)

Trois sources de données sont exploitées pour les émissions :

- Inventaire EMEP<sup>12</sup> spatialisé sur la base de CORINE LAND COVER<sup>13</sup> pour les zones non couvertes par un inventaire local
- Inventaire inter-régional sur 9 régions partenaires (l'inventaire de la région Bourgogne intégré en octobre 2013). L'inventaire des émissions de la région des Pays de la Loire n'est pour le moment pas intégré dans la plate-forme.
- Exploitation des sorties du système HEAVEN pour les émissions liées au trafic sur la région Ile de France.

---

<sup>12</sup> European Monitoring and Evaluation Programme - <http://www.emep.int/>

<sup>13</sup> Base de données européenne d'occupation biophysique des sols, projet est piloté par l'Agence Européenne de l'Environnement.

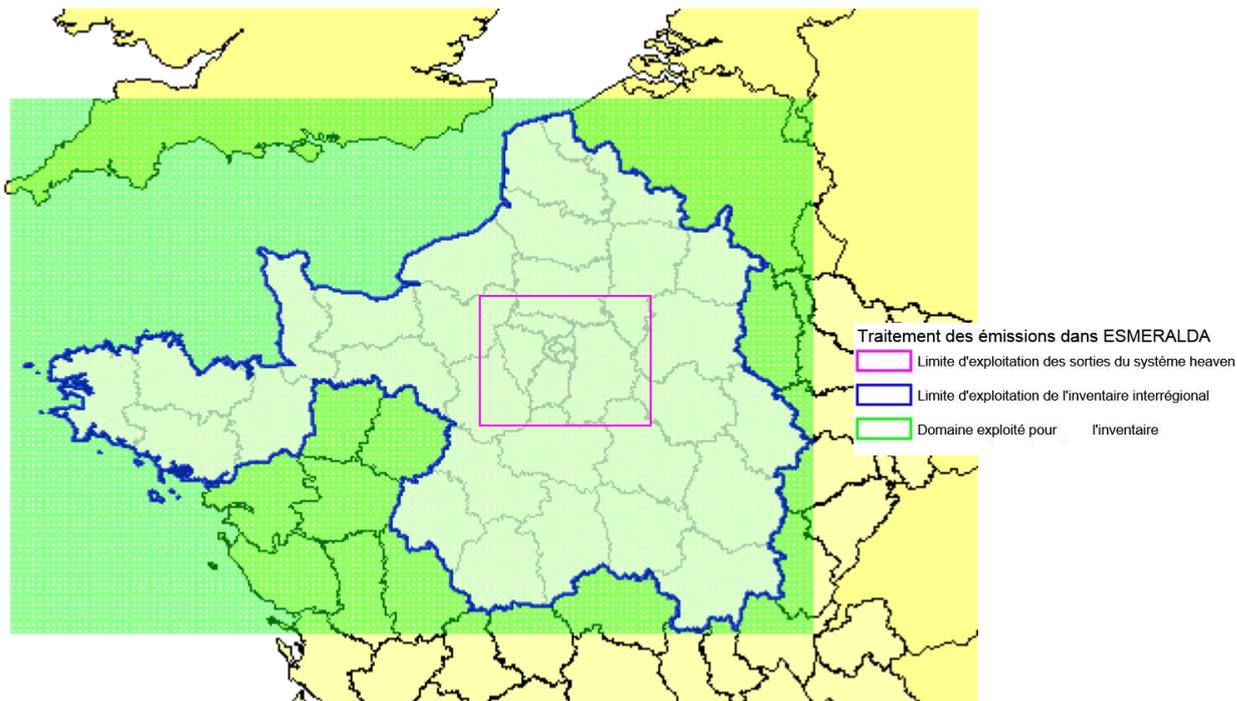


Figure 67 : Organisation de la gestion des émissions

Hors du cadre vert, ce sont les émissions EMEP qui sont exploitées, comme entre le contour bleu et le cadre vert. Le cadre rose ne concerne que les émissions liées au trafic sur le domaine Ile de France qui sont calculées par le système HEAVEN, les autres sources étant alimentées par l'inventaire interrégional.

Depuis début 2013, a été mise en place d'une méthodologie permettant de prendre en compte la température modélisée dans le calcul des émissions liées au chauffage résidentiel et au secteur de la production d'électricité (au préalable, les émissions étaient calculées sur la base de climatologies).

- Dispersion

C'est le modèle CHIMERE développé par l'IPSL-LISA-INERIS qui est exploité dans sa version CHIMERE2011a, en prévision sur la base des sorties brutes PREVAIR à l'échelle continentale (~170 espèces sur 8 niveaux alimentent la plate-forme ESMERALDA).

4 domaines de calcul sont exploités :

- CONT4 à l'échelle continentale, lorsque PREV'AIR n'est pas disponible
- GN15 à 15 km,
- ESM : domaine à haute résolution (3 km) couvrant les 10 régions.

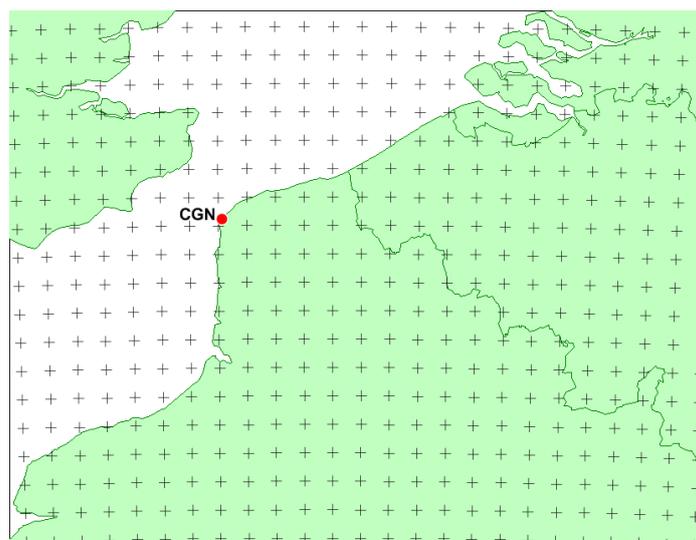
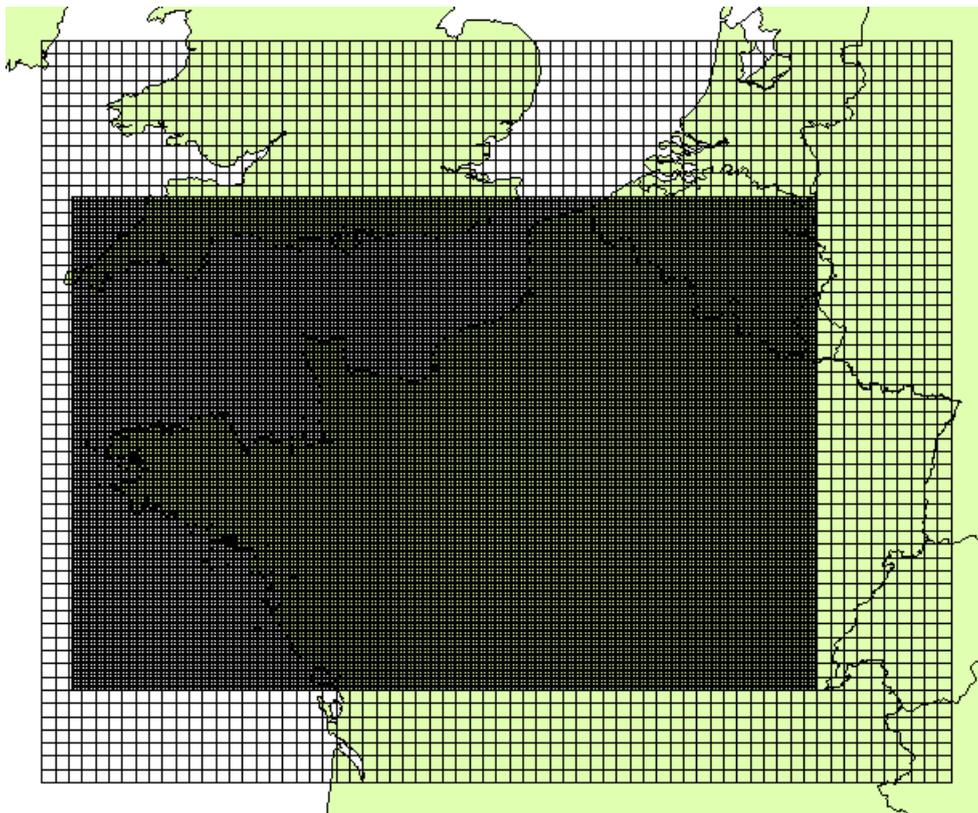


Figure 68 : Domaines GN15 et ESM sur la France, et domaine GN15 sur la région

▪ [Espèces chimiques exploitées et période](#)

Les espèces chimiques issues du modèle GN15 et exploitées pour cette comparaison modèle / mesures sont :

- PM<sub>10</sub>
- Nitrate
- Ammonium
- Sulfate
- OC (carbone organique)
- EC (carbone élémentaire)

Les données ont été extraites sur la maille de modélisation la plus proche du site de mesure du Cap Gris-Nez, et sur une série chronologique de valeurs moyennes journalières de prévisions à J-1 qui s'étend du 01/01/2013 au 31/12/2013 soit sur 183 échantillons analysés.

### 5.1.2. [PREV'AIR AFM](#)

La plateforme de prévision et de surveillance de la qualité de l'air PREV'AIR est le fruit du partenariat entre l'INERIS, le CNRS/IPSL, Météo France et le LCSQA.

Plusieurs versions de modèles sont opérationnelles dans PREV'AIR, mais dans le cadre de cette étude ce sont les données de la chaîne AFM qui ont été retenues. Cette chaîne met en œuvre un modèle météo, le modèle CHIMERE pour la dispersion, et un inventaire d'émissions.

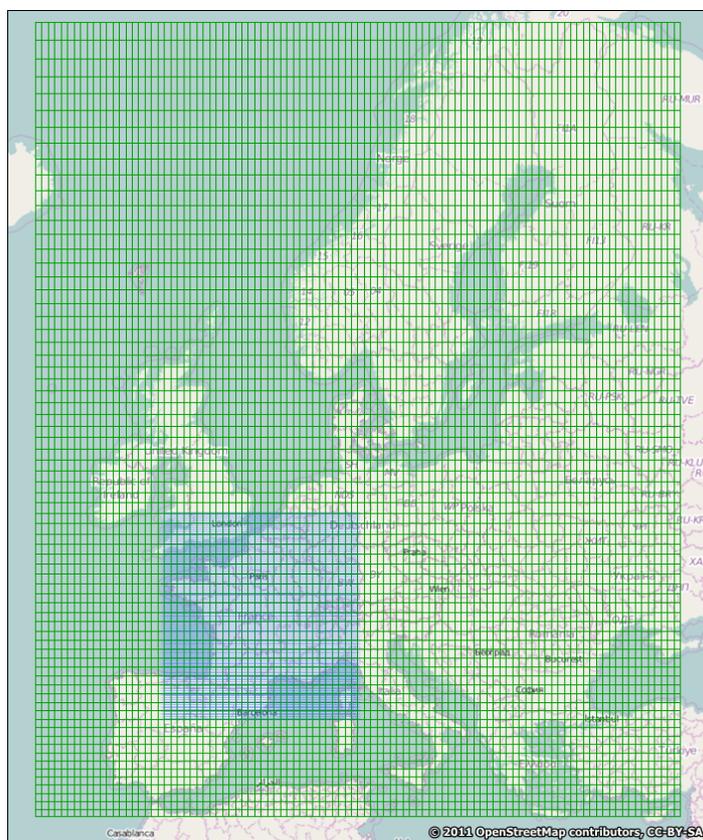
- [Météo](#)

Le modèle MM5 initialisé par les prévisions du modèle GFS est utilisé dans la plateforme opérationnelle AFM.

- [Intégration des émissions](#)

Les émissions sont issues de l'inventaire européen EMEP 2008.

- [Dispersion](#)



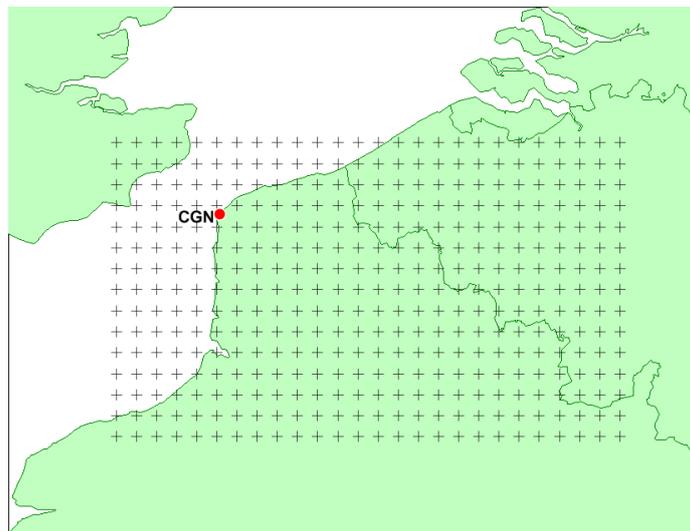


Figure 69 : Domaines AWM et AFM sur la France et l'Europe, et domaine AFM sur la région

Le modèle CHIMERE est également mis en œuvre sur la chaîne AFM. Les conditions aux limites du modèle sont données par les sorties de la chaîne AWM qui couvre l'Europe avec une résolution de 0.5° par 0.5°. AFM possède une résolution de 0.15° par 0.1°, soit environ 11 par 11 km, et couvre le territoire français métropolitain.

- [Espèces chimiques exploitées](#)

Les espèces chimiques issues du modèle et exploitées pour cette comparaison modèle / mesures sont :

- PM<sub>10</sub>
- Nitrate
- Ammonium
- Sels Marins (SALT)
- Sulfate
- OC (carbone organique)
- EC (carbone élémentaire)

Les données ont été extraites sur la maille de modélisation la plus proche du site de mesure du Cap Gris-Nez, et sur une série chronologique de valeurs moyennes journalières de prévisions à J-1 qui s'étend du 01/01/2013 au 30/04/2014 soit sur 242 échantillons.

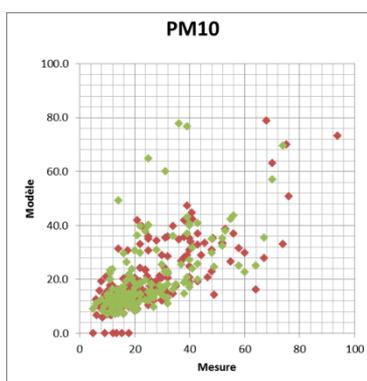
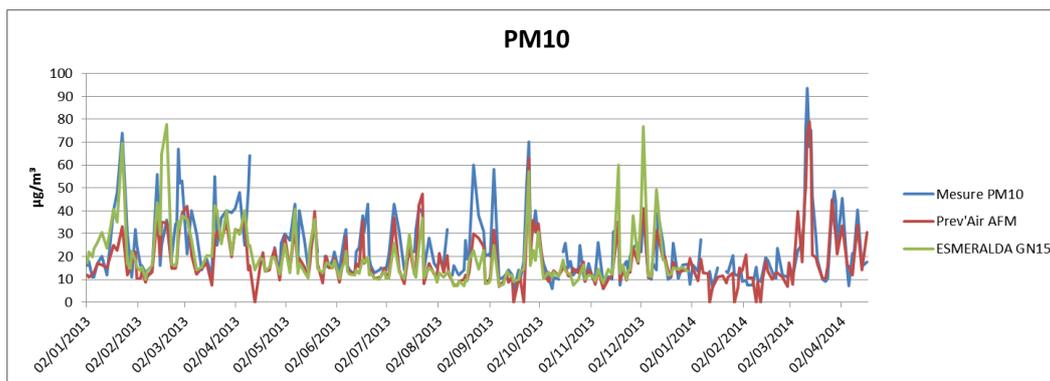
Pour les besoins de la comparaison, les résultats des analyses en ions Na<sup>+</sup>, Cl<sup>-</sup> et Mg<sup>2+</sup> ont été additionnés pour donner un équivalent au paramètre SALT extrait du modèle.

## 5.2. Comparaisons modèles / mesures par espèce chimique

Dans ce paragraphe sont présentés les résultats des modèles GN15 et AFM avec les mesures réalisées sur le site du Cap Gris-Nez. Afin de les comparer, quelques indicateurs statistiques simples ont été établis :

- les moyennes, minimum et maximum ;
- le biais : il s'agit de la moyenne de la différence entre les données simulées et les données observées ; il permet de rendre compte de l'erreur systématique commise par le modèle ;
- l'erreur absolue moyenne (MAE) : il s'agit de la moyenne de la valeur absolue de la différence entre les données simulées et observées ; ce paramètre représente l'erreur totale ;
- le coefficient de corrélation R : compris entre  $-1$  et  $1$ , sans dimension, plus le coefficient est élevé, plus le modèle reproduit bien les variations temporelles des observations ; le coefficient de corrélation permet de quantifier l'erreur locale.

### 5.2.1. PM<sub>10</sub>



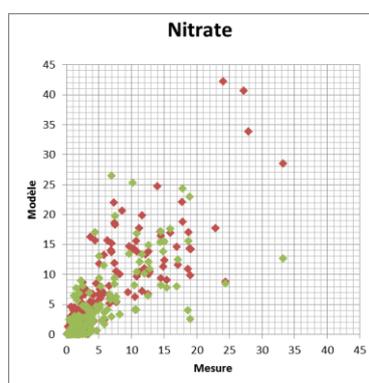
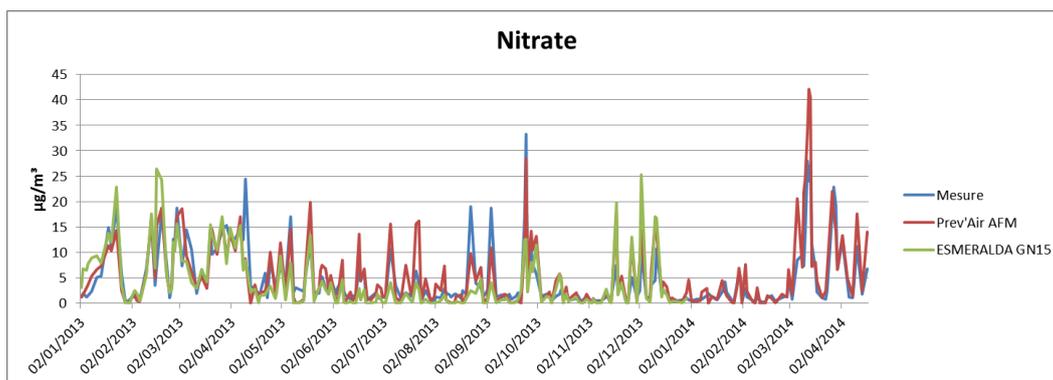
	Mesure / AFM	Mesure / GN15
Moyenne µg/m <sup>3</sup>	23.6 / 18.8	23.9 / 19.6
Min µg/m <sup>3</sup>	5.0 / 5.8	5.0 / 7.0
Max µg/m <sup>3</sup>	94 / 79	74 / 78

		Total	Si PM10 > 50	Si PM10 < 15
AFM	Biais µg/m <sup>3</sup>	-4.9	-22	0.2
	MAE µg/m <sup>3</sup>	7.4	23.5	3.1
	Coef. R	0.78	-	-
GN15	Biais µg/m <sup>3</sup>	-4.1	-21	1.5
	MAE µg/m <sup>3</sup>	9.1	21.3	4
	Coef. R	0.60	-	-

La comparaison modèles / mesure pour les PM<sub>10</sub> montre une sous-estimation des modèles AFM et GN15 en moyenne (avec un biais de l'ordre  $-4$  à  $-5$  µg/m<sup>3</sup>). Cette sous-estimation est renforcée si les concentrations en PM<sub>10</sub> sont supérieures à 50 µg/m<sup>3</sup>, ou atténuée si les concentrations sont faibles. Sur les graphiques, le modèle GN15 produit quelques surestimations par concentrations mesurées modérées, et il est globalement moins bien corrélé avec les mesures que le modèle AFM.

Cette tendance à la sous-estimation des modèles bruts pour les PM<sub>10</sub> est connue : c'est pour cette raison que les modèles avec adaptation statistique ont été développés pour la prévision.

### 5.2.2. Nitrate



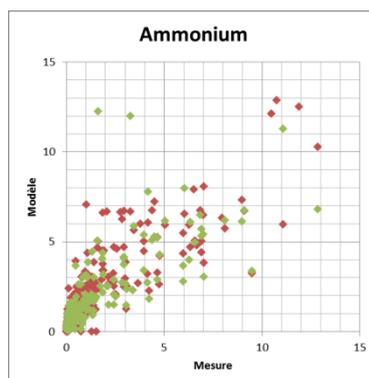
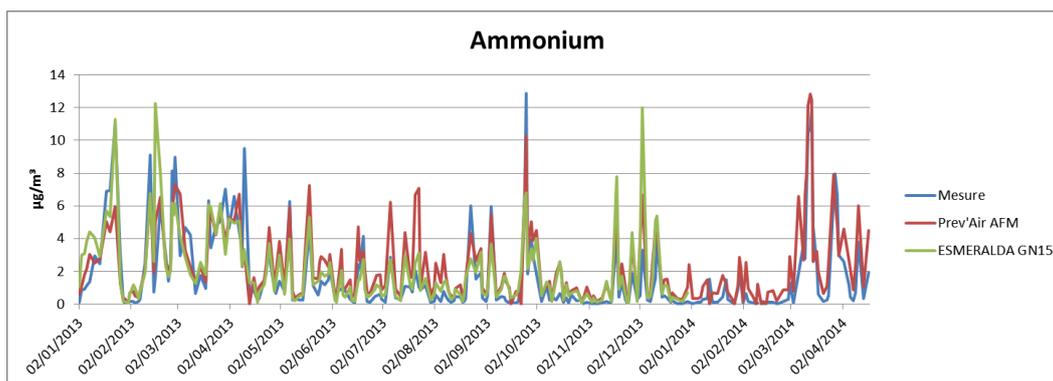
	Mesure / AFM	Mesure / GN15
Moyenne µg/m <sup>3</sup>	4.7 / 5.5	4.5 / 4
Min µg/m <sup>3</sup>	0.2 / 0	0.2 / 0
Max µg/m <sup>3</sup>	33 / 42	33 / 26

		Total	Si PM <sub>10</sub> > 50	Si PM <sub>10</sub> < 15
AFM	Biais µg/m <sup>3</sup>	0.8	-0.5	0.4
	MAE µg/m <sup>3</sup>	2.3	7	1.13
	Coef. R	0.84	-	-
GN15	Biais µg/m <sup>3</sup>	-0.5	-6.6	-0.04
	MAE µg/m <sup>3</sup>	2.4	7.65	1.3
	Coef. R	0.71	-	-

Le modèle AFM aboutit à une assez bonne restitution du nitrate par concentrations PM<sub>10</sub> élevées (biais de -0.5 µg/m<sup>3</sup>), mais tend à la surestimer le reste du temps. Par contre le modèle GN15 sous-estime de manière générale : le biais est faiblement négatif en moyenne mais le devient plus nettement quand les concentrations en PM<sub>10</sub> sont supérieures à 50 µg/m<sup>3</sup>.

Le nuage de points met en évidence plusieurs valeurs élevées relativement bien prévues par le modèle AFM, dont plusieurs se déroulent pendant l'épisode de pollution de mars 2014 caractérisé par des fortes concentrations en nitrate d'ammonium. Les données du modèle GN15 n'ont pas pu être traitées pour cette période.

### 5.2.3. Ammonium



	Mesure / AFM	Mesure / GN15
Moyenne $\mu\text{g}/\text{m}^3$	1.7 / 2.4	1.7 / 2.0
Min $\mu\text{g}/\text{m}^3$	0.0 / 0.1	0.0 / 0.1
Max $\mu\text{g}/\text{m}^3$	13 / 13	12.9 / 12.3

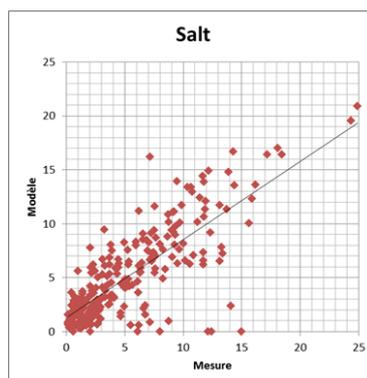
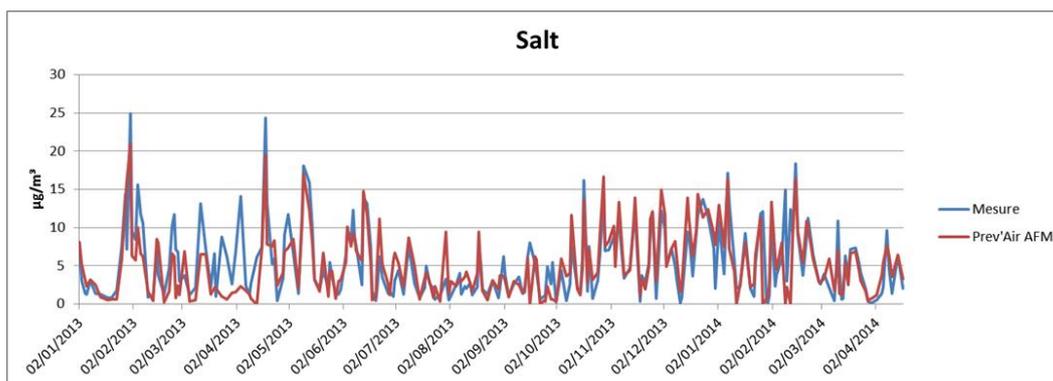
		Total	Si PM10 > 50	Si PM10 < 15
AFM	Biais $\mu\text{g}/\text{m}^3$	0.6	-1.3	0.7
	MAE $\mu\text{g}/\text{m}^3$	1.1	2.0	0.69
	Coef. R	0.85	-	-
GN15	Biais $\mu\text{g}/\text{m}^3$	0.3	-2.4	0.5
	MAE $\mu\text{g}/\text{m}^3$	1.0	2.48	0.57
	Coef. R	0.75	-	-

Les modèles surestiment légèrement les concentrations basses, avec des biais légèrement plus élevés qu'en moyenne, et sous-estiment légèrement les concentrations si les concentrations en PM<sub>10</sub> sont supérieures à 50  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ .

On remarque notamment que la surestimation par les modèles se produit entre mai et septembre, ce qui pourrait être lié à une difficulté à évaluer cette espèce en période estivale en raison de la volatilité de l'ammonium. On se serait donc soit sur une surestimation réelle ou un déficit au niveau de la mesure.

En période d'épisode de PM<sub>10</sub>, les prévisions des modèles sont assez bonnes malgré la faible sous-estimation. Lors de l'épisode de mars 2014, on peut noter une bonne reconstitution par le modèle AFM.

## 5.2.4. Sels marins



	Mesure / AFM	Mesure / GN15
Moyenne µg/m <sup>3</sup>	5.4 / 5.4	
Min µg/m <sup>3</sup>	0.2 / 0.3	
Max µg/m <sup>3</sup>	24.9 / 20.9	

		Total	Si PM10 > 50	Si PM10 < 15
AFM	Biais µg/m <sup>3</sup>	0.01	-1.9	0.9
	MAE µg/m <sup>3</sup>	1.8	2.1	1.7
	Coef. R	0.84	-	-
GN15	Biais µg/m <sup>3</sup>			
	MAE µg/m <sup>3</sup>			
	Coef. R			

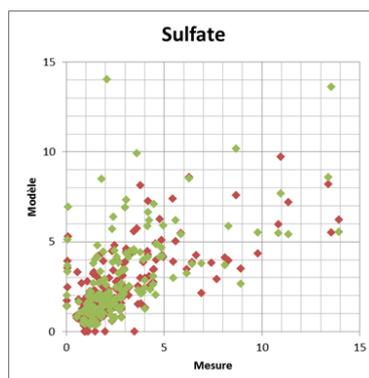
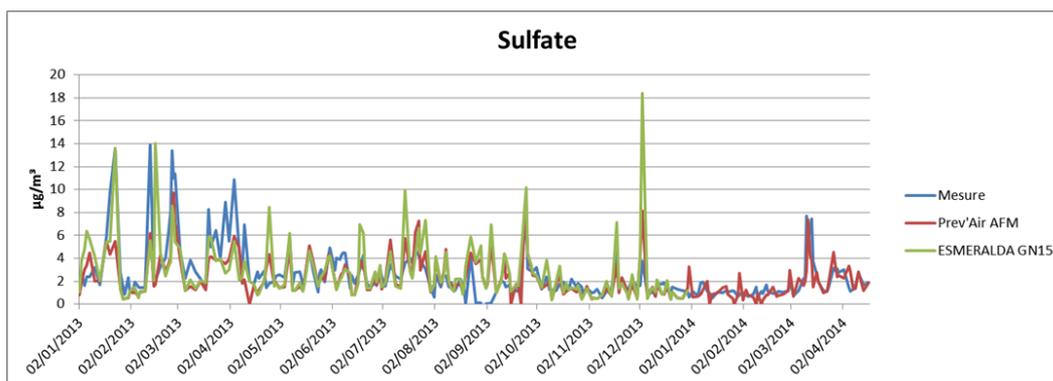
Pour ce paramètre, seules les données du modèle AFM ont pu être exploitées.

La comparaison avec les mesures met en évidence une bonne reconstitution en moyenne, avec un biais presque nul, et une légère sous-estimation des concentrations si les concentrations en PM<sub>10</sub> sont élevées.

La courbe d'évolution des valeurs journalière est singulière puisque les valeurs élevées en sels marins ne coïncident pas avec des valeurs élevées en PM<sub>10</sub> ou en nitrates, mais plutôt à des périodes marquées par des conditions de vent modéré à fort, de secteur ouest, favorable à des envois d'embruns marins. A l'opposé, la période de l'été 2013, moins influencée par des conditions dépressionnaires, est caractérisée par des concentrations en sels marins plus faibles.

Le modèle a donc une bonne capacité à reproduire les concentrations en sels marins sur ce site littoral.

### 5.2.5. Sulfate



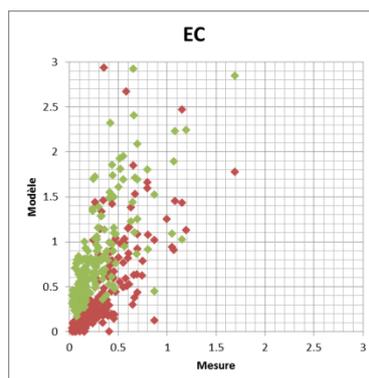
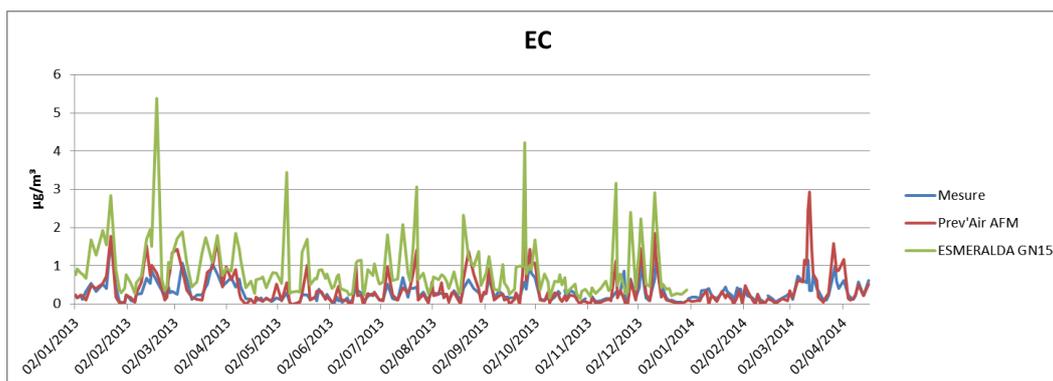
	Mesure / AFM	Mesure / GN15
Moyenne $\mu\text{g}/\text{m}^3$	2.6 / 2.3	2.8 / 2.9
Min $\mu\text{g}/\text{m}^3$	0 / 0.3	0 / 0.4
Max $\mu\text{g}/\text{m}^3$	14 / 10	13.9 / 18.4

		Total	Si PM10 > 50	Si PM10 < 15
AFM	Biais $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-0.29	-2.5	0.1
	MAE $\mu\text{g}/\text{m}^3$	1.1	3.81	0.59
	Coef. R	0.71	-	-
GN15	Biais $\mu\text{g}/\text{m}^3$	0.08	-1.4	0.2
	MAE $\mu\text{g}/\text{m}^3$	1.4	3.66	0.79
	Coef. R	0.54	-	-

Le modèle AFM sous-estime les concentrations en sulfate, en particulier quand les mesures  $\text{PM}_{10}$  sont supérieures à  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Le modèle GN15 effectue globalement une meilleure prévision du sulfate : le biais est meilleur en moyenne, mais le modèle tend encore à sous-estimer si les concentrations en  $\text{PM}_{10}$  sont élevées. On peut noter une forte surestimation de la part de GN15 le 2/12/13, ainsi que des écarts relativement élevés entre le 20/08 et le 4/09.

Une partie majoritaire des sulfates est généralement issue des phénomènes de conversion gaz-particules, les sulfates résultant ainsi de la transformation du dioxyde de soufre. Néanmoins, les ions sulfates sont présents également dans les embruns marins naturels et leur proportion y est accrue dans les sels marins anthropisés (ou âgés). En effet, les sulfates ont la particularité de remplacer les ions chlorure dans les sels marins anthropisés. Notons que l'on retrouve enfin les sulfates dans des poussières minérales, où il peut être associé à des éléments métalliques. Une forme bien connue est le gypse utilisé notamment dans les matériaux de construction.

## 5.2.6. Carbone élémentaire EC

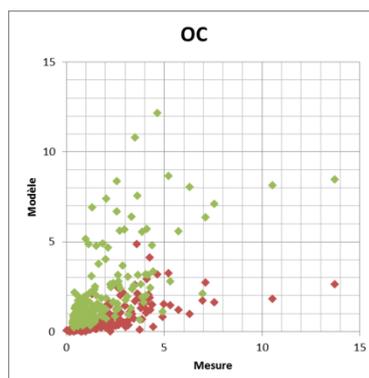
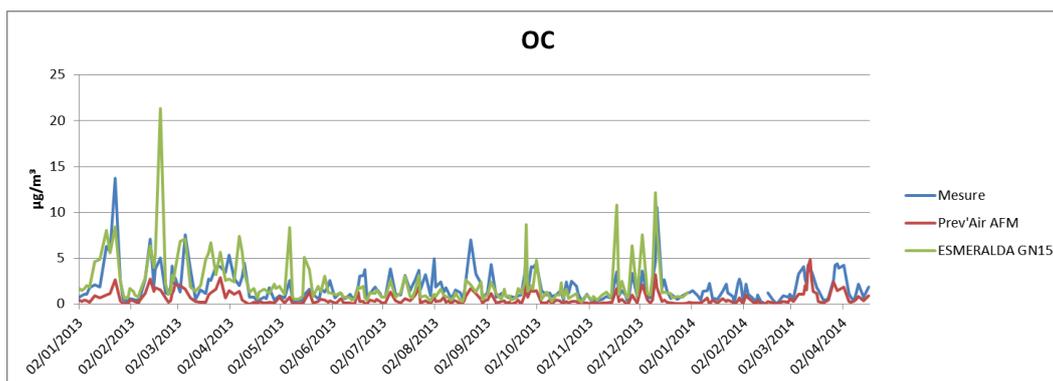


	Mesure / AFM	Mesure / GN15
Moyenne $\mu\text{g}/\text{m}^3$	0.31 / 0.4	0.3 / 0.9
Min $\mu\text{g}/\text{m}^3$	0.03 / 0	0.0 / 0.1
Max $\mu\text{g}/\text{m}^3$	1.7 / 2.9	1.7 / 5.4

		Total	Si PM10 > 50	Si PM10 < 15
AFM	Biais $\mu\text{g}/\text{m}^3$	0.09	0.8	-0.004
	MAE $\mu\text{g}/\text{m}^3$	0.2	0.8	0.1
	Coef. R	0.71	-	-
GN15	Biais $\mu\text{g}/\text{m}^3$	0.61	1.1	0.4
	MAE $\mu\text{g}/\text{m}^3$	0.6	1.1	0.4
	Coef. R	0.59	-	-

Les résultats pour le carbone élémentaire montrent une tendance à la surestimation de la part des deux modèles (en particulier GN15 sur le nuage de points), qui est renforcée si les concentrations sont élevées  $\text{PM}_{10} > 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ .

### 5.2.7. Carbone organique OC



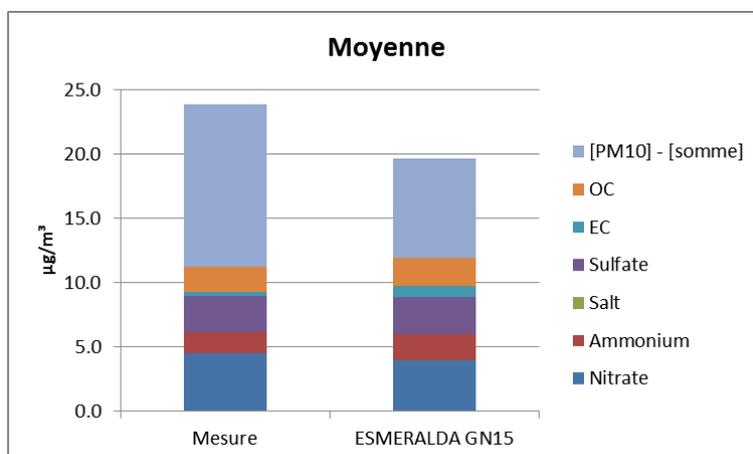
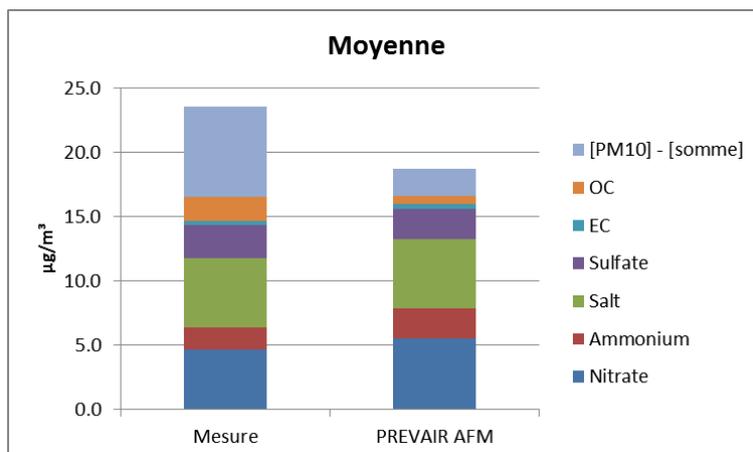
	Mesure / AFM	Mesure / GN15
Moyenne $\mu\text{g}/\text{m}^3$	1.83 / 0.63	1.9 / 2.2
Min $\mu\text{g}/\text{m}^3$	0.04 / 0.0	0.3 / 0.2
Max $\mu\text{g}/\text{m}^3$	13.7 / 4.8	13.7 / 21.4

		Total	Si PM10 > 50	Si PM10 < 15
AFM	Biais $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-1.24	-2.6	-0.7
	MAE $\mu\text{g}/\text{m}^3$	1.3	2.8	0.7
	Coef. R	0.68	-	-
GN15	Biais $\mu\text{g}/\text{m}^3$	0.31	-0.8	0.3
	MAE $\mu\text{g}/\text{m}^3$	1.1	2.1	0.7
	Coef. R	0.61	-	-

Les deux modèles ont un comportement différent pour le carbone organique. Il existe une importante sous-estimation par le modèle AFM, alors que le modèle GN15 surestime en moyenne, et sous-estime (dans une moindre mesure qu'AFM) si les concentrations en PM<sub>10</sub> sont supérieures à 50  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ .

## 5.3. Comparaison de la composition des aérosols en fonction des modèles.

### 5.3.1. Répartitions moyennes



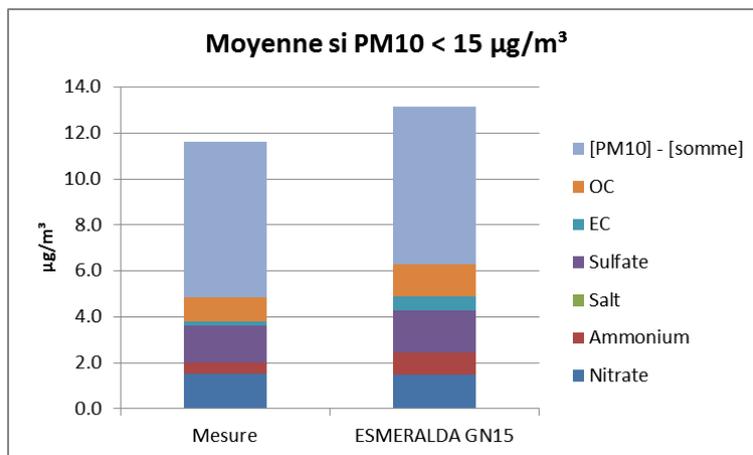
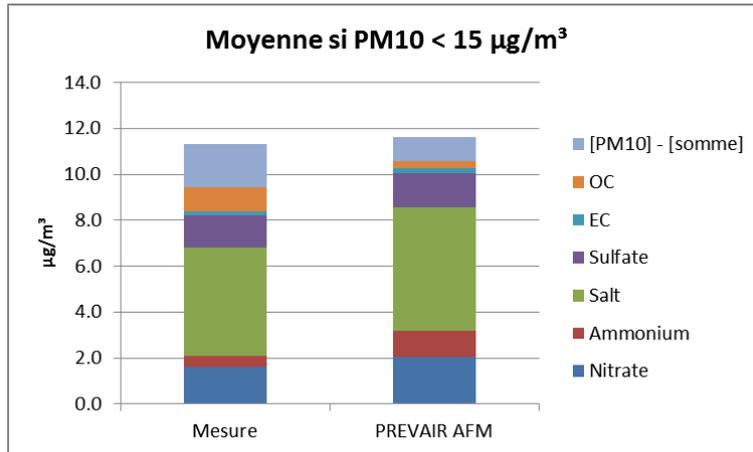
Ces deux graphiques doivent permettre de comparer les compositions de l'aérosol estimées par mesure et par modélisation. Les espèces chimiques étudiées pour cette comparaison sont représentées, ainsi que la dernière catégorie appelée [PM<sub>10</sub>] - [somme], et qui équivaut à la différence entre la concentration PM<sub>10</sub> moyenne et la somme des concentrations moyennes des espèces quantifiées dans le modèle.

En moyenne pour les deux modèles AFM et GN15, la somme des espèces quantifiées est comparable aux résultats de la mesure, avec une légère surestimation. Le couple nitrate + ammonium est en moyenne surestimé par AFM, parallèlement à une sous-estimation des espèces carbonées (EC + OC) et du sulfate.

Le modèle GN15, lui sous-estime légèrement le nitrate + ammonium, mais surestime les espèces carbonées.

La différence [PM<sub>10</sub>] – [somme] équivaut dans les deux cas à des espèces non représentées ici : on peut y incorporer les poussières crustales (aluminosilicates, fer), ainsi qu'un nombre important d'éléments traces.

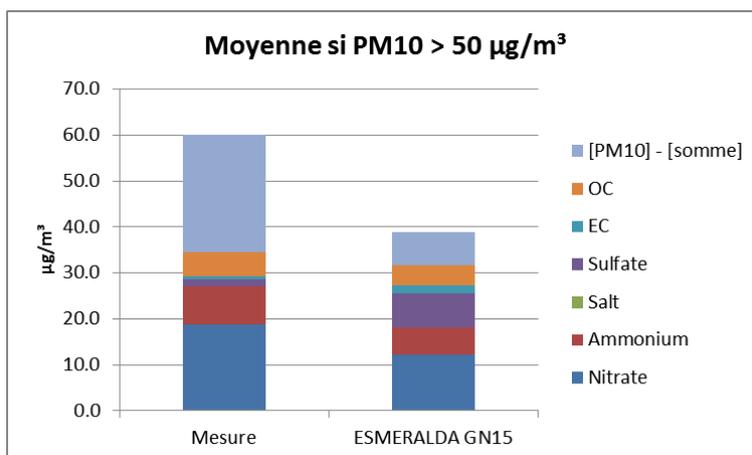
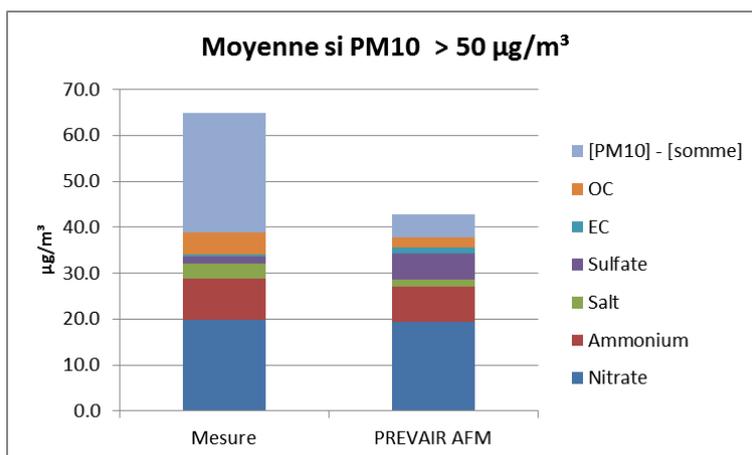
### 5.3.2. Répartitions par concentrations PM<sub>10</sub> faibles (< 15 µg/m<sup>3</sup>)



Par concentrations en PM<sub>10</sub> faibles, le modèle AFM met bien en évidence la prépondérance des sels marins dans la composition de l'aérosol. En règle générale les concentrations en PM<sub>10</sub> faibles sont observées lorsque les conditions de dispersion sont bonnes, donc synonymes de temps venteux. Le modèle a donc une bonne capacité à reconstituer le transport et l'envol des embruns marins.

Le couple nitrate + ammonium tend à être surestimé dans les deux cas, mais les tendances sont différentes pour les autres espèces : sous-estimation des carbonées par AFM, surestimation par GN15.

### 5.3.3. Répartitions par concentrations $PM_{10}$ élevées ( $> 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ )



On a observé que c'est par concentrations en  $PM_{10}$  élevées que le biais entre modèles et la mesure était le plus important, avec une nette sous-estimation par les modèles.

Parmi les deux modèles, AFM semble mieux reconstituer les concentrations en nitrate et ammonium, mais il faut pondérer ce constat par le fait que l'épisode de pollution de mars 2014, caractérisé par une proportion importante de nitrate d'ammonium, n'entre pas dans la période d'analyse considérée pour GN15.

Des compensations sans liens de causalité apparents se mettent en place : avec le modèle AFM la sous-estimation de OC est compensée par la surestimation en sulfate, et pour GN15 c'est la sous-estimation du nitrate qui est compensée par la surestimation du sulfate.

La différence  $[PM_{10}] - [\text{somme}]$  est maximisée ces conditions, en lien avec la question de la part crustale, ainsi que la difficulté à estimer correctement la fraction volatile notamment en période estivale.

## 5.4. Conclusions - perspectives

Cet exercice de comparaison modèles / mesures effectué sur un nombre important d'échantillons a permis de dégager des tendances basées sur des critères statistiques fiables.

Globalement et au regard de certains paramètres statistiques comme le coefficient de corrélation, on observe un comportement en moyenne des modèles plutôt bon, les proportions en espèces chimiques étant relativement bien respectées, mais il demeure un problème de sous-estimation en particulier pendant les épisodes de PM<sub>10</sub>.

Les espèces chimiques les mieux reconstituées par les modèles sont les sels marins (ions chlorure, sodium et magnésium), le nitrate et l'ammonium, ainsi que les sulfates, tandis que les espèces les moins bien reconstituées sont les espèces carbonées OC et EC.

Il aurait été intéressant de connaître la part crustale de l'aérosol, quantifiée par les analyses sur échantillons (si on considère par exemple les aluminosilicates) mais absente des données extraites des deux modèles.

De plus, une analyse statistique des différences modèles / mesures en fonction des directions de vents ou de rétrotrajectoires permettrait de relier le comportement des modèles à des conditions météorologiques.

En termes opérationnels, cet exercice a permis de mieux discerner les comportements des modèles AFM et GN15, qui sont utilisés par atmo Nord-Pas-de-Calais en prévision dans le cadre de l'alerte, et de se familiariser avec des paramètres modélisés qui constituent une première approche de la

## Références

- Adachi, K., Tainosho, Y., 2004. Characterization of heavy metal particles embedded in tire dust. *Environment International* 30 1009– 1017.
- Agrawal, H., Malloy, Q.G.J., Welch, W.A., Wayne Miller, J., Cocker Iii, D.R., 2008. In-use gaseous and particulate matter emissions from a modern ocean going container vessel. *Atmospheric Environment* 42, 5504-5510.
- Arruti, A., Fernandez-Olmo, I., Irabien, A., 2011. Regional evaluation of particulate matter composition in an Atlantic coastal area (Cantabria region, northern Spain): Spatial variations in different urban and rural environments. *Atmospheric research* 101, 280-293.
- Atmo, N.-P.-d.-C., 2014. Bilan annuel 2014.
- Bauer, H., Claeys, M., Vermeylen, R., Schueller, E., Weinke, G., Berger, A., Puxbaum, H., 2008. Arabitol and mannitol as tracers for the quantification of airborne fungal spores. *Atmospheric Environment* 42, 588-593.
- Becagli, S., Sferlazzo, D.M., Pace, G., di Sarra, A., Bommarito, C., Calzolari, G., Ghedini, C., Lucarelli, F., Meloni, D., Monteleone, F., Severi, M., Traversi, R., Udisti, R., 2012. Evidence for heavy fuel oil combustion aerosols from chemical analyses at the island of Lampedusa: a possible large role of ships emissions in the Mediterranean. *Atmos. Chem. Phys.* 12, 3479-3492.
- Carslaw, D., Ropkins, K., 2012. openair - An R package for air quality data analysis. *ENVIRONMENTAL MODELLING AND SOFTWARE* 27-28, 52-61.
- Cavalli, F., Viana, M., Yttri, K.E., Genberg, J., Putaud, J.P., 2010. Toward a standardised thermal-optical protocol for measuring atmospheric organic and elemental carbon: the EUSAAR protocol. *Atmos. Meas. Tech.* 3, 79-89.
- Cusack, M., Pérez, N., Pey, J., Alastuey, A., Querol, X., 2013. Source apportionment of fine PM and sub-micron particle number concentrations at a regional background site in the western Mediterranean: a 2.5 year study. *Atmos. Chem. Phys.* 13, 5173-5187.
- Delmaire, G., Roussel, G., Hleis, D., Ledoux, F., 2010. Une version pondérée de la Factorisation Matricielle Non Negative pour l'identification de sources de particules atmospheriques. Application au littoral de la Mer du Nord. *Journal Européen des Systèmes Automatisés* 44/4-5, 547-566.
- Draxler, R.R., Rolph, G.D., 2012. Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory. National Oceanic and Atmospheric Administration.
- Favez, O., Lemeur, S., Petit, J.E., 2012a. Suivi de la composition chimique journalière des PM2.5 et PM10 sur la station Petit Quevilly (agglomération de Rouen) d'Air Normand entre octobre 2010 et octobre 2011, in: particules, N.d.L.-M.d. (Ed.), Ref INERIS : DRC-11-118202-13893A.
- Favez, O., Petit, J.E., Bessagnet, B., Meleux, F., Chiappini, L., Lemeur, S., Labartette, C., Guernignion, P.Y., Saison, J.Y., Chrétien, E., Pallares, C., Verlhac, S., Aujay, R., Malherbe, L., Beauchamp, M., Piot, C., Jaffrezo, J.L., Besombes, J.L., Sciare, J., Rouil, L., Leoz-Garziandia, E., 2012b. Caractéristiques et origines principales des épisodes de pollution hivernaux aux PM10 en France. *Pollution atmosphérique* numéro spécial novembre 2012.
- Frangkou, L., Douros, J., Moussiopoulos, N., Belis, C., 2011. Review of the current evaluation methodologies used for source apportionment applications in EU countries. *European Environmental Agency*.
- Fraser, M.P., Lakshmanan, K., 2000. Using levoglucosan as a molecular marker for the long-range transport of biomass combustion aerosols. *Environmental Science and Technology* 34, 4560-4564.
- Fridell, E., Steen, E., Peterson, K., 2008. Primary particles in ship emissions. *Atmospheric Environment* 42, 1160-1168.
- Fuller, G.W., Tremper, A.H., Baker, T.D., Yttri, K.E., Butterfield, D., 2014. Contribution of wood burning to PM10 in London. *Atmospheric Environment* 87, 87-94.
- Gaudry, A., Moskura, M., Mariet, C., Ayrault, S., Denayer, F., Bernard, N., 2008. Inorganic Pollution in PM10 Particles Collected Over Three French Sites Under Various Influences: Rural Conditions, Traffic and Industry. *Water Air Soil Pollut* 193, 91-106.

- Gietl, J.K., Lawrence, R., Thorpe, A.J., Harrison, R.M., 2010. Identification of brake wear particles and derivation of a quantitative tracer for brake dust at a major road. *Atmospheric Environment* 44, 141-146.
- Gobinet, A., 2006. Application de techniques de séparation de sources à la spectroscopie Raman et à la spectroscopie de fluorescence. PhD thesis. Université de Reims Champagne-Ardenne, Reims, p. 223.
- Guernion, P.-Y., Favez, O., Bourquin, P., Caractérisation des particules sur l'agglomération bordelaise (33) - Bilan des mesures réalisées en 2012-2013, Rapport n°ET/PE/14/02, Atmo Aquitaine, 35 pages.
- Harrison, R.M., Jones, A.M., Lawrence, R.G., 2003. A pragmatic mass closure model for airborne particulate matter at urban background and roadside sites. *Atmospheric Environment* 37, 4927-4933.
- Hleis, D., 2010. Evaluation de la contribution d'émissions sidérurgiques à la teneur en particules en suspension dans l'atmosphère à une échelle locale. PhD thesis. Université du Littoral Côte d'Opale, Dunkerque, p. 203.
- Kfoury, A., 2013. Origin and physicochemical behaviour of atmospheric PM<sub>2.5</sub> in cities located in the littoral area of the Nord-Pas-de-Calais region, France. PhD thesis. Université du Littoral Côte d'Opale, p. 288.
- Kfoury, A., Ledoux, F., Roche, C., Delmaire, G., Roussel, G., Courcot, D., 2016. PM<sub>2.5</sub> source apportionment in a French urban coastal site under steelworks emission influences using Constrained Non-Negative Matrix Factorization receptor model. *Journal of Environmental Science* à paraître.
- Lamaison, L., 2006. Caractérisation des particules atmosphérique et identification de leurs sources dans une atmosphère urbaine sous influence industrielle. Université de Lille - PhD Thesis.
- Ledoux, F., 2003. Les aerosols particulaires atmosphériques sur le Dunkerquois: caractérisations chimiques, physiques, spectroscopiques et évaluation de leur toxicité. Université du Littoral Côte d'Opale, Dunkerque.
- Limem, A., 2014. Méthodes informées de factorisation matricielle non négative. Application à l'identification de sources de particules industrielles. Université du Littoral Côte d'Opale.
- Manders, A.M.M., Schaap, M., Querol, X., Albert, M.F.M.A., Vercauteren, J., Kuhlbusch, T.A.J., Hoogerbrugge, R., 2010. Sea salt concentrations across the European continent. *Atmospheric Environment* 44, 2434-2442.
- MEDDE, 2014. Bilan de la qualité de l'air en France en 2013 et principales tendances observées sur la période 2000-2013. Commissariat Général au Développement Durable, Paris, p. 57.
- Mooibroek, D., Schaap, M., Weijers, E.P., Hoogerbrugge, R., 2011. Source apportionment and spatial variability of PM<sub>2.5</sub> using measurements at five sites in the Netherlands. *Atmospheric Environment* 45, 4180-4191.
- Moreno, T., Karanasiou, A., Amato, F., Lucarelli, F., Nava, S., Galzolari, G., Chiari, M., Coz, E., Artinao, B., Lumberras, J., Borge, R., Boldo, E., Linares, C., Alastuey, A., Querol, X., Gibbons, W., 2013. Daily and hourly sourcing of metallic and mineral dust in urban air contaminated by traffic and coal-burning emissions. *Atmospheric Environment* 68, 33-44.
- Norris, G.D., R.; Brown, S.; Bai, S., 2014. EPA Positive Matrix Factorization (PMF) 5.0 Fundamentals and User Guide. Prepared for the U.S. Environmental Protection Agency Office of Research and Development, Washington, DC (EPA/600/R-14/108; STI-910511-5594-UG, April).
- Paatero, P., 1999. The Multilinear Engine: A Table-Driven, Least Squares Program for Solving Multilinear Problems, including the n-Way Parallel Factor Analysis Model. *Journal of Computational and Graphical Statistics* 8, 854-888.
- Paatero, P., Tapper, U., 1994. Positive matrix factorization: a non-negative factor model with optimal utilization of error estimates of data values. *Environmentrics* 5, 111-126.
- Pandolfi, M., Gonzalez-Castanedo, Y., Alastuey, A., de la Rosa, J.D., Mantilla, E., de la Campa, A.S., Querol, X., Pey, J., Amato, F., Moreno, T., 2011. Source apportionment of PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub> at multiple sites in the strait of Gibraltar by PMF: Impact of shipping emissions. *Environ Sci Pollut Res* 18, 260-269.
- Pey, J., Pérez, N., Cortés, J., Alastuey, A., Querol, X., 2013. Chemical fingerprint and impact of shipping emissions over a western Mediterranean metropolis: Primary and aged contributions. *Science of The Total Environment* 463-464, 497-507.

- Putaud, J.-P., Raes, F., Van Dingenen, R., Brüggemann, E., Facchini, M.C., Decesari, S., Fuzzi, S., Gehrig, R., Hüglin, C., Laj, P., Lorbeer, G., Maenhaut, W., Mihalopoulos, N., Müller, K., Querol, X., Rodriguez, S., Schneider, J., Spindler, G., Brink, H.t., Tørseth, K., Wiedensohler, A., 2004. A European aerosol phenomenology—2: chemical characteristics of particulate matter at kerbside, urban, rural and background sites in Europe. *Atmospheric Environment* 38, 2579-2595.
- Puxbaum, H., Caseiro, A., Sánchez-Ochoa, A., Kasper-Giebl, A., Claeys, M., Gelencsér, A., Legrand, M., Preunkert, S., Pio, C., 2007. Levoglucosan levels at background sites in Europe for assessing the impact of biomass combustion on the European aerosol background. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 112, 1-11.
- Puxbaum, H., Gomiscek, B., Kalina, M., Bauer, H., Salam, A., Stopper, S., Preining, O., Hauck, H., 2004. A dual site study of PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub> aerosol chemistry in the larger region of Vienna, Austria. *Atmospheric Environment* 38 3949–3958.
- R, Development Core Team (2008). R: A language and environment for statistical computing. R Foundation for Statistical Computing, Vienna, Austria. ISBN 3-900051-07-0, URL <http://www.R-project.org>.
- Ramadan, Z., Eickhout, B., Song, X.-H., Buydens, L.M.C., Hopke, P.K., 2003. Comparison of Positive Matrix Factorization and Multilinear Engine for the source apportionment of particulate pollutants. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems* 66, 15-28.
- Schauer, J.J., Kleeman, M.J., Cass, G.R., Simoneit, B.R., 2001. Measurement of emissions from air pollution sources. 3. C1-C29 organic compounds from fireplace combustion of wood. *Environmental science & technology* 35, 1716-1728.
- Schmidl, C., Marr, I.L., Caseiro, A., Kotianová, P., Berner, A., Bauer, H., Kasper-Giebl, A., Puxbaum, H., 2008. Chemical characterisation of fine particle emissions from wood stove combustion of common woods growing in mid-European Alpine regions. *Atmospheric Environment* 42, 126-141.
- Seinfeld, J.H., Pandis, S.N., 2006. *Atmospheric chemistry and physics: from air pollution to climate change - 2nd Edition*. John Wiley & Sons, Inc., United States of America.
- Simoneit, B.R.T., 2002. Biomass burning — a review of organic tracers for smoke from incomplete combustion. *Applied Geochemistry* 17, 129-162.
- Simoneit, B.R.T., Elias, V.O., Kobayashi, M., Kawamura, K., Rushdi, A.I., Medeiros, P.M., Rogge, W.F., Didyk, B.M., 2004. Sugars - Dominant water-soluble organic compounds in soils and characterization as tracers in atmospheric particulate matter. *Environmental Science and Technology* 38, 5939-5949.
- Speranza, A., Calzoni, G.L., Pacini, E., 1997. Occurrence of mono- or disaccharides and polysaccharide reserves in mature pollen grains. *Sex Plant Reprod* 10, 110-115.
- Vercauteren, J., Matheeußen, C., Wauters, E., Roekens, E., van Grieken, R., Krata, A., Makarowska, Y., Maenhaut, W., Chi, X., Geypens, B., 2011. Chemkar PM<sub>10</sub>: An extensive look at the local differences in chemical composition of PM<sub>10</sub> in Flanders, Belgium. *Atmospheric Environment* 45, 108-116.
- Viana, M., Hammingh, P., Colette, A., Querol, X., Degraeuwe, B., Vlieger, I.d., van Aardenne, J., 2014. Impact of maritime transport emissions on coastal air quality in Europe. *Atmospheric Environment* 90, 96-105.
- Viana, M., Kuhlbusch, T.A.J., Querol, X., Alastuey, A., Harrison, R.M., Hopke, P.K., Winiwarter, W., Vallius, M., Szidat, S., Prévot, A.S.H., Hueglin, C., Bloemen, H., Wahlin, P., Vecchi, R., Miranda, A.I., Kasper-Giebl, A., Maenhaut, W., Hitzenberger, R., 2008. Source apportionment of particulate matter in Europe: A review of methods and results. *Aerosol Science* 39, 827-849.
- Waked, A., Favez, O., Alleman, L.Y., Piot, C., Petit, J.E., Delaunay, T., Verlinden, E., Golly, B., Besombes, J.L., Jaffrezo, J.L., Leoz-Garziandia, E., 2014. Source apportionment of PM<sub>10</sub> in a north-western Europe regional urban background site (Lens, France) using positive matrix factorization and including primary biogenic emissions. *Atmos. Chem. Phys.* 14, 3325-3346.
- Yin, J., Harrison, R.M., 2008. Pragmatic mass closure study for PM<sub>1.0</sub>, PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub> at roadside, urban background and rural sites. *Atmospheric Environment* 42, 980-988.
- Zhang, F., Chen, Y., Tian, C., Li, J., Zhang, G., Matthias, V., 2015. Emissions factors for gaseous and particulate pollutants from offshore diesel engine vessels in China. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* 15, 23507-23541.

## Annexe 1

### Répartition par groupe d'espèces chimiques : méthodes de calcul

#### - Les sels marins

Les sels marins sont mis en suspension sous l'effet du vent à la surface de la mer et par l'éclatement de bulles produites par les vagues (Blanchard and Woodcock, 1957). A l'émission, la composition chimique des sels marins est identique à celle de l'eau de mer (Seinfeld and Pandis, 2006). Le calcul de la concentration en sels marins (seasalt ou ss- en anglais) prend pour hypothèse que les ions  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Cl}^-$  et  $\text{Mg}^{2+}$  sont exclusivement associés à une origine marine. Les six ions majoritaires présent dans l'eau de mer ( $\text{Na}^+$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{ss-SO}_4^{2-}$ ,  $\text{ss-K}^+$ ,  $\text{ss-Ca}^{2+}$ ) sont pris en compte dans le calcul de la concentration en sel marins. D'après (Bressi et al., 2013) :

$$[\text{Seasalt}] = [\text{Na}^+] + [\text{Cl}^-] + [\text{Mg}^{2+}] + [\text{ss-K}^+] + [\text{ss-Ca}^{2+}] + [\text{ss-SO}_4^{2-}]$$

Avec  $[\text{ss-K}^+] = 0,036[\text{Na}^+]$ ;  $[\text{ss-Ca}^{2+}] = 0,038[\text{Na}^+]$  et  $[\text{ss-SO}_4^{2-}] = 0,252[\text{Na}^+]$

Notons que ce type de relation considère les sels marins uniquement sous leur forme primaire et ne prend pas en compte leur forme anthropisée.

#### - Les poussières crustales

Le sol constitue une autre source naturelle importante de particules, ainsi de fines poussières peuvent être mises en suspension dans l'air par l'action du vent et/ou sous l'effet d'engins agricoles ou des véhicules.

La contribution de cette source est calculée d'après les constituants majoritaires de la croûte terrestre et leur abondance naturelle. Le silicium en est un des éléments majeurs. Cependant, dans notre étude, les filtres utilisés étant en fibres de quartz, il n'a pas été possible de déterminer la concentration en silicium dans les particules prélevées. La concentration en Si sera ici estimée indirectement à partir de l'aluminium et de l'abondance relative de ces éléments dans la croûte terrestre, en accord avec les travaux de Gherzi et al. (2012) :

$$[\text{Poussières crustales}] = 2,20[\text{Al}] + 2,49[\text{Si}] + 1,63[\text{Ca}^{2+}] + 2,42[\text{Fe}] + 1,94[\text{Ti}]$$

Avec  $[\text{Si}] = 3,92[\text{Al}]$

#### - Les aérosols inorganiques secondaires (AIS)

Sont regroupés dans cette catégorie le nitrate, le sulfate non marin ( $\text{nss-SO}_4^{2-}$ ) et l'ammonium qui leur est associé. Ces espèces sont formées principalement par conversion gaz-particules à partir du dioxyde d'azote, du dioxyde de soufre et de l'ammoniac.

$$[\text{AIS}] = [\text{NO}_3^-] + [\text{nss-SO}_4^{2-}] + [\text{NH}_4^+]$$

La concentration en sulfate non marin ( $\text{nss-SO}_4^{2-}$ ) est donnée par :

$$[\text{nss-SO}_4^{2-}] = [\text{SO}_4^{2-}] - [\text{ss-SO}_4^{2-}],$$

soit  $[\text{nss-SO}_4^{2-}] = [\text{SO}_4^{2-}] - 0,252[\text{Na}^+]$

#### - Les espèces carbonées

Le carbone est présent sous deux formes principales : le carbone élémentaire (EC) et le carbone organique (OC) dont les proportions varient en fonction de l'origine. La combustion incomplète des combustibles fossiles et de la biomasse est notamment responsable des émissions de EC et OC. Leurs proportions dépendent de la nature des combustibles et des conditions de combustion. Les particules biogéniques primaires ou secondaires contribuent également à la teneur en OC.

La concentration en matière organique (OM) est calculée à partir de la concentration en carbone organique et d'un rapport OM/OC supérieur à 1 car la matière organique n'est pas constituée uniquement de carbone. Ce rapport varie en fonction de la distance entre les sources de matières organiques et le lieu de prélèvement. Ainsi, il s'élève avec l'éloignement des sources anthropiques et le vieillissement de l'aérosol organique dans l'atmosphère. D'après (Turpin and Lim, 2001), sa valeur est comprise entre 1,5 en zone urbaine, au plus près des émissions et 2,1 pour les aérosols collectés en zone rurale.

Blanchard, D.C., Woodcock, A.E., 1957. Bubble formation and modification in the sea and its meteorological significance. *Tellus* 9, 145-159.

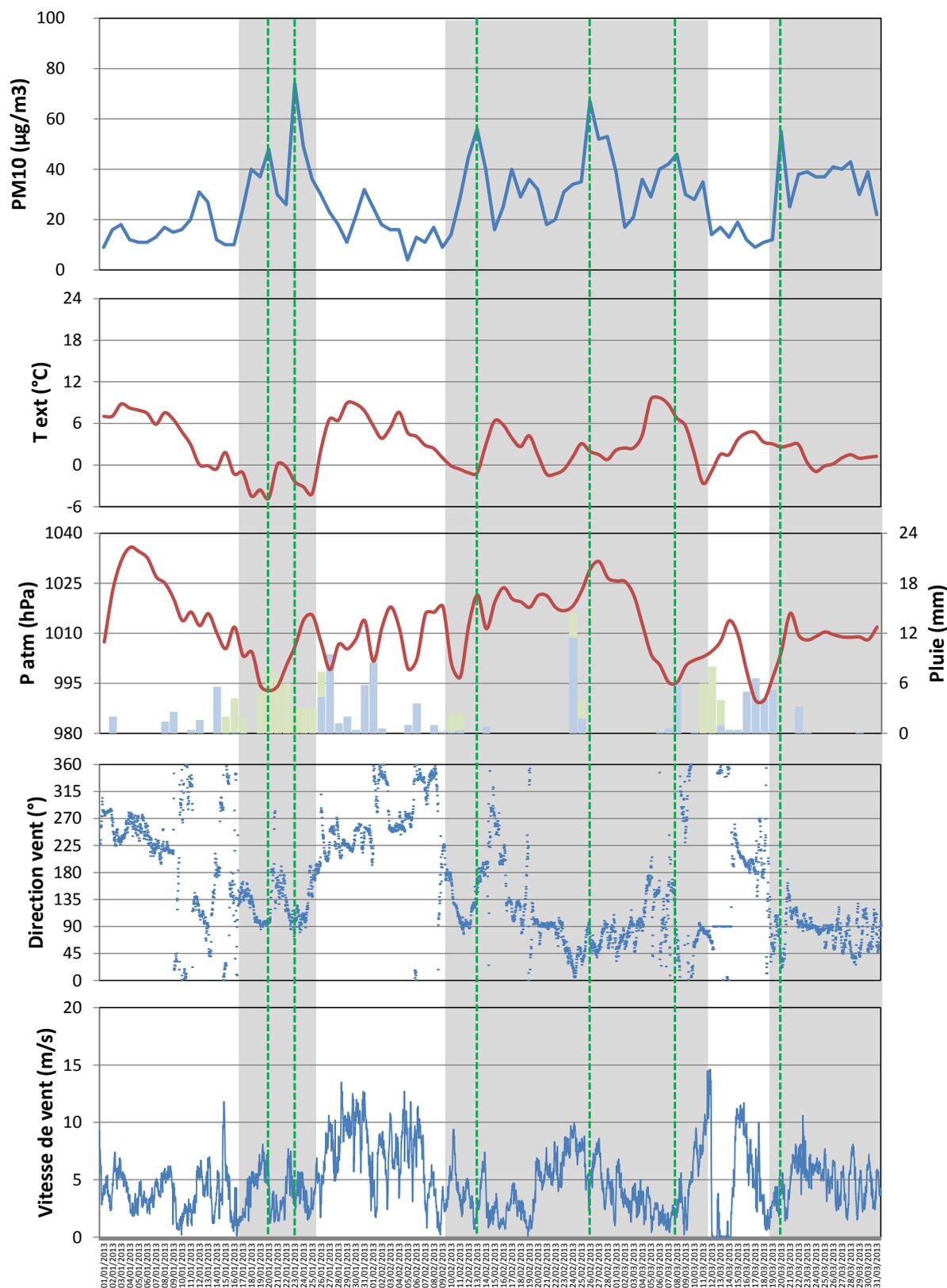
Bressi, M., Sciare, J., Gherzi, V., Bonnaire, N., Nicolas, J.B., Petit, J.E., Moukhtar, S., Rosso, A., Mihalopoulos, N., Féron, A., 2013. A one-year comprehensive chemical characterisation of fine aerosol (PM<sub>2.5</sub>) at urban, suburban and rural background sites in the region of Paris (France). *Atmos. Chem. Phys.* 13, 7825-7844.

Gherzi, V., Rosso, A., Moukhtar, S., Léger, K., Sciare, J., Bressi, M., Nicolas, J., Féron, A., Bonnaire, N., 2012. Origine des particules fines (PM<sub>2,5</sub>) en Ile-de-France. *Pollution atmosphérique* numéro spécial novembre 2012.

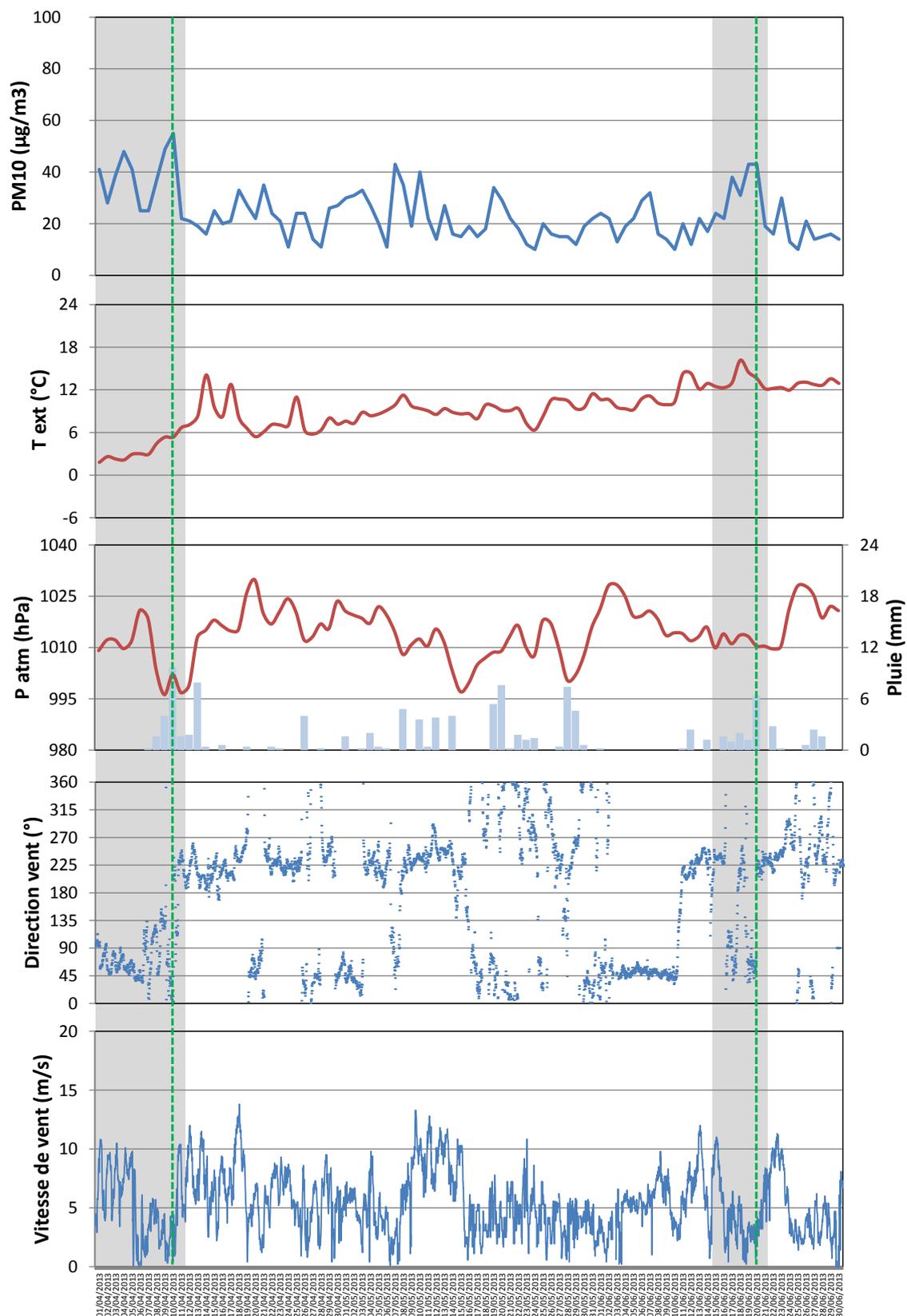
Seinfeld, J.H., Pandis, S.N., 2006. *Atmospheric chemistry and physics: from air pollution to climate change* - 2nd Edition. John Wiley & Sons, Inc., United States of America.

Turpin, B.J., Lim, H.-J., 2001. Species Contributions to PM<sub>2.5</sub> Mass Concentrations: Revisiting Common Assumptions for Estimating Organic Mass. *Aerosol Science and Technology* 35, 602-610.

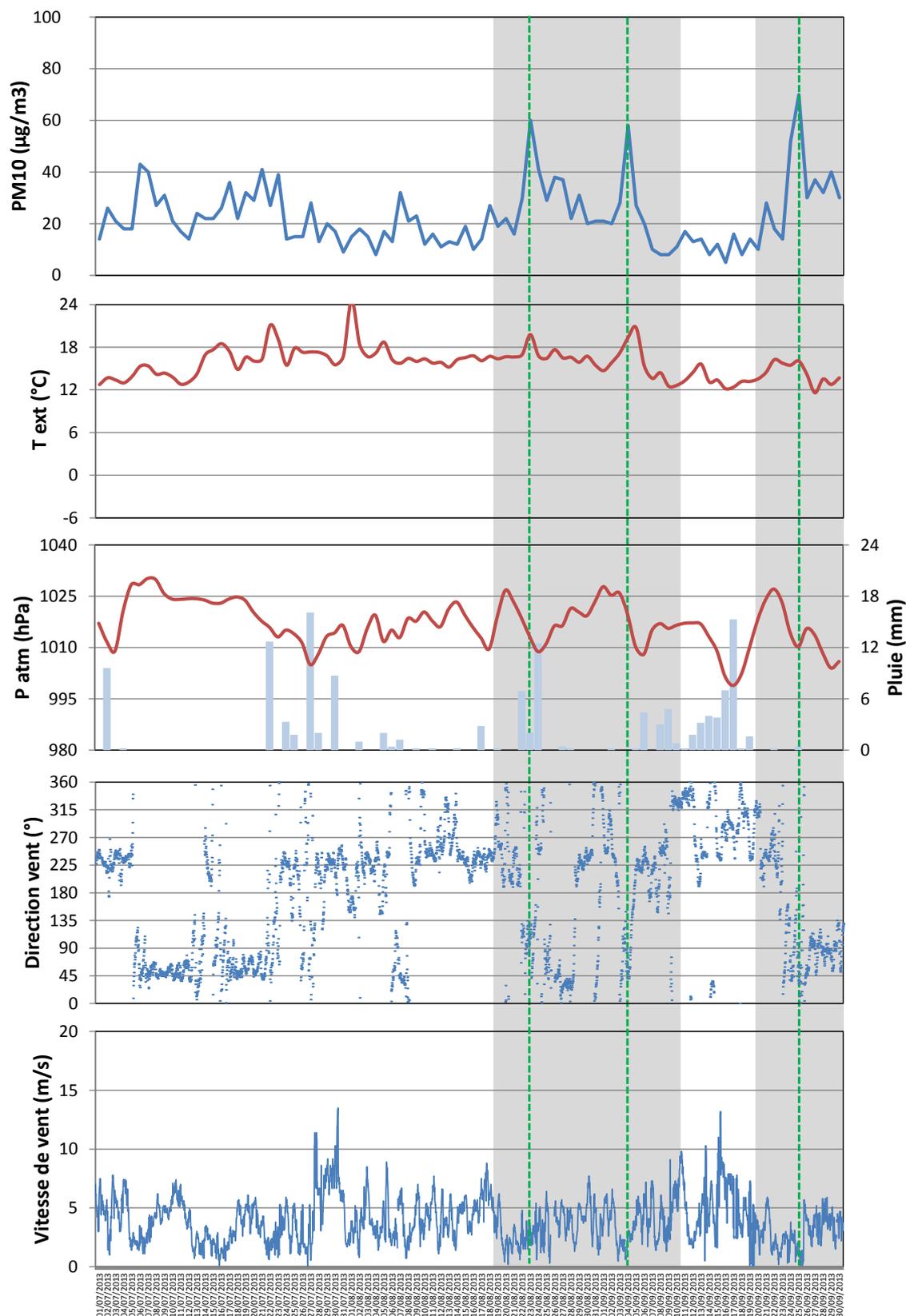
## Annexe 2



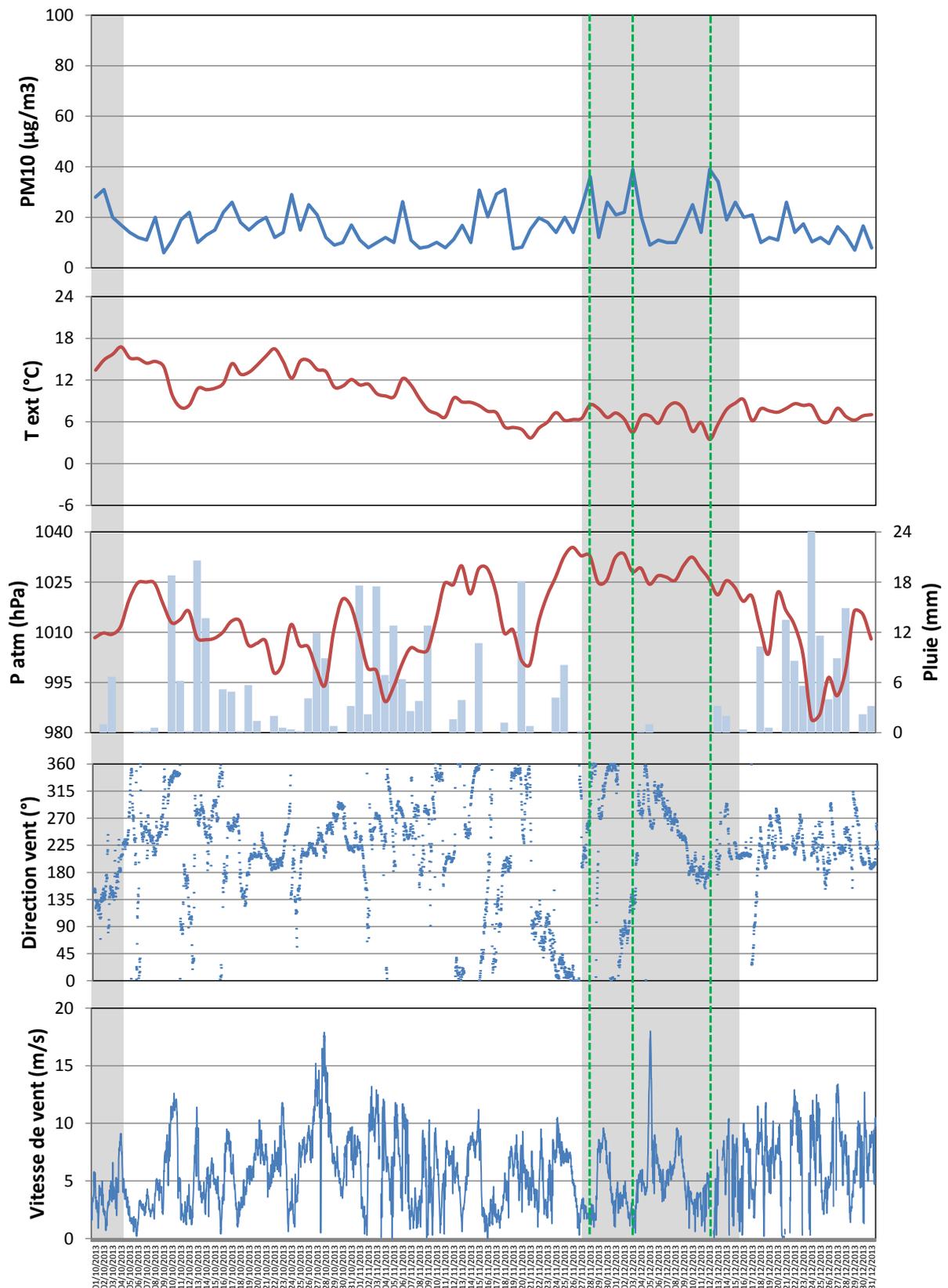
Annexe 2a : Evolution des teneurs en  $\text{PM}_{10}$ , Pression atmosphérique, Précipitations, direction et vitesse de vent lors du 1<sup>er</sup> trimestre 2013. Les pics de concentrations sont indiqués en pointillés vert et les périodes de fortes concentrations en zone grisée.



Annexe 2b : Evolution des teneurs en PM10, pression atmosphérique, précipitations, direction et vitesse de vent lors du 2e trimestre 2013. Les pics de concentrations sont indiqués en pointillés vert et les périodes de fortes concentrations en zone grisée.



Annexe 2c : Evolution des teneurs en PM<sub>10</sub>, pression atmosphérique, précipitations, direction et vitesse de vent lors du 3e trimestre 2013. Les pics de concentrations sont indiqués en pointillés vert et les périodes de fortes concentrations en zone grisée.



Annexe 2d : Evolution des teneurs en  $PM_{10}$ , pression atmosphérique, précipitations, direction et vitesse de vent lors du 4e trimestre 2013. Les pics de concentrations sont indiqués en pointillés vert et les périodes de fortes concentrations en zone grisée.

## Annexe 3

### Modélisation par CW-NMF : reconstruction des données

L'examen de la reconstruction des données calculées par rapport aux mesures peut se faire de manière globale ou individuelle (par espèce). En effet, à partir des matrices G et F obtenues par modélisation, nous sommes capables, pour chacun des échantillons, de calculer des concentrations modélisées en multipliant les contributions de chacune des sources par le profil de ces mêmes sources.

Une première validation de la justesse de la solution proposée dans sa globalité peut être faite à partir de la somme des concentrations en espèces dans un échantillon. Pour cela, la concentration totale calculée est comparée à celle observée (Figure ). La pente de la droite de régression linéaire de l'ensemble de ces points nous permet de juger de la qualité de la modélisation. Dans notre cas, la pente obtenue est de 0,95 ce qui signifie que l'erreur globale du modèle pour la concentration totale en espèces des PM<sub>10</sub> est de 5%, ce qui est très satisfaisant. De plus, même si quelques cas particuliers sont à noter, la reconstruction apparaît très bonne pour l'ensemble des données indépendamment de leur niveau de concentration. En effet, le coefficient de corrélation R<sup>2</sup> est de 0,98.

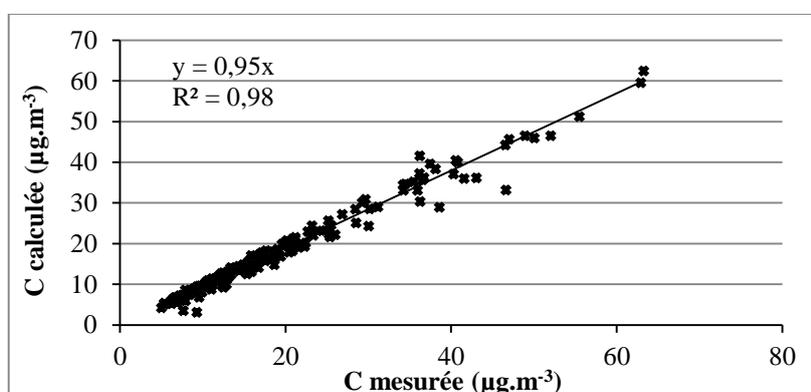


Figure 1 : Concentration totale en espèces recalculée par le modèle CW-NMF en fonction de celle mesurée ( $\mu\text{g.m}^{-3}$ )

Un deuxième niveau de vérification peut être réalisé, au niveau individuel, en comparant les concentrations recalculées et les concentrations observées espèce par espèce. De la même façon que précédemment des droites de corrélation entre données reconstruites et observées peuvent être tracées (Figure 2). Selon les espèces, les observations sont différentes. La reconstruction est difficile pour deux éléments traces, le Cr et le La. Pour 6 autres espèces (Ca<sup>2+</sup>, Fe, Mn, Zn, Co et Pb), les valeurs de pente des droites sont comprises entre 0,65 et 0,83. Cela signifie que la reconstruction n'est pas très bonne mais elle reste cependant très acceptable. Enfin, pour la majorité des éléments modélisés, la corrélation est bonne avec des valeurs de pente de droite supérieures à 0,85 (Na<sup>+</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, Mg<sup>2+</sup>, Cl<sup>-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, K<sup>+</sup>, OC, EC, Sr, Al, P, Ti, V, Ni, Cu, Cd, Sb, lévoglucosan et polyols). C'est ainsi le cas des éléments majoritaires dans les PM<sub>10</sub> qui présentent des pentes très proches de 1, ce qui est cohérent avec la bonne reconstruction globale et avec le paramétrage du modèle qui s'attache à reconstruire le mieux possible les concentrations en éléments les plus élevés.

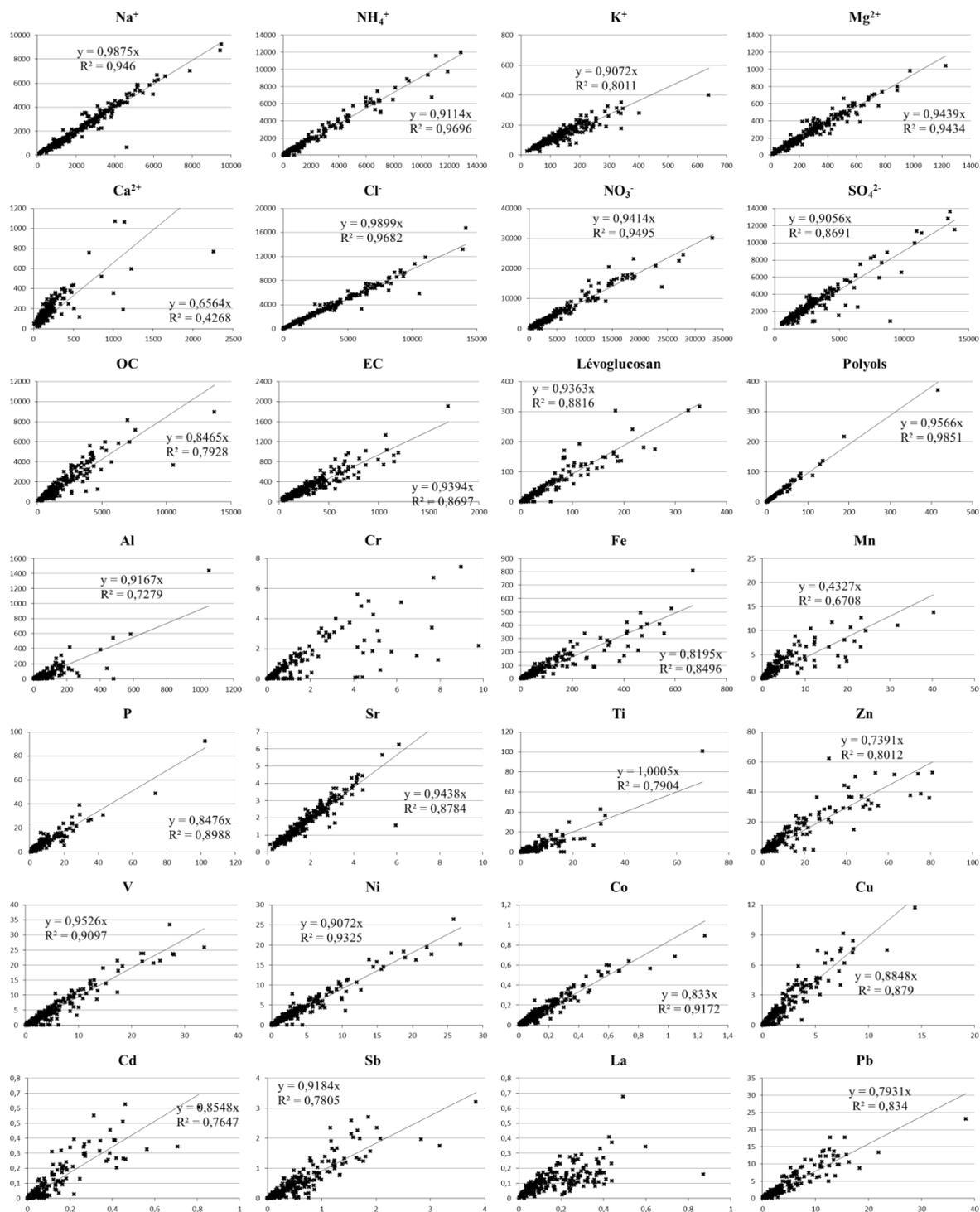


Figure 2: Reconstruction des concentrations en espèces en  $\text{ng.m}^{-3}$  (concentration calculée =  $f(\text{concentration observée})$ )