



ÉVOLUTION DES PARTICULES FINES EN CHAMP PROCHE DU TRAFIC MARITIME

Projet PAREA, améliorer les connaissances sur les émissions de particules fines et de leurs précurseurs par le transport maritime à Marseille.



SYNTHESE

Octobre 2024











REMERCIEMENTS

Le projet PAREA constitue une collaboration étroite entre ARMINES/IMT Nord Europe (CERI Energie & Environnement), le Laboratoire de Chimie Environnement (LCE) de l'Université D'Aix Marseille, du Centre d'enseignement et de Recherche en environnement Atmosphérique (CEREA) de l'Ecole des Ponts et chaussée et de l'Association Agrée de Surveillance de la Qualité de l'Air de la région Provence-Alpes-Côte-d'Azur (AtmoSud).

Stéphane SAUVAGE, Professeur à ARMINES/IMT Nord Europe (CERI Energie & Environnement), porteur du projet PAREA, et l'ensemble des auteurs remercient l'ADEME pour l'aide financière accordée à la réalisation de ce projet, ainsi que leurs ingénieurs Philippe CAUNEAU et Laurence GALSOMIES pour le suivi du projet.

Les auteurs tiennent également à remercier chaleureusement le Port de Marseille pour leur avoir permis d'installer les instruments de mesure sur le port tout au long de la campagne. En particulier, nous remercions Eric BEROULE, Mickaël PARRA et Magali DEVEZE pour leur soutien administratif et technique dans la préparation et la réalisation de la campagne de terrain PAREA. Ils remercient également Irène XUEREF-REMY du laboratoire IMBE pour le prêt de son analyseur de CO/CO2 (PICARRO G2401) et de bouteilles de gaz étalon, ainsi que pour son soutien technique.

Les auteurs remercient enfin toutes les personnes qui ont participé à la campagne de mesures, aux analyses et à la rédaction de ce rapport :

- Campagne de mesures, analyses, traitement de données, interprétation: L. Le Berre³, M. Dufresne^{1,2}, S. Oppo L.⁴, M. Lab⁵, L. Tinel^{1,2}, J. De Brito^{1,2}, T. Salameh^{1,2}, T. Leonardis&^{1,2}, B. Temime-Roussel³, L. Lanzi⁴, K. Hachemi⁴, R. Bourjot⁴, A. Stoerkel⁴, G. Gille⁴, F. Manieri⁴, N. Marchand³, B. D'Anna³, G.M. Lanzafame³, H. Wortham³, A. Armengaud⁴, Y. Roustan⁵, S. Sauvage^{1,2}
- Rédaction, vérification, Approbation : L. Le Berre³, M. Dufresne^{1,2}, S. Oppo L.⁴, M. Lab⁵, L. Tinel^{1,2}, J. De Brito^{1,2}, T. Salameh^{1,2}, B. Temime-Roussel³, N. Marchand³, B. D'Anna³, G.M. Lanzafame³, H. Wortham³, A. Armengaud⁴, F. Manieri⁴, Y. Roustan⁵, S. Sauvage^{1,2}

1 IMT Nord Europe, CERI Energie Environnement – 2 ARMINES, 60bd Saint Michel, 75272 PARIS, France – 3 Aix Marseille Univ, CNRS, LCE, Marseille, France - 4 AtmoSud, Marseille, France - 5 Ecole des Ponts et chaussée, CERA, Paris, France

CITATION DE CE RAPPORT

Le Berre L., M. Dufresne, S. Oppo L., M. Lab, L. Tinel, J. De Brito, T. Salameh, B. Temime-Roussel, N. Marchand, B. D'Anna, G.M. Lanzafame, H. Wortham, A. Armengaud, F. Manieri, Y. Roustan, S. Sauvage, 2024. Evolution des particules fines en champ proche du trafic maritime - PAREA. Synthèse, 17 pages.

Cet ouvrage est disponible en ligne https://librairie.ademe.fr/

Toute représentation ou reproduction intégrale ou partielle faite sans le consentement de l'auteur ou de ses ayants droit ou ayants cause est illicite selon le Code de la propriété intellectuelle (art. L 122-4) et constitue une contrefaçon réprimée par le Code pénal. Seules sont autorisées (art. 122-5) les copies ou reproductions strictement réservées à l'usage privé de copiste et non destinées à une utilisation collective, ainsi que les analyses et courtes citations justifiées par le caractère critique, pédagogique ou d'information de l'œuvre à laquelle elles sont incorporées, sous réserve, toutefois, du respect des dispositions des articles L 122-10 à L 122-12 du même Code, relatives à la reproduction par reprographie.

Ce document est diffusé par l'ADEME

ADEME

20, avenue du Grésillé

BP 90 406 | 49004 Angers Cedex 01

Numéro de contrat : 1966C0015

Étude réalisée par Le Berre L., M. Dufresne, S. Oppo L., M. Lab, L. Tinel, J. De Brito, T. Salameh, B. Temime-Roussel, N. Marchand, B. D' Anna, G.M. Lanzafame, H. Wortham, A. Armengaud, F. Manieri, Y. Roustan, S. Sauvage pour ce projet cofinancé par l'ADEME

Projet de recherche coordonné par : Stéphane Sauvage Appel à projet de recherche CORTEA 2019: Connaissances, Réduction à la source et Traitement des Emissions dans l'Air

Coordination technique - ADEME : Philippe CAUNEAU (référent ingénieur) et Laurence GALSOMIÊS Direction Villes et Territoires Durables (DVTD) Service Transports et mobilités (STM) et en co-suivi Service Qualité de l'air (SEQA)

Résumé

Les émissions gazeuses liées au trafic maritime ont un impact avéré sur la qualité de l'air en particulier sur les zones côtières. La réglementation sur la composition des carburants utilisés a évolué notamment pour le soufre mais reste peu contraignante pour les particules fines et certains de leurs précurseurs. Les inventaires d'émissions prennent en compte le trafic maritime mais affichent une variabilité importante et une connaissance encore parcellaire quant à la composition des particules émises et des principaux précurseurs d'aérosols secondaires. Ce projet PAREA a pour but d'améliorer les connaissances sur les émissions du transport maritime. Sur la base d'une approche combinant observation et modélisation, l'objectif est de caractériser les particules fines émises par le trafic maritime en termes de tailles et de composition chimique, de caractériser les précurseurs de particules secondaires émis par le trafic maritime et de documenter l'évolution de ces caractéristiques en champs proches de la zone portuaire.

Une campagne de mesure intensive a été menée à Marseille pour l'obtention d'une base de données uniques de 145 composés gazeux et particulaires. La comparaison des concentrations mesurées sur le site de fond urbain et sur les sites implantés au cœur de la zone portuaire montrent clairement une influence des activités portuaires sur les niveaux de concentrations et notamment les maximas avec des évènements de pollution courts mais intenses.

Plus de 350 panaches de navires ont été identifiés pour déterminer des Facteurs d'Emissions (EF). Ces EF constituent des données précieuses, issus de mesures en champs proches et donc représentatives d'un ensemble de navires sur la zone portuaire de Marseille. Les résultats mesurés peuvent être jusqu'à cinq fois inférieurs à ceux utilisés dans les cadastres d'émissions, en particulier pour les NOx et le SO2. Concernant la phase particulaire, les quantités de particules émises par les navires peuvent varier d'un facteur 3 entre les différentes phases opérationnelles avec davantage d'émissions lors des phases de navigation et/ou de manœuvre comparativement aux phases de stationnement à quai. L'étude montre que la combinaison de la granulométrie et de la composition chimique des particules fournit des informations clés pour l'amélioration des inventaires d'émission et l'identification des différents types de carburants utilisés ainsi que l'emploi de systèmes d'épuration des fumées.

Une analyse factorielle a été conduite montrant que les émissions liées aux navires représentent environ 9% de la masse totale des métaux mesurés en champs proche (zone portuaire) et 4% en zone urbaine plus éloignée. En considérant la nature chimique, ces émissions contribuent spécifiquement à plus de 80 % des concentrations en nickel (Ni) et en vanadium (V), métaux reconnus pour leurs effets néfastes sur la santé des populations. Cette même analyse menée sur les COV montre une contribution totale de 18 % des concentrations en COV mesurés en champs proches et 11 % en zone urbaine plus éloignée.

En deuxième approche, la modélisation déterministe a été mise en œuvre pour cartographier l'impact des activités maritimes à Marseille. Le constat est en cohérence avec celui des observations avec un impact chronique des navires peu important sur la ville mais l'occurrence de panaches de courte durée qui peuvent avoir localement un impact important. Le détail des contributions par famille d'espèce chimique montre que ces émissions peuvent avoir un impact différencié en zone éloignée pour la formation d'aérosols secondaires.

L'étude montre toute la difficulté pour l'obtention d'une bonne représentation des émissions de la sources trafic maritime et de ses impacts. L'amélioration des inventaires d'émissions en termes de spéciation chimique et d'évolution temporelle de cette source est essentielle pour évaluer des actions de remédiation.

Abstract

Emissions from maritime traffic have a proven impact on air quality, particularly in coastal areas. Regulations governing the composition of the fuels used have evolved, notably as regards sulfur, but gaps in emissions enforcement regulations remain on key pollutants such as fine particles and their precursors. Emissions inventories take maritime traffic into account but show considerable variability and a still patchy knowledge of the composition of particles emitted and of the main precursors of secondary aerosols. The aim of the PAREA project is to improve our knowledge of pollutants emissions from shipping. Based on an approach combining observation and modelling, the aim is to characterize the fine particles emitted by maritime traffic (size and chemical composition), their potential secondary precursors and to document their evolution in fields close to the port area.

An intensive measurement campaign was carried out in Marseille to build a unique database of 145 gaseous and particulate components. A comparison of concentrations measured at the urban background site and at the two selected sites located in the heart of the port area clearly shows the influence of port activities on concentration levels, and in particular in maxima with short but intense pollution events.

More than 350 ship plumes have been identified and used to determine Emission Factors (EF). These EFs are valuable data, derived from near-field measurements and therefore representative of a group of ships in the Marseille port area. Results show that the measured EF can be up to five times lower than those used in emission inventories, particularly for NOX and SO2. The quantities of particles emitted by ships can vary by a factor of 3 between the different operational phases, with more emissions during navigation and/or maneuvering phases than during docking phases. The study shows that the combination of particle size and chemical composition measurements provides key information for improving emission inventories and identifying the different types of fuel used, as well as the use of exhaust gas cleaning systems.

A factorial analysis focused on trace metals has been carried out, showing that ship-related emissions account for around 9% of the total mass of metals measured in the near-field (port area) and 4% in more distant background urban areas. Of particular importance is that these emissions specifically contribute to over 80% of two toxicology relevant particulate metals nickel (Ni) and vanadium (V) concentrations. The additional factor analysis carried out on VOCs showed a total contribution of 18% of VOC concentrations measured in near-field areas and 11% in more distant urban areas.

As a second approach, deterministic modelling was used to map the impact of maritime activities in Marseille. The findings are consistent with those observed showing a low chronic impact on the city air quality but with the occurrence of short-lived plumes that can have a significant local impact. Details of contributions by family of chemical species show that these emissions can have a differentiated impact on the formation of secondary aerosols in remote areas.

The study shows how challenging it is to obtain a good representation of emissions from maritime traffic sources and their impact on air quality. Improving emission inventories in terms of chemical speciation and temporal evolution of this source is essential to assess remediation actions.

SOMMAIRE

1.	Contexte et introduction du projet7	
2.	Méthodologie	
3.	Résultats9	
3.1.	Analyse descriptiveS	
3.2.	Caractérisation physique et chimique des émissions de la source « navires »10	
	Empreinte chimique et contribution de la source trafic maritime pour les éléments traces calliques et les composés organiques volatils14	
3.4.	Impact sur la qualité de l'air de la source trafic maritime, du champ proche au champ lointain 15	
4.	Conclusions et recommandations17	
Inde	ex des tableaux et figures19	

1. Contexte et introduction du projet

A l'échelle internationale, le transport maritime représente plus de 80% en volume du fret total (UNCTAD, 2022). Après un léger recul en 2022, le transport maritime croît à nouveau en 2023 (+2,4%) et continuera de croître sur 2024-2028. Ce mode de transport est très émetteur en polluants atmosphériques en gaz à effet de serre (GES) dont le dioxyde de carbone (CO₂), en oxydes d'azote (NO_x), en dioxyde de soufre (SO₂) et en particules (PM).

Ces émissions sont particulièrement préoccupantes à proximité des rivages et dans les ports avec pour conséquence directe une dégradation de la qualité de l'air dans les zones côtières. La contribution significative des émissions des navires à l'échelle globale pointe le transport maritime comme secteur cible pour l'amélioration de la qualité de l'air. L'Organisation maritime internationale (OMI) a mis en place la Convention Internationale pour la Prévention de la Pollution par les Navires (MARPOL) concernant notamment la prévention de la pollution atmosphérique. Elle vise à limiter les émissions des principaux polluants présents dans les gaz d'échappement des navires en l'occurrence les SOx, les NOx, les Composés Organiques Volatils (COV) et les gaz à longue durée de vie impactant la couche d'ozone. Cette réglementation ne s'applique que lorsque les navires naviguent dans des zones d'émissions réglementées (SECA) et est appliquée en Europe que depuis janvier 2015 avec une quantité maximale de soufre abaissée à 1,5 % puis 0,5 % depuis 2020 et jusqu'à 0,1 % pour les navires à quai plus de 2 heures dans les ports européens. En conséquence, la composition des carburants a évolué pour conduire à une réduction significative de la contribution du transport maritime sur les émissions de Soufre mais également sur les émissions de PM_{2,5} (particules de diamètre aérodynamique inférieur à 2,5 μm).

La réglementation concerne également les NOx mais uniquement dans les cas des navires récents (construits après janvier 2016) et dans des zones d'émissions réglementées (NECA) avec un impact qui n'a pas encore été démontré. Il n'y a en revanche pas de limite applicable pour les émissions de PM et de COV. Toutefois, l'évolution des carburants peut amener des changements dans la composition des émissions comme par exemple pour les COV ou pour la composition des particules.

Les inventaires d'émissions prennent en compte le trafic maritime mais affichent une variabilité importante et une connaissance encore parcellaire quant à la composition des particules émises et des principaux précurseurs d'aérosols secondaires.

La métropole marseillaise fait partie des villes côtières de la Méditerranée pour lesquelles la pression anthropique est à l'origine d'une pollution atmosphérique préoccupante. Plus largement, la région PACA se caractérise par une pollution photochimique à l'ozone parmi les plus fortes d'Europe. Plusieurs études ont montré une influence importante du transport maritime sur la qualité de l'air dans le bassin méditerranéen occidental mettant en évidence un impact très significatif des émissions des navires sur la qualité de l'air au sein et à proximité des zones portuaires et montrant la nécessité de documenter la composition en polluants atmosphériques dans le champ proche des sources.

Dans ce contexte, le projet PAREA a eu pour objectif d'améliorer les connaissances sur les émissions de particules fines et de leurs précurseurs par le transport maritime. Il a eu pour ambition de :

- Caractériser les particules fines émises par le trafic maritime en termes de tailles et de composition
- Caractériser les précurseurs de particules secondaires émis par le trafic maritime;
- Documenter l'évolution de ces caractéristiques en champs proches de la zone portuaire.

Le projet combine approche expérimentale en champs proches des sources et modélisation déterministe pour apporter des connaissances nouvelles sur les propriétés physiques et la composition chimique des particules et des gaz réactifs issus du trafic maritime sur la zone portuaire de Marseille. L'analyse de la méthodologie et des résultats obtenus permettent d'émettre des recommandations à la fois pour la surveillance opérationnelle des impacts du Traffic maritime et pour les orientations vers des mesures de régulation complémentaires.

2. Méthodologie

La caractérisation des particules et de leurs précurseurs est basée sur une approche orientée récepteur à savoir sur des observations à haute résolution temporelle depuis des sites implantés autour de la zone portuaire. L'évaluation des émissions se fait plus généralement à la cheminée des bateaux avec une représentation limitée au bateau étudié. Cette démarche expérimentale en champs proche est complémentaire en offrant l'intérêt d'une représentativité plus intégrée du trafic maritime sur la zone portuaire. Les paramètres qui ont été mesurés sont la physique (distribution granulométrique) et la chimie de l'aérosol (inorganiques, organiques métaux) ainsi que la composition chimique de la phase gazeuse (SO₂, CO₂, NO_x, CH₄ et COV). Ces observations ont été complétées par toutes les informations relatives aux activités portuaires.

L'évolution de ces caractéristiques en champs proche s'est appuyée sur deux démarches complémentaires à savoir une campagne de mesure intensive sur des sites sélectionnés et des simulations de l'évolution de panache sur les premiers kilomètres depuis les sources à partir d'une combinaison d'outils de modélisation de dispersion atmosphérique.

La stratégie expérimentale d'observation a été basée sur une campagne d'observation menée en juin 2021 sur deux sites « Phares et Balises » (PEB) et « La Major » (MAJOR) représentatifs de la zone portuaire de Marseille et parallèlement sur un site dit urbain de fond (Marseille – Longchamp » (MRS-LCP) représentatif de l'atmosphère urbaine de la ville de Marseille (Figure 1).





Figure 1. Localisation des points de mesures de la campagne intensive « PAREA 2021 » et photo des cabines d'observation sur le site de Phares et Balises.

Les sites PEB et Major ont été spécifiquement équipés d'un ensemble d'instruments de pointe pour documenter les propriétés physiques des particules ainsi que la composition chimique des particules et des gaz. La campagne d'observation intensive a débuté le 1er juin 2021 pour se terminer le 30 juin. Sur l'ensemble de la période et en tenant compte de la résolution temporelle des instruments, le taux de disponibilité des données est supérieur à 90% conférant une bonne représentativité du mois de campagne et un très bon potentiel d'analyse.

3. Résultats

3.1. Analyse descriptive

Une grande diversité de conditions météorologiques a pu être observée durant la campagne avec des périodes de vents de Sud-Est, de Sud-Ouest et quelques périodes de Mistral (Vent fort de secteur Nord-Ouest). Des phénomènes de brises de terre et de mer ont également été constatés. La probabilité du site PEB d'être exposé aux émissions des principales zones d'émissions du port est plus élevée que celle estimée à partir des données estivales 2017-2020 (35 % contre 30 %).

La probabilité du site MAJOR d'être exposé aux émissions des principales zones d'émissions du port est quant à elle plus faible que celle estimée à partir des données estivales 2017-2020 (21 % contre 33 %). La plus faible proportion de Mistral lors de la campagne n'a permis au site d'être sous les vents des autres zones d'émissions situées au nord du site que 8 % du temps (contre 18 % prévu).

Le site MRS-LCP, situé à un peu moins de 3 km des quais sud du port et à 9 km des terminaux croisières au Nord, a de façon générale été plus fréquemment que prévu sous les vents des émissions du port (26% du temps lors de la campagne contre 18 % prévu).

En juin 2021, le port de Marseille a vu transiter près de 800 navires (à l'exclusion des pilotines, des bateaux de plaisance et des navettes de passagers), ce qui correspond à une moyenne d'environ 30 navires par jour (Figure 2). La majorité de ces navires était dédiée au transport de passagers (40 % dont 35 % de ferries et 5 % de navires de croisières). Les cargos, consacrés au transport de marchandises, constituaient 25 % de l'activité, tandis que les remorqueurs et les navires de ravitaillement représentaient respectivement 20% et 10% des mouvements portuaires. Les autres navires (5%) sont principalement destinés au sauvetage en mer.

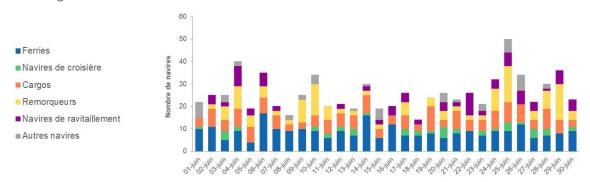


Figure 2 : Nombre cumulé de départs et d'arrivées de navires sur le port de Marseille en juin 2021 en fonction de leur catégorie (à l'exclusion des pilotines, des navires de plaisance et des navettes de passagers

Au total près de 145 composés ont été mesurés lors de cette campagne de mesures incluant 45 Eléments Traces Métalliques (ETM ou métaux) et 80 Composés Organiques Volatiles (COV).

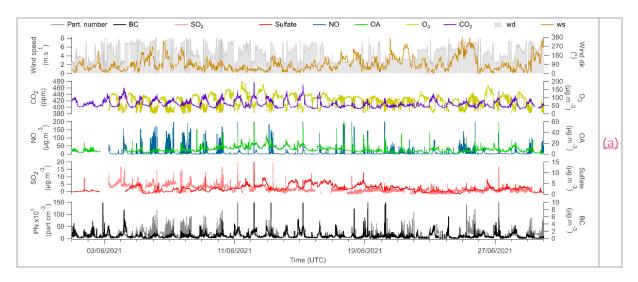


Figure 3: Evolution temporelle des principaux polluants lors de la campagne « PAREA 2021 » sur les sites de mesures implantés au cœur de la zone portuaire (site PEB (a) et site MAJOR (b)) ainsi que sur le site représentatif de la pollution urbaine de fond (site MRS-LCP (c)).

La comparaison des concentrations mesurées sur le site de fond urbain (MRS-LCP) et sur les sites implantés au cœur de la zone portuaire (PEB et MAJOR) ainsi que l'étude de leur évolution temporelle montrent clairement une influence des activités portuaires sur les niveaux de concentrations et notamment les maximas avec des évènements de pollution courts mais intenses. C'est le cas des PM_{2.5}, des PM₁ et des NO_X influencées par la proximité au port avec des concentrations 1,5 à 2 fois plus élevées comparativement au cœur de Marseille. Certains COV comme les xylènes enregistrent des pics de concentrations significativement plus élevées proche du port. Les concentrations maximales du SO₂ et de certains métaux (As, Cd, Co, Fe, Ni, Sb, Se, Sn, V, Zn et Zr) sont 2 à 10 fois plus élevées à proximité du port que dans le centre-ville de Marseille. Toutefois la réduction des teneurs en soufre dans les carburants mise en place ces dernières années (teneur de 0,1% pour les navires à quai depuis 2015) amène des émissions de soufre par les navires plus faibles avec pour conséquence des niveaux de concentrations en soufre observés en air ambiant significativement plus faibles.

Pour des composés comme les sulfates (SO_4^{2-}) et l'aérosol organiques (OA), identifiés comme traceurs moins spécifiques des émissions de navires lors de l'analyse du cycle journalier des concentrations, l'analyse des concentrations maximales indique que les émissions des navires peuvent ponctuellement influencer significativement les concentrations de ces polluants.

3.2. Caractérisation physique et chimique des émissions de la source « navires »

La caractérisation physique et chimique des émissions de la source navires, également connue sous le terme de profils d'émission, a été établie à partir des résultats des mesures réalisées sur les sites implantés le long des quais au cœur de la zone portuaire (sites PEB et MAJOR). La méthode des Facteurs d'Emission (EF) est l'une des méthodes les plus courantes pour caractériser la composition physique et chimique d'une source. L'approche utilisée dans ce projet est basée sur la méthode du bilan carbone et détermine un ratio de composé émis par la source. Elle tient compte de la dilution du panache et permet ainsi de s'affranchir des contributions liées aux autres sources d'émissions.

Dans le cadre de mesures environnementales, l'étape clé préalable à la caractérisation physique et chimique des émissions des navires par la méthode des facteurs d'émissions est l'identification des panaches de navires. Cette étape consiste à ne sélectionner que les pics de pollution (Figure 4) provenant de navires en croisant les données de mesures avec les données météorologiques et les données de suivi des navires. Pour chaque panache attribué à un seul navire ou à une catégorie de navires, le facteur d'émission de chaque polluant X (EFx), exprimé en grammes ou en nombre de particules par kilogramme de carburant utilisé, a été calculé.

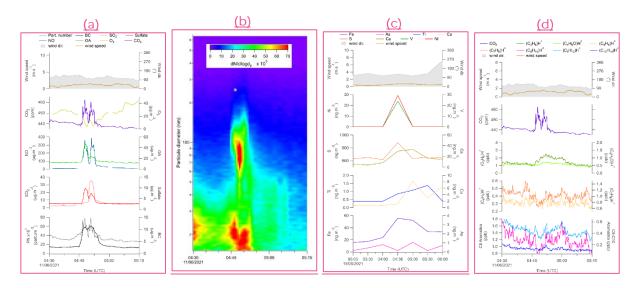
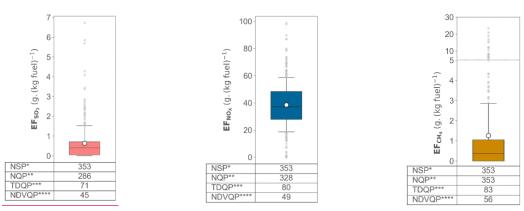


Figure 4 : Panache de navire détecté le 11/06/2021 sur le site PEB lors de la campagne « PAREA 2021 ». Evolution temporelle (a) des concentrations principaux polluants (b) de la distribution granulométrique des particules, (c) des concentrations d'une sélection de métaux et (d) des concentrations d'une sélection de COVNM mesurés à l'aide du PTR-ToF-MS.

Au total, un peu plus de 350 panaches de navires cumulant près de 85 heures d'observations ont été identifiés grâce à l'analyse croisée des conditions météorologiques, du positionnement des navires et des concentrations mesurées à haute résolution temporelle lors de la campagne. Cette étude intègre les panaches détectés pour plus de 50 navires, couvrant principalement leurs activités portuaires, telles que le stationnement, les manœuvres d'accostage et d'appareillage, l'entrée et la sortie du port, et ce dans un périmètre de moins de 750 mètres des côtes. Cette zone est particulièrement intéressante, car c'est là que les émissions des navires impactent le plus la qualité de l'air des villes portuaires et la santé des populations.

A titre d'exemple, les EF obtenus sont illustrés Figure 5 pour 3 des composés caractéristiques de la phase gazeuse.



* Nombre de panaches étudiés - ** Nombre de panaches quantifiés - *** Durée totale des panaches quantifiés (heure) **** Nombre de navires différents

Figure 5 : Distribution des facteurs d'émission (EF) des composés caractéristiques de la phase gazeuse exprimés en g.(kg fuel)¹ de l'ensemble des panaches identifiés lors de la campagne « PAREA 2021 ». Pour chaque diagramme en boîte, la boite colorée représente l'intervalle entre le 25^{ème} percentile (P25) et le 75^{ème} percentile (P75), la barre d'erreur verticale représente l'intervalle entre le 10^{ème} percentile (P10) et le 90^{ème} percentile (P90), la ligne horizontale noire représente la médiane, le cercle blanc représente la moyenne et les points gris représentent les

D'une manière générale, les EF calculés dans cette étude sont cohérents avec les valeurs documentées dans la littérature. En revanche, ils peuvent être jusqu'à cinq fois inférieurs à ceux utilisés dans les cadastres d'émissions, en particulier pour les NO_x et le SO₂. En termes de composition chimique, les

émissions gazeuses des navires sont majoritairement composées de NOx (86 %) et CO (12 %). Le dioxyde de soufre (SO₂) et le méthane (CH₄) représentent chacun environ 1%. Les autres composés, comme les composés organiques volatils (COV) représentent moins de 0,1% de la phase gazeuse, mais peuvent représenter jusqu'à 10 % dans certaines conditions opérationnelles sachant que l'impact de ces espèces sur la pollution secondaire peut être significatif.

La Figure 6 illustre la composition massique médiane de la phase gazeuse selon la phase opérationnelle des navires qui est le paramètre permettant le plus fréquemment d'expliquer les variations des EF des différents composés gazeux. Cette visualisation offre une vue d'ensemble du profil d'émission gazeux des navires (CO₂ exclu).

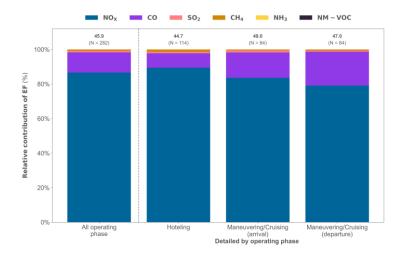


Figure 6 : Contributions relatives des facteurs d'émission des composés caractérisant la phase gazeuse hors dioxyde de carbone en fonction de la phase opérationnelle des navires (navires de plaisance exclu car cette catégorie de navires n'est représentée que pour la phase gazeuse) pour toutes les opérations, les phases à quai (Hotelling), les phases de manœuvre et de croisière, arrivées et départs. Le chiffre en gras au-dessus de chaque diagramme en bâtons indique la valeur absolue du facteur d'émission total des composés étudiés en g/kgfuel pour la phase opérationnelle considérée et N indique le nombre de panaches considérés.

En accord avec d'autres études, les émissions de SO₂ dépendent principalement de la teneur en soufre dans le combustible employé. Lors de la campagne, tous les panaches de navires « à quai » présentaient des teneurs en soufre < 0,1%. Pour les navires « en navigation », les teneurs en soufre étaient systématiquement < 0,5 % et seuls 10 % des panaches mesurés présentaient des teneurs en soufre supérieures à 0,1 % incluant principalement des navires à l'arrivée.

La phase particulaire des émissions des navires a été caractérisée à la fois en masse et en nombre de particules. Les quantités de particules émises par les navires peuvent varier d'un facteur 3 entre les différentes phases opérationnelles avec davantage d'émissions lors des phases de navigation et/ou de manœuvre comparativement aux phases de stationnement à quai. Les particules émises par les navires, toutes phases opérationnelles confondues, sont majoritairement composées d'OA (75 %), de BC (21 %) et de SO_4^{2-} (4%). La proportion de BC et de sulfates augmente respectivement à 34% et 8% lors des phases de navigation. L'étude montre que la combinaison de la granulométrie et de la composition chimique des particules (fraction organique, sulfate, black carbon, ratio vanadium/nickel) permet d'identifier les différents types de carburants utilisés ainsi que l'emploi de systèmes d'épuration des fumées. Concernant la phase particulaire, les quantités de particules émises par les navires peuvent varier d'un facteur 3 entre les différentes phases opérationnelles avec davantage d'émissions lors des phases de navigation et/ou de manœuvre comparativement aux phases de stationnement à quai. Les particules émises par les navires, toutes phases opérationnelles confondues, sont majoritairement composées d'OA (75 %), de BC (21 %) et de SO_4^{2-} (4 %). La proportion de BC et de sulfates augmente respectivement à 34% et 8% lors des phases de navigation. L'étude montre que la combinaison de la granulométrie et de la composition chimique des particules (fraction organique, sulfate, black carbon, ratio vanadium/nickel) permet d'identifier les différents types de carburants utilisés ainsi que l'emploi de systèmes d'épuration des fumées.

Comme le montre la Figure 7, cette composition peut cependant varier selon les phases opérationnelles. Lors des manœuvres, la proportion de carbone suie augmente à 34 %, tandis que la proportion de sulfates atteint 8% en navigation et diminue à 2% à quai.

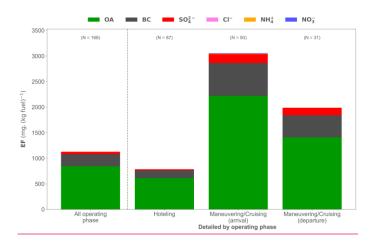
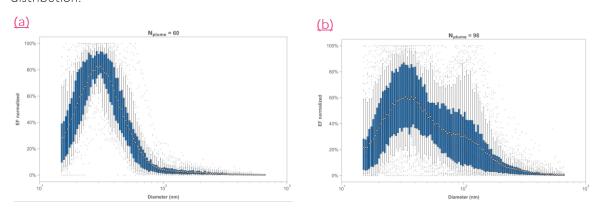


Figure 7: Facteurs d'émission médians des navires pour les composés caractérisant la phase particulaire en fonction de la phase opérationnelle des navires. Le chiffre N indique le nombre de panaches considérés.

De la même manière que pour les composés présentés précédemment, la distribution granulométrique moyenne des particules dans les panaches, ou leur répartition selon la taille, a été définie grâce au calcul des EF pour les diverses classes de taille de l'analyseur SMPS, allant de 15 à 660 nm. La . Figure illustre la distribution granulométrique des panaches détectés mettant en évidence une distribution mono ou bimodale suivant les conditions opérationnelles avec (1) un mode prévalant, observé systématiquement et centré autour de 30 nm, et (2) un mode non systématique et/ou moins abondant (au regard des maximas et des écarts entre les moyennes et la médianes) centré autour de 110 nm. Parmi les paramètres de navires examinés (catégorie de navire, vitesse de circulation, puissance totale du moteur, âge du moteur...), la phase opérationnelle et le combustible utilisé exercent l'influence la plus marquée sur cette distribution.



. Figure 8 : Distribution granulométrique des panaches identifiés lors de la campagne « PAREA 2021 » en fonction de la phase opérationnelle (a) « à quai » et (b) « en navigation » et/ou « en manœuvre ».

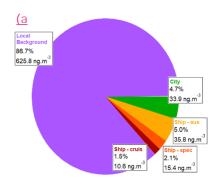
3.3. Empreinte chimique et contribution de la source trafic maritime pour les éléments traces métalliques et les composés organiques volatils

La caractérisation du profil chimique d'émission pour les ETM et les COV a pu se faire par application du modèle sources-récepteur « Positive Matrix Factorisation » (PMF). Ce modèle est couramment utilisé pour évaluer la contribution des sources à la pollution atmosphérique car il ne nécessite pas de connaissance préalable de la composition chimique des sources. Le principe repose sur une factorisation déterminée à partir de co-variabilité des composés mesurés afin d'identifier des profils chimiques attribuables à des sources d'émission (dont le trafic maritime) et d'évaluer leur contribution

Pour les ETM, 3 profils chimiques ont pu être associés au trafic maritime :

- 1) un Profil « navires en navigation », principalement observé, le long des voies d'accès au port, profil marqué par d'importantes contributions en vanadium (V) et nickel (Ni) avec ratio V/Ni de l'ordre de 0,8.
- 2) Profil « spécifique à certaines catégories », majoritairement détecté lorsque le site se trouvent sous le vent de certaines catégories de navires tels que les cargos ou les ferries. Ce profil est caractérisé par une prédominance de zinc (Zn) et de soufre (S), venant compléter le premier profil identifié.
- 3) Profil « moteurs auxiliaires » qui apparaît lorsque le site de mesures est sous les vents du port en général ou sous les vents de navires utilisant des combustibles plus raffinés ou leurs moteurs auxiliaires. Il présente des concentrations élevées en métaux typiques des moteurs essence ou diesel, tels que le fer (Fe), le manganèse (Mn), le plomb (Pb) et l'arsenic (As), avec une masse majoritairement constituée par le Fe et le

La Figure 9 présente la contribution moyenne de la source « navires » pour les ETM en champ proche, site PEB, et en champ lointain, site MRS-LCP. En champ proche, la somme des 3 profils d'émissions des navires représente environ 9% de la masse totale des métaux mesurés contre 4 % en champ lointain. Il est important de souligner que bien que les navires ne représentent que 4 à 9% de la masse totale des métaux, ils contribuent néanmoins de manière significative, à hauteur de plus de 80 %, aux concentrations en nickel (Ni) et en vanadium (V), métaux reconnus pour leurs effets néfastes sur la santé des populations.



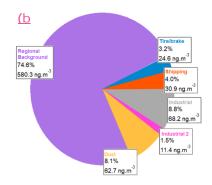


Figure 9: Contribution moyenne de la source « navires » relative aux ETM (a) en juin 2021 sur le site PEB (champs proche) et (b) durant l'été 2021 (juin à septembre) sur le site MRS-LCP (champs lointain)

Le modèle PMF a également été appliqué aux COV mesurés sur les sites PEB et MRS-LCP. La déconvolution de la source « Traffic maritime » s'est montrée plus difficile. Une source caractérisée par des composés aromatiques à 8 oui 9 atomes de carbone (toluène, xylènes) a été décelée comme bien associée au trafic maritime, avec une empreinte chimique similaire entre MRS-LPC et PEB. Toutefois la séparation des facteurs n'est pas optimale et il est prudent de regrouper les profils d'émissions dans une catégorie « activités portuaires » à PEB (combustion, évaporation de carburant et C8 aromatiques). Pour PEB, les activités portuaires contribuent à 17,7 % des niveaux de concentrations des COV mesurés.

3.4. Impact sur la qualité de l'air de la source trafic maritime, du champ proche au champ lointain

L'évaluation de l'impact spatialisés des émissions lies au trafic maritime à Marseille s'appuie sur des outils de modélisation de dispersion atmosphérique. Il existe trois approches pour modéliser la dispersion atmosphérique : La combinaison de modèles (Le modèle eulérien Polair3D-SSH couplé au modèle à bouffées gaussiennes de la plateforme Polyphemus et Le modèle 3D Parallel Micro Swift Spray (PMSS) a permis de répondre à des finalités différentes mais complémentaires au regard de la problématique étudiée. Un travail important a été réalisé sur les données d'entrée des modèles (inventaires spatialisés des émissions, données météorologiques, conditions aux limites) pour optimiser des résultats optimaux. Une comparaison aux observations réalisées pendant la campagne a permis d'évaluer la qualité des simulations.

Les résultats de modélisations de concentrations de PM_{2,5} brutes moyennées pour chaque jour du mois de juin, nous a permis de cartographier le nombre de jours de dépassement du seuil OMS journalier de 15 μg/m³ (Figure). L'OMS recommande que ce seuil ne soit pas dépassé plus de trois jours par an. Ce sont seulement les zones en vert et en jaune qui témoignent de dépassements du seuil liés à l'activité maritime. Ce cas de figure est circonscrit en majorité à l'enceinte du port. Le même exercice avec un seuil plus représentatif de l'aspect aigu associé aux panaches de navires en cartographiant le nombre de dépassements du seuil horaire de 50 µg/m³ ce qui met en exergue les secteurs les plus impactés par les panaches.

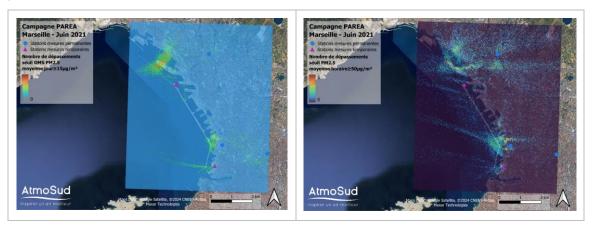


Figure 10 : Cartographie modélisée du nombre de dépassements de la limite journalière OMS de 15 μg/m³ (à gauche) et de la limite de 50 μg/m³ des concentrations horaires (à droite) en juin 2021 pour les PM_{2.5}

Ce constat est en cohérence avec celui révélé par les observations selon lequel l'impact chronique des navires est peu important sur la ville. En revanche, les panaches et leur courte durée, peuvent avoir localement un impact important même à plusieurs centaines de mètres de son lieu d'émission. Cet impact furtif, additionné à la pollution urbaine de fond, peut dépasser les 50 µg/m³ en concentration horaires de PM_{2.5} et ainsi poser des questions sur les effets aigus d'exposition à ces concentrations.

L'évolution chimique des particules dans les panaches a été étudiée avec le modèle Polair3D-SSH PinG, Des journées spécifiques ont été utilisés pour estimer la distance d'impact des panaches. Pour ce faire, le pas de temps est calculé pour que le rapport entre la concentration d'une espèce dans le panache et le niveau de concentration de fond de cette espèce dépasse un certain seuil (ici 20 % par rapport au fond). Il ressort que la distance d'impact des espèces faiblement émise par les navires est très courte, le mélange avec le fond étant réalisé très rapidement. Pour les espèces aux émissions significatives, l'impact du panache varie de 1,3km pour les Sulfates jusqu'à 2,1km pour les carbones suies, qui représentent plus de 50% des émissions maritimes. Enfin, la contribution de la source « navires » à la dégradation de la qualité de l'air a pu être évaluée en intégrant uniquement dans le modèle, les émissions maritimes calculées dans l'enceinte du GPMM. Ainsi, du 1er au 30 juin 2021, les sorties brutes du modèle PMSS, moyennées sur le mois de juin, indiquent un maximum de contribution de 1 μg/m³ en dehors de l'enceinte portuaire (Figure 11). Dans le port, cette contribution au cœur des panaches peut atteindre 3 μ g/m³. L'effet de la prise en compte du bâti dans les résultats de la modélisation est largement visible, particulièrement au sud, où des zones de surconcentrations se créent entre les bâtiments.

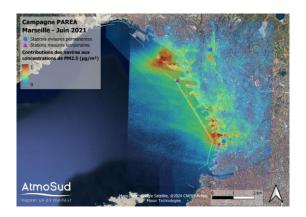


Figure 11 : Cartographie modélisée de la contribution moyenne des navires (en µg/m³) aux concentrations de PM_{2.5} en juin 2021

À l'endroit des sites de PEB et de la Major, cette contribution moyenne mensuelle aux concentrations de PM_{2,5} atteint respectivement 0,45 μ g/m³ (3,6%) et 0,29 μ g/m³.(3,0%). À la station de fond urbain MRS-LCP, située à un peu plus de 2 km du port, la contribution est de 0,16 μg/m³.(1,9%)

Pour évaluer l'impact des sources maritimes avec le modèle Polair3D-SSH PinG, une simulation supplémentaire a été réalisée. L'impact des sources maritimes est alors évalué comme la différence entre les deux simulations (Biais). Les résultats montrent que l'impact moyen des navires sur la concentration de NO₂ atteint 7,3 μg.m³ dans la zone du port de Marseille (environ 23 %). Pour les PM₂,5, l'impact est bien plus faible dans le port avec un impact qui atteint 0,4 µg.m³ (environ 3%). Le détail des contributions par famille d'espèce chimique montre que les organiques participent à hauteur de 53 % à l'impact des particules dans la zone du port, les nitrates à hauteur de 27 % puis les carbones suies, à environ 11 %.

4. Conclusions et recommandations

Ce projet PAREA a eu pour but l'amélioration des connaissances sur les émissions de particules fines et de leurs précurseurs par le transport maritime. En particulier il s'agissait de caractériser les particules fines émises par le trafic maritime en termes de tailles et de composition chimique, de caractériser les précurseurs de particules secondaires émis par le trafic maritime et de documenter l'évolution de ces caractéristiques en champs proches de la zone portuaire. Les résultats obtenus à partir des méthodologies développées dans ces travaux permettent de ressortir quelques recommandations.

Sur le plan méthodologie de ce type d'étude :

- L'obtention des facteurs d'émissions doit pouvoir s'appuyer sur des méthodes à haute résolution temporelle (fréquence idéalement de 1Hz). Les panaches de navire sont très furtifs. C'est un enieu important lorsqu'il s'agit de fournir des informations spécifiquement sur les émissions liées au trafic maritime. La recommandation est de déployer pour l'observation des outils à très hautes résolution et de très grande sensibilité pour la composition chimique des phases gazeuses et particulaire.
- L'identification des sources et de leur impact sur la pollution atmosphérique nécessitent de disposer d'information sur un panel d'espèces chimiques clés présentent à l'état de traces. Il s'agit de pouvoir mesurer en continue (à haute résolution temporelle) de manière sélective un grand nombre de composés traceurs. Des outils à haute résolution chimique sont indispensables pour ce type d'étude.
- À la suite de la réglementation sur les teneurs en soufre des carburant, les niveaux de concentration ambiante en SO₂ ont significativement diminué. Par conséquent, Il est maintenant nécessaire de disposer d'instruments plus performants pour suivre l'évolution des concentrations en SO₂.
- L'analyse de la distribution granulométrique des particules émises par les navires souligne l'importance de surveiller spécifiquement la fraction PM1 et notamment les particules de taille inférieure à 150 nm, gamme qui inclut les deux modes granulométriques susceptibles d'être retrouvés et potentiellement caractéristiques des carburants employés par les navires.
- C'est un ensemble d'informations combinées à haute résolution, propriétés physiques (granulométrie des particules) et chimiques (composition des gaz et des particules), qui permettront d'identifier avec discernement les différents types de carburants utilisés et les systèmes d'épuration des fumées employés.

Sur le plan de la réglementation et des outils de surveillance :

- La divergence significative entre les facteurs d'émission déterminés dans cette étude et ceux utilisés dans les cadastres d'émissions pour les NO_x et le SO₂ souligne la nécessité de réviser les estimations utilisées dans les inventaires d'émissions officiels afin de refléter plus fidèlement les émissions réelles des navires, contribuant ainsi à une meilleure précision dans les modélisations de la qualité de l'air et les stratégies de réduction des polluants atmosphériques.
- Les informations que les navires doivent transmettre via le système AIS (Système d'Identification Automatique) sont régies par la Convention SOLAS (Safety of Life at Sea). Il pourrait être intéressant d'obliger les gestionnaires des navires à indiquer le type de carburant utilisé et les potentiels systèmes d'épuration installés sur le navire. Ces informations pourraient permettre de mieux surveiller et gérer l'impact environnemental du transport maritime.
- La réglementation sur les teneurs en SO₂ se montre factuellement efficace pour baisser les niveaux ambiants et l'impact des composés soufrés. L'évolution de la composition des carburants, des technologies de motorisation et de traitement des fumées doit indéniablement se poursuivre ou encore les systèmes d'électrification à quai doivent se poursuivre afin de limiter voire baisser l'impact sur la qualité de l'air du trafic maritime toujours croissant.

Cette étude basée sur l'observation et la modélisation a permis de mettre en place des méthodologies d'accès à des données élaborées et cruciales pour l'évaluation de la caractérisation physico-chimiques des polluants atmosphériques gazeux et particulaires liés au trafic maritime. Ces données sont mises à disposition de la communauté scientifique.

L'étude a montré toute la difficulté pour l'obtention d'une bonne représentation des émissions de la sources trafic maritime et de leurs impacts. Les données d'émissions restent néanmoins essentielles pour envisager des scénarios de réduction ou évaluer des actions de remédiation. L'amélioration des inventaires d'émissions constituent l'élément clé en particulier en termes de spéciation chimique et d'évolution temporelle des émissions. Des projets font suite à cette étude en proposant une extension à d'autres zones portuaires afin d'améliorer la représentativité des facteurs d'émissions en considérant différents contextes portuaires (type et densité de navires), environnementaux et climatologiques. En outre, de nouvelles méthodologies pourront être testées pour mieux documenter l'évolution temporelles des émissions sur la base de l'identification de la position et de la typologie des navires. Ces nouvelles informations en temps quasi-réel constituent des apports nouveaux pour améliorer les méthodologies déployées dans cette étude.

Index des figures

FIGURES

Figure 1.	Localisation des points de mesures de la campagne intensive « PAREA 2021 » et photo
des cabines d'ol	oservation sur le site de Phares et Balises8
Figure 2 :	Nombre cumulé de départs et d'arrivées de navires sur le port de Marseille en juin 2021
en fonction de	leur catégorie (à l'exclusion des pilotines, des navires de plaisance et des navettes de
passagers	9
Figure 3:	Evolution temporelle des principaux polluants lors de la campagne « PAREA 2021 » sur les
sites de mesures	s implantés au cœur de la zone portuaire (site PEB (a) et site MAJOR (b)) ainsi que sur le site
représentatif de	e la pollution urbaine de fond (site MRS-LCP (c))10
Figure 4:	Panache de navire détecté le 11/06/2021 sur le site PEB lors de la campagne « PAREA
2021 ». Evolution	on temporelle (a) des concentrations principaux polluants (b) de la distribution
granulométrique	e des particules, (c) des concentrations d'une sélection de métaux et (d) des
concentrations	d'une sélection de COVNM mesurés à l'aide du PTR-ToF-MS11
Figure 5: Distrib	oution des facteurs d'émission (EF) des composés caractéristiques de la phase gazeuse
	g fuel)¹ de l'ensemble des panaches identifiés lors de la campagne «PAREA 2021 ». Pour
	nme en boîte, la boite colorée représente l'intervalle entre le 25 ^{ème} percentile (P25) et le
	(P75), la barre d'erreur verticale représente l'intervalle entre le 10ème percentile (P10) et le
	e (P90), la ligne horizontale noire représente la médiane, le cercle blanc représente la
	points gris représentent les extrema11
	Contributions relatives des facteurs d'émission des composés caractérisant la phase
	oxyde de carbone en fonction de la phase opérationnelle des navires (navires de plaisance
	catégorie de navires n'est représentée que pour la phase gazeuse) pour toutes les
	phases à quai (Hotelling), les phases de manœuvre et de croisière, arrivées et départs. Le
	u-dessus de chaque diagramme en bâtons indique la valeur absolue du facteur d'émission
	osés étudiés en g/kg _{fuel} pour la phase opérationnelle considérée et N indique le nombre de
panaches consid	
	urs d'émission médians des navires pour les composés caractérisant la phase particulaire
	la phase opérationnelle des navires. Le chiffre N indique le nombre de panaches
considérés	
	ibution granulométrique des panaches identifiés lors de la campagne « PAREA 2021 » en
	hase opérationnelle (a) « à quai » et (b) « en navigation » et/ou « en manœuvre »
	ribution moyenne de la source « navires » relative aux ETM (a) en juin 2021 sur le site PEB
	e) et (b) durant l'été 2021 (juin à septembre) sur le site MRS-LCP (champs lointain)14
	graphie modélisée du nombre de dépassements de la limite journalière OMS de 15 µg/m³
	la limite de 50 µg/m³ des concentrations horaires (à droite) en juin 2021 pour les PM _{2.5} 15
-	graphie modélisée de la contribution moyenne des navires (en µg/m³) aux concentrations
ae PM _{2,5} en Juin .	202116

L'ADEME EN BREF

À l'ADEME - l'Agence de la transition écologique -, nous sommes résolument engagés dans la lutte contre le réchauffement climatique et la dégradation des ressources.

Sur tous les fronts, nous mobilisons les citoyens, les acteurs économiques et les territoires, leur donnons les moyens de progresser vers une société économe en ressources, plus sobre en carbone, plus juste et harmonieuse.

Dans tous les domaines - énergie, économie circulaire, alimentation, mobilité, qualité de l'air, adaptation au changement climatique, sols... nous conseillons, facilitons et aidons au financement de nombreux projets, de la recherche jusqu'au partage des solutions.

À tous les niveaux, nous mettons nos capacités d'expertise et de prospective au service des politiques publiques.

L'ADEME est un établissement public sous la tutelle du ministère de la Transition écologique et de la Cohésion des territoires, du ministère de l'économie, des finances et de la souveraineté industrielle et numérique et du ministère de l'Enseignement supérieur et de la Recherche.

LES COLLECTIONS DE L'ADEME



FAITS ET CHIFFRES

L'ADEME référent : Elle fournit des analyses objectives à partir d'indicateurs chiffrés régulièrement mis à jour.



CLÉS POUR AGIR

L'ADEME facilitateur : Elle élabore des guides pratiques pour aider les acteurs à mettre en œuvre leurs projets de façon méthodique et/ou en conformité avec la réglementation.



ILS L'ONT FAIT

L'ADEME catalyseur : Les acteurs témoignent de leurs expériences et partagent leur savoir-



EXPERTISES

L'ADEME expert : Elle rend compte des résultats de recherches, études et réalisations collectives menées sous son regard.



HORIZONS

L'ADEME tournée vers l'avenir : Elle propose une vision prospective et réaliste des enjeux de la transition énergétique et écologique, pour un futur désirable à construire ensemble.



Liberté Égalité Fraternité





EXPERTISES

EVOLUTION DES PARTICULES FINES EN PROXIMITE DU TRAFIC MARITIME

Les émissions gazeuses liées au trafic maritime ont un impact avéré sur la qualité de l'air en particulier sur les zones côtières. Ce projet PAREA a pour but d'améliorer les connaissances sur les émissions du transport maritime. Sur la base d'une approche combinant observation et modélisation, l'objectif est de caractériser les particules fines émises par le trafic maritime en termes de tailles et de composition chimique, de caractériser les précurseurs de particules secondaires émis par le trafic maritime et de l'évolution de documenter caractéristiques en champs proches de la zone portuaire.

Une campagne de mesure intensive a été menée à Marseille pour l'obtention d'une base de données uniques de 145 composés gazeux et particulaires. Plus de 350 panaches de navires ont été identifiés pour déterminer des Facteurs d'Emissions (EF). La modélisation déterministe a été mise en œuvre pour cartographier l'impact des activités maritimes à Marseille.

L'étude montre toute la difficulté pour l'obtention d'une bonne représentation des émissions de la sources trafic maritime. L'amélioration des inventaires d'émissions en termes de spéciation chimique et d'évolution temporelle de cette source est essentielle pour évaluer des actions de remédiation.

Les quantités de particules émises par les navires peuvent varier d'un facteur 3 entre les différentes phases opérationnelles avec davantage d'émissions lors des phases de navigation et/ou de manœuvre comparativement aux phases de stationnement à quai.

La contribution relative des navires est de 3% de la moyenne mensuelle en particules fines (PM2,5) sur la zone portuaire. Elle s'élève à 23% pour le dioxyde d'azote (NO2).

La contribution des navires est de 9% de la masse totale des métaux lourds mesurées dans les particules fines en zone portuaire. Plus spécifiquement, ces émissions contribuent à plus de 80 % des concentrations en nickel (Ni) et en vanadium (V), métaux reconnus pour leurs effets néfastes sur la santé des populations.

