



Programme pilote de surveillance des HAP dans l'air ambiant

Participation ASCOPARG et COPARLY

Décembre 2004



I) Programme pilote

1) Contexte

La **directive européenne 96/62/CE du 27 septembre 1996** prévoit la prise en compte des HAP dans le cadre de l'évaluation et de la gestion de la qualité de l'air ambiant. En 1999, la Commission Européenne a créé un groupe de travail sur les HAP. Le groupe de travail a publié en juillet 2001 un document devant servir de base à l'élaboration de la directive fille HAP [*Ambient Air Pollution by Polycyclic Aromatic Hydrocarbons - Position Paper – 27/07/2001 – Working Group on PAH*]. Le document fait la synthèse des connaissances dans les domaines suivants :

- Emissions connues de HAP - Situation et tendance
- Concentrations déjà mesurées dans l'air ambiant - Situation et tendance
- Méthodes de prélèvement et d'analyses disponibles
- Effets des HAP
- Expérience des Etats Membres en matière de connaissances et de gestion des risques liés aux HAP
- Recommandations et valeurs limites déjà en vigueur dans les Etats Membres

Des recommandations portant sur la stratégie de mesure, les méthodes de mesures et les valeurs à respecter sont émises dans ce document.

Des études montrent que le **Benzo[a]pyrène (BaP)** représente 40% de la toxicité globale des HAP, dans le cas de l'inhalation [*INERIS – HAP dans l'air ambiant – LAURE/Convention n°13/98 – Décembre 1999*]. Aussi, la **future valeur cible européenne** pourrait concerner uniquement ce composé. Le 16 juillet 2003, la Commission de la Communauté Européenne a proposé une valeur cible **fixée à 1 ng.m⁻³ en moyenne annuelle** [*Texte 2003/0164*]. Dans la plupart des pays européens, les valeurs limites existantes portent sur le BaP et varient entre 1 et 2 ng.m⁻³ en moyenne annuelle. A noter également l'existence de valeurs guides, de 0,1 à 1,3 ng.m⁻³ en moyenne annuelle. Certains pays possèdent également des valeurs pour d'autres HAP (2 ng.m⁻³ en Suède pour le fluoranthène) [*CCE – Proposition de directive - 16 juillet 2003 – Texte 2003/164*]. Il faut signaler que le Comité scientifique de la toxicité, de l'écotoxicité et de l'environnement des Communautés Européennes (CSTEE) estime que le BaP ne peut être utilisé que comme traceur semi-quantitatif de la présence de HAP cancérigènes. Compte tenu du manque de données disponibles, il recommande d'approfondir la recherche. Dans ce contexte, la proposition de directive impose la surveillance d'autres HAP que le BaP : benzo(a)anthracène, benzo(b)fluoranthène, benzo(j)fluoranthène, benzo(k)fluoranthène, indéno(1,2,3-cd)pyrène, dibenzo(a,h)anthracène et fluoranthène [*CCE – Proposition de directive - 16 juillet 2003 – Texte 2003/164*]. A la rédaction de ce document (décembre 2004), la proposition de directive n'est pas adoptée et reste sujette à modification.

Avant la parution du Position Paper, la France a également mis en place un groupe de travail chargé de proposer une stratégie de surveillance, à l'issue d'un **programme pilote de surveillance**. L'INERIS, dans le cadre de ses activités au sein du Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air (LCSQA), a été chargé de concevoir le programme pilote et d'en suivre le fonctionnement. Précisément, les objectifs du programme pilote sont les suivants :

- Connaissance des concentrations
- Etudes en vue de déterminer les choix métrologiques et méthodologiques pertinents
- Quantification des incertitudes
- Elaboration d'une stratégie de surveillance (sites, fréquence de prélèvement, AQ, etc.)
- Evaluation des coûts

En matière d'analyse des HAP, il existe actuellement une norme AFNOR (Détermination des HAP – NF X43-025 – Octobre 1998), qui décrit deux méthodes possibles : chromatographie en phase liquide haute performance (HPLC) et chromatographie en phase gazeuse (CPG), à utiliser selon les composés recherchés et l'objectif visé. Par ailleurs, il existe deux normes internationales :

- ISO 12 884 d'avril 2000 : la seule méthode mentionnée est CPG/SM (chromatographie en phase gazeuse couplé à un spectromètre de masse)
- Une norme ISO en cours d'élaboration par le TC 146 WG 17 du TC 146 (HPLC)

Une norme européenne CEN sur une méthode de mesure de référence des HAP est également en préparation.

2) Emissions [Source : CITEPA / CORALIE format SECTEN - mise à jour 13 février 2004]

Les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) sont soupçonnés se former dans des proportions importantes lors de la combustion et tout particulièrement celle de la biomasse, qui s'effectue souvent dans des conditions mal maîtrisées (par exemple en foyer ouvert). Pour le chauffage domestique, la Commission Européenne considère que les émissions du bois pourraient être réduites en appliquant des règles de bonne pratique et à l'avenir grâce à l'augmentation du rendement dans les poêles modernes [CCE – Proposition de directive - 16 juillet 2003 – Texte 2003/164].

L'évolution des émissions suit d'assez près celle des conditions climatiques, traduisant ainsi le lien entre les émissions et la consommation d'énergie comme le reflète l'année 1991. Par suite, il n'est pas attendu d'évolution significative au cours des prochaines années.

L'attention portée à ces rejets vient du caractère cancérigène reconnu de certains des composés de cette famille comme le benzo(a)pyrène. Toutefois, les données fournies ici sont globales et ne sauraient préjuger de la part de tel ou tel composé.

Les émissions de HAP (Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques) représentent 251 tonnes en 2002. Les émissions sont globalement en baisse sur la période 1990-2002.

Ainsi, les émissions totales de la France métropolitaine étaient de 293 tonnes en 1990, soit une baisse en 2002 de 14%.

Les émissions proviennent principalement de trois secteurs, qui sont par ordre d'importance en 2002 :

- **le résidentiel/tertiaire : 37%** des émissions totales de la France métropolitaine en 2002,
- **le transport routier : 32%**, en particulier les véhicules diesels,
- **l'industrie manufacturière : 22%**.

Les autres secteurs contribuent peu, voire pas, aux émissions de ce polluant.

Période 1990 – 2002 :

- Emissions en 2002 : 251 tonnes
- Maximum observé : 320 tonnes en 1991
- Minimum observé : 251 tonnes en 2002
- Evolution 2002 / 1990 : -14 %
- Evolution 2001 / maximum : -22 %
- Evolution 2002 / minimum : 0 %

Sous-secteurs prépondérants en 2002 (≥ 95 % des émissions totales) :

- 1 - Résidentiel 37 %
- 2 - Métallurgie des métaux ferreux 18 %
- 3 - Voitures particulières diesel non catalysées 8,8 %
- 4 - Voitures particulières diesel catalysées 8,3 %
- 5 – Autres sources de l'agriculture 6,5 %
- 6 - Véhicules utilitaires diesel non catalysés 5,8 %
- 7 - Voitures particulières essence non catalysées 3,2 %
- 8 - Poids lourds diesel 2,7 %
- 9 - Construction 2,0 %
- 10 - Véhicules utilitaires diesel catalysés 1,8 %

Il est à noter, au niveau de l'inventaire français, une évolution considérable des quantités estimées. En effet, au démarrage du programme pilote, l'inventaire du CITEPA estimait à 1834 tonnes les rejets en France (données 1999), dont environ 80% en provenance des combustions du secteur résidentiel [*HAP – LCSQA – Convention 41/2000 – Décembre 2001 – Rapport INERIS DRCAIRE-01-27586-ELe-n°780.1*]. En 2004, compte tenu des révisions des méthodes d'estimation et des règles de restitution, sur cette même année 1999, les rejets sont estimés à 263 tonnes [*CITEPA / CORALIE format SECTEN - mise à jour 13 février 2004*]. Les inventaires réalisés actuellement prennent en compte les 4 HAP suivants, conformément à la méthodologie CORINAIR : benzo(b)fluoranthène, benzo(k)fluoranthène, benzo(a)pyrène, indeno(123-cd)pyrène. En 1999, 12 autres HAP étaient également intégrés dans les inventaires, d'où des différences considérables en terme de quantités rejetées (Naphtalène, Acénaphthylène, Acénaphthène, Fluorène, Anthracène, Phénanthrène, Fluoranthène, Pyrène, Benzo(a)anthracène, Chrysène, Dibenz(ah)anthracène, Benzo(ghi)pérylène).

Si les inventaires actuels sont entachés d'incertitude, c'est notamment parce que 75% des émissions de l'Union Européenne (UE) proviennent de sources diffuses, y compris au niveau des installations industrielles [*CCE Proposition de directive – 16 juillet 2003 – Texte 2003/164*].

Spéciation : il existe peu de données d'émission par composé. Le programme CORINAIR a cependant défini des facteurs d'émission pour 4 HAP : benzo(b)fluoranthène, benzo(k)fluoranthène, benzo(a)pyrène et indeno(1,2,3-cd)pyrène [*EMEP/CORINAIR Emission Inventory Guidebook - 3rd edition September 2003 UPDATE - Technical report No 30*]. Les sources mentionnées pour l'Europe sont les combustions domestiques et industrielles du bois et du charbon, la fabrication d'anodes pour l'industrie de l'aluminium, la production d'aluminium, les feux de forêts et les véhicules. Pour ces derniers, sont distinguées les catégories suivantes :

Facteurs d'émission des véhicules pour le Benzo(a)pyrène	
Catégorie de véhicules	Facteur d'émission (µg/km)
Véhicules particuliers – Essence - Non Catalysé	1,1
Véhicules particuliers – Essence - Catalysé	0,4
Véhicules particuliers – Diesel - Injection directe	0,7
Véhicules particuliers – Diesel - Injection indirecte	2,8

Quelques estimations des rejets de Benzo(a)pyrène sont cependant effectuées dans certains pays (cf. ci-dessous l'estimation des émissions de B(a)P au Royaume-Uni).

Table 6.4b UK Emissions of BaP³ by UN/ECE Source Category (tonnes)

	1990	1991	1992	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2001%
BY UN/ECE CATEGORY													
Combustion in Energy Prod													
Public Power	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0%
Petroleum Refining Plants	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0%
Other Combustion & Trans.	0.1	0.1	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0%
Combustion in Comm/Res													
Residential Plant	6.1	6.3	6.0	5.8	4.5	3.4	3.6	3.4	3.6	3.9	2.9	3.6	35%
Comm/Agricul Combustion	0.3	0.2	0.2	0.2	0.2	0.1	0.1	0.2	0.1	0.0	0.0	0.0	0%
Combustion in Industry													
Iron & Steel Combustion	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0%
Other Ind. Combustion	0.1	0.0	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.0	0.0	0.0	0%
Production Processes													
Non-Ferrous Metals	24.6	23.7	22.7	21.8	20.8	16.3	5.2	3.9	2.6	1.5	0.7	0.7	7%
Processes in Industry	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	2%
Solvent Use													
Solvent Use	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0%
Road Transport													
Combustion	5.3	4.5	3.9	3.2	2.6	2.1	1.6	1.3	1.0	0.8	0.7	0.6	6%
Other Trans/Machinery	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0%
Waste⁴													
Waste ⁴	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	19%
Agriculture													
Agriculture	28.3	24.3	17.7	0.4	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0%
Nature													
Nature	2.9	2.9	2.9	2.9	2.9	2.9	2.9	2.9	2.9	2.9	2.9	2.9	29%
TOTAL	70	65	56	37	33	27	16	14	13	11	10	10	100%

³ Benzo[a]pyrene

⁴ Excludes emissions of 382.5kg from foot and mouth animal pyres. See Chapter 9.

3) Effets

Plusieurs HAP sont classés comme probables ou possibles cancérigènes, pouvant en particulier provoquer l'apparition de cancers du poumon en cas d'inhalation (phase particulaire surtout). Plusieurs HAP sont également génotoxiques. L'unité de risque dans le cas d'une exposition de la population à une concentration de 1 ng.m⁻³ de BaP tout au long de la vie a été estimée à 8,7*10⁻⁵ par l'OMS [*Ambient Air Pollution by Polycyclic Aromatic Hydrocarbons - Position Paper – 27/07/2001 – Working Group on PAH*] [*CCE Proposition de directive – 16 juillet 2003 – Texte 2003/164*].

4) Le programme pilote : méthodologie

a) Participants

Les premières mesures du programme pilote ont débuté en 2001. Les AASQA et villes suivantes sont impliquées dans la première phase du programme :

- AREMA LM (Lille) : deux sites, un urbain et un trafic
- AIRPARIF (Paris) : trois sites, un urbain, un trafic et un urbain à influence industrielle
- AIR LR (Montpellier) : un site urbain
- AIRMARAIX (Marseille) : deux sites urbains
- ATMO POITOU (La Rochelle) : un site urbain
- **ASCOPARG (Grenoble) : un site trafic**
- **COPARLY (Lyon) : deux sites, un trafic (démarrage des mesures en décembre 2001), un industriel (opérationnel fin avril 2004)**
- AIRNORMAND (Le Havre) : un site industriel
- AIRCOM (Caen) : un site trafic

Les sites ont été choisis par chaque AASQA, en fonction de ses attentes et contraintes. Le groupe de travail n'a rien imposé mais souhaité avoir un panel représentatif de différentes typologies de sites. A ce titre, les sites industriels semblent sous-représentés. A noter également l'absence de site rural. A ce sujet, la Commission des Communautés Européennes constate qu'il existe peu de données dans l'Union Européenne concernant les communautés rurales où les foyers se chauffent au charbon et au bois, alors que la combustion des combustibles fossiles serait à l'origine de 50% des émissions de BaP dans l'UE-15 (Union Européenne des 15 pays membres) [CCE Proposition de directive – 16 juillet 2003 – Texte 2003/164].

b) Composés suivis dans le cadre du programme pilote - Valeurs typiques

Douze HAP, choisis en raison de leur potentiel toxique et de leur abondance, avaient été retenus initialement. Un composé, le Benzo(j)Fluoranthène a été ajouté à la liste des composés mesurés par ASCOPARG et COPARLY en septembre 2003, conformément aux préconisations de l'INERIS.

[Source : Ambient Air Pollution by PAH – Position Paper – July 27th 2001 – EC]

HAP	Formule	Phase	Toxicité IARC ¹ /EPA	Sources principales ²	Indicateurs d'inventaires d'émission ³
Phénanthrène (PHE)	C ₁₄ H ₁₀	Gaz & particule	US-EPA	Diesel/ raffinerie pétrole	
Anthracène (AN)	C ₁₄ H ₁₀	Gaz & particule	US-EPA	Raffinerie pétrole	
Fluoranthène (FA)	C ₁₆ H ₁₀	Gaz & particule	US-EPA	Chauffage domestique/diesel	Borneff

Pyrène (PY)	C ₁₆ H ₁₀	Gaz & particule	US-EPA	Chauffage domestique/diesel	
Benzo[a]anthracène (BaA)	C ₁₈ H ₁₂	Particulaire	CIRC 2A US-EPA	Chauffage domestique / fonderie	
Chrysène (CHR)	C ₁₈ H ₁₂	Particulaire	US-EPA	Chauffage domestique/ incinérateur déchets	
Benzo[b]fluoranthène (BbFA)	C ₂₀ H ₁₂	Particulaire	CIRC 2B US-EPA	Fonderie	UNECE Borneff
Benzo[j]fluoranthène (BjFA)	C ₂₀ H ₁₂	Particulaire	CIRC 2B US-EPA		UNECE /Borneff
Benzo[k]fluoranthène (BkFA)	C ₂₀ H ₁₂	Particulaire	CIRC 2B US-EPA		UNECE /Borneff
Benzo[a]pyrène (BaP)	C ₂₀ H ₁₂	Particulaire	CIRC 2A US-EPA	Essence / fonderie	UNECE /Borneff
Indeno[123,cd]pyrène (IP)	C ₂₂ H ₁₂	Particulaire	CIRC 2B US-EPA	Essence	UNECE /Borneff
Dibenzo[a,h]anthracène (DBahA)	C ₂₂ H ₁₄	Particulaire	CIRC 2A US-EPA		
Benzo[ghi]pérylène (BghiP)	C ₂₂ H ₁₂	Particulaire	US-EPA	Essence	Borneff

- (1) Toxicité: CIRC 2A : cancérogène probable pour l'homme ; CIRC 2B : cancérogène possible pour l'homme ;
- (2) *Identification des sources d'HAP particulaires dans l'atmosphère urbaine. Masclat P, Nikolau K. et Mouvier G. in Physico-Chemical behaviour of atmospheric pollutant. Proceeding of the third European Symposium held in Varese, Italie 10-12 april 1984,616-626*
- (3) *UNECE :HAP utilisés en tant qu'indicateurs d'inventaires d'émission dans le cadre du Protocole sur les polluants organiques persistants (POPs) de l'UNECE (United Nations Economic Commission for Europe).*

Borneff : HAP utilisés dans des compilations d'inventaires d'émission

Les HAP les plus légers (Naphtalène, Acénaphthylène, Acénaphthène, Fluorène) n'ont pas été pris en compte dans le programme pilote, en raison de leur faible toxicité et des difficultés d'analyse mises en évidence (très faibles taux de récupération). Cependant, suite à la campagne Genotox'er [*Distribution de l'exposition de la population urbaine à des polluants particulaires génotoxiques et évaluation du risque cancérogène – AFSSE*], certains de ces composés ont été analysés par CARSO pour ASCOPARG et COPARLY. En plus du benzo(a)pyrène, la proposition de directive européenne impose la surveillance des composés suivants : benzo(a)anthracène, benzo(b)fluoranthène, benzo(j)fluoranthène, benzo(k)fluoranthène, indeno(1,2,3-cd)pyrène, dibenzo(a,h)anthracène et fluoranthène. A l'exception du benzo(j)fluoranthène, tous ces composés avaient été retenus initialement par le programme pilote.

Le tableau suivant donne des valeurs typiques de HAP enregistrées en Europe ces dernières années. Il s'agit d'une compilation de données bibliographiques.

Concentrations moyennes annuelles typiques en ng.m⁻³ [Source : Ambient Air Pollution by PAH
– Position Paper – July 27th 2001 – EC]

HAP	Type de site				
	Fond éloigné	Rural	Urbain	Trafic	Industriel
Acénaphthène (AC)	0.01	0.3 - 2.6			98
Acénaphthylène (ACL)	0.01				
Anthracène (AN)	Non détecté	0.04 - 15		0.2 – 0.6	1.1
Benzo[a]anthracène (BaA)	< 0.02	0.01 – 0.9	0.2 – 1.3	0.6 – 4.2	0.37 – 42
Benzo[a]pyrène (BaP)	0.02	0.02 – 1.6	0.4 – 2	0.7 – 3.1	0.5 – 39
Benzo[e]pyrène (BeP)	0.01 – 0.02	0.18 – 1.1	0.2 – 2.1	0.9 – 3.7	0.65 – 80
Benzo[b]fluranthène (BbFA)	< 0.01	0.04 – 0.6			0.3 – 34
Benzo[ghi]pérylène (BghiP)	0.01	0.15 – 1.0	0.5 – 2.8	1 – 4.7	0.7 – 52
Benzo[j]fluranthène (BjFA)					
Benzo[k]fluranthène (BkFA)		0.04 – 0.32	0.2 – 1		0.3 – 17
Chrysène (CHR)		0.02 – 4.4	0.3 – 2.2		0.3 – 37
Coronène (COR)	< 0.01	0.02 – 0.5	0.1 – 0.6	0.4 – 2.5	0.26 – 5.2
Dibenzo[a,h]anthracène (DBahA)	Non détecté	0.02 – 1.1	0.06 – 0.3	0.1 – 0.4	0.05 – 7.5
Fluoranthène (FA)	0.14	0.04 – 7.4			42
Fluorène (FL)	0.2 – 0.4	0.3 - 46		9.9 – 16.7	
Indeno[123,cd]pyrène (IP)	0.02 – 0.04	0.04 – 0.21	0.3 – 2.1	1.3 – 2.6	0.4 – 37
Phénanthrène (PHE)	0.1 – 0.3	0.42 - 150			16
Pyrène (PY)	0.08	0.1 – 6.1	0.24 – 1.2	9.2 - 15	75

N.B. : Ce tableau a le mérite de donner une vision synthétique et assez exhaustive des concentrations annuelles de HAP. **Les auteurs du Position Paper précisent cependant qu'elles sont issues de différentes techniques de mesures et sont souvent de qualité inconnue.** Les données proviennent de réponses à un questionnaire et de la littérature ; les travaux qui ont permis de les obtenir sont tous postérieurs à 1990. A notre connaissance, il n'existe pas d'actualisation de ces données typiques pour la période 2001-2004, notamment dans les publications du programme pilote français.

c) Prélèvement [Préconisations INERIS : HAP – LCSQA – Convention 18/99 – Décembre 2000 – Rapport INERIS DRC/AIRE-00-23448-ELe-n°570]

Dans le cadre du programme pilote, il a été décidé d'effectuer des prélèvements de 24 heures tous les 6 jours de façon à couvrir tous les jours de la semaine. Le « Position Paper » évoque cette fréquence pour des mesures indicatives entre le seuil LAT (seuil d'évaluation minimal) et UAT (seuil d'évaluation maximal). Au-dessus de UAT, une fréquence d'un prélèvement de 24 heures tous les 3 jours est recommandée. Dans la proposition de directive, la période minimale recommandée pour les mesures fixes est de 33% (soit un jour sur 3), et 14% (un jour sur 6) pour les mesures indicatives.

Suite aux différents essais de l'INERIS (cf. notamment [HAP – LCSQA – Convention 18/99 – Décembre 2000 – Rapport INERIS DRC/AIRE-00-23448-ELe-n°570]), le choix d'un préleveur à moyen ou haut débit ($> 15 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$) a été recommandé, à un débit de $30 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$. La fréquence d'un prélèvement tous les 6 jours permet de couvrir tous les jours de la semaine.

Les 13 composés se trouvant en phase gazeuse et particulaire, un prélèvement des deux phases a été nécessaire. Les filtres ont été fournis par l'INERIS pour l'ensemble des AASQA, pour toute la durée du programme pilote (jusqu'à fin 2003), afin de garantir l'homogénéité des lots.

Filtres et mousses utilisées par les participants du programme pilote	
Filtres	Mousses
Microfibres de quartz QMA Marque : PHYMEP	Polyuréthane PUF Marque : ECOMESURE

Filtres et mousses sont conservées au dessiccateur avant usage. Le prélèvement effectué, filtres et mousses sont stockés au congélateur avant analyse. L'INERIS préconisait un transport des échantillons à une température de -10°C .

d) Analyse

Plusieurs laboratoires avaient été consultés par ASCOPARG et COPARLY dès l'an 2000, afin de déterminer quels seraient les plus aptes à prendre en charge les analyses de HAP, sachant que ces composés sont à l'état de traces et très volatils. Outre la compétence du laboratoire, sa proximité avec le lieu de prélèvement constituait un critère important. **Le laboratoire CARSO (www.carso.fr) a donc été retenu**, à la fois pour sa solide expérience dans l'analyse des polluants à l'état de traces (des HAP en particulier), pour sa relative proximité, et pour des tarifs compétitifs.

Le protocole analytique est fourni par l'INERIS [HAP – LCSQA – Convention 18/99 – Décembre 2000 – Rapport INERIS DRC/AIRE-00-23448-ELe-n°570] et suivi par CARSO, qui a participé aux campagnes d'inter-comparaison menées par l'INERIS.

Le principe est le suivant :

- **Extraction :** Les filtres sont extraits en utilisant l'ASE 200 (Accelerator Solvent Extractor). Cet appareil permet de maintenir le solvant chauffé à l'état liquide (sous pression) pendant toute la durée de l'extraction. Les mousses en polyuréthane, sont extraites au soxhlet. Le solvant utilisé dans les deux cas est le dichlorométhane (qualité pestipur).

- **Evaporation du solvant** : L'extrait est concentré à l'aide d'un appareil ZYMARK avec flux d'azote et avec ajout d'un keeper (éthylène glycol). L'extrait est ensuite repris par 1 à 2 ml d'acétonitrile (qualité RS). Cet extrait est conservé au congélateur à – 20°C environ, avant l'analyse.
- **Analyse** : Les HAP sont analysés par **HPLC** en phase inverse avec une double détection, fluorimétrique et UV. La colonne utilisée est une LC-PAH de chez SUPELCO de 25 cm de longueur, 4.6 mm de diamètre et 5 µm d'épaisseur de phase. Les solvants d'élution sont l'eau et l'acétonitrile. Les paramètres de détection varient de façon à optimiser la résolution des pics et la quantification. Plusieurs changements de longueur d'onde sont ainsi réalisés (jusqu'à 9).

e) Blancs de terrain et de laboratoire

Conformément au protocole de l'INERIS [*HAP – LCSQA – Convention 18/99 – Décembre 2000 – Rapport INERIS DRC/AIRE-00-23448-ELe-n°570*], des blancs de terrain sont effectués à une fréquence mensuelle (soit environ un blanc pour 5 prélèvements). Filtres et mousses suivent le même chemin que les échantillons pour détecter d'éventuelles contaminations lors du transport et du stockage de ceux-ci. De plus, filtres et mousses sont laissées dans leur emballage en aluminium, sans subir de prélèvement actif, pendant toute la durée du prélèvement. Pour les blancs de laboratoire, après conditionnement des filtres et mousses, le laboratoire applique la méthode analytique complète. Si les valeurs enregistrées sont supérieures à 10 ng (jusqu'à 50ng pour le phénanthrène), la valeur trouvée est enlevée aux résultats obtenus.

II) Résultats ASCOPARG

Les résultats présentés ici portent sur la période qui s'étend de **novembre 2001 à mi-juin 2004**.

1) Le site de surveillance ASCOPARG

En l'absence de données très précises en terme d'inventaires d'émissions sur son territoire de compétence et compte tenu du trafic important sur la rocade sud (trafic journalier moyen annuel de 85 000 véhicules/jour au droit du site de surveillance), l'ASCOPARG a proposé le site dénommé « Le Rondeau », décrit ci-après. Le point de prélèvement est situé à moins de 5 mètres de la bordure de la rocade.



Site de surveillance Le Rondeau

Typologie	Adresse	Latitude (DMS)	Longitude (DMS)	Altitude (mètres)
Trafic	Rue Tremblay 38130 ECHIROLLES	45°09'31"	05°42'15"	225

	Autres paramètres mesurés sur le site							Météorologie Vitesse et direction du vent
	PM ₁₀	PM _{2,5}	SO ₂	NO	NO ₂	BTX	Comptage véhicules	
Le Rondeau	oui	oui	oui	oui	oui	oui	Oui (jusqu'en juin 2003)	oui

2) Conservation des échantillons

Filtres et mousses sont conservées au dessiccateur avant usage. Le prélèvement effectué, filtres et mousses sont stockés au congélateur avant analyse. Les échantillons sont transportés dans une glacière qui comporte un groupe frigorifique, selon les préconisations de l'INERIS. A signaler, dans le cas des échantillons ASCOPARG, un temps de transport non négligeable, environ 1h30 au total, si l'on considère le trajet du site jusqu'à ASCOPARG et d'ASCOPARG à CARSO, le laboratoire d'analyse (CARSO) se trouvant sur Lyon. **La température interne de la glacière et du congélateur n'ont pas été systématiquement suivies par ASCOPARG** mais quelques tests ont montré que la température à l'intérieur de la glacière pouvait descendre jusqu'à -10°C, cette température s'avérant toutefois plus difficile à atteindre lors des périodes caniculaires, les véhicules utilisés pour le transport n'étant pas climatisés. Ceci étant, des essais de stabilité des HAP ont été menés par l'INERIS en 2001 [convention 41/2000 – Décembre 2001 – Rapport INERIS DRC/AIRE-01-27586-ELen°780.1]. Pour la totalité des essais effectués, à Verneuil-en-Halatte ou à Montpellier, il n'y a pas de différences significatives entre les échantillons conservés au congélateur dès leur récupération et ceux restés dans le préleveur pendant 48 heures, à des températures ambiantes moyennes de 24 °C environ (températures maximales jusqu'à 46 °C). Dans la mesure où le temps de trajet entre le site de prélèvement et le laboratoire n'excède pas 1h15 minutes, l'influence de la température sur le comportement de l'échantillon est probablement modeste. D'autres essais menés à Paris avaient cependant montré que la conservation de l'échantillon à température ambiante sur plusieurs jours pouvait conduire à une perte de matière. Ainsi, un filtre laissé dans le préleveur durant 8 jours sans protection peut perdre

plus de 70% de sa quantité de HAP. La perte est en général moindre si le même échantillon est emballé dans un papier d'aluminium.

On retiendra donc de ces différents essais qu'il convient :

- de refroidir au maximum l'échantillon, pendant le transport mais surtout après, pour le stockage
- d'emballer l'échantillon d'aluminium pour éviter la dégradation par les UV
- de réduire autant que possible le temps entre la récupération de l'échantillon et son analyse par le laboratoire.

Toutes ces consignes, suivies par ASCOPARG (le choix du laboratoire avait d'ailleurs en partie été dicté par sa proximité) ont pour objectif d'éviter une sous-estimation des concentrations par perte de matière.

D'autres essais devraient être menés par le LCSQA sur la stabilité des HAP. Courant 2004, le rapport final concernant le programme pilote HAP sera adressé aux AASQA. Il comprendra la finalisation du traitement des données mais également des recommandations pour le prélèvement et l'analyse des HAP, au regard de l'expérience acquise ces quatre dernières années. ASCOPARG suivra bien évidemment ces préconisations techniques.

3) Blancs terrains

Les blancs terrains montrent une **contamination quasiment nulle pour les composés particuliers**, recueillis sur les filtres. En revanche, une contamination non négligeable est constatée pour les composés gazeux, en particulier pour le Naphtalène, le 2-méthylnaphtalène et l'Acénaphène : en moyenne, la quantité de composé recueillie par les blancs représente 10 à 20% de la quantité prélevée pour ces composés, mais moins de 1% pour les autres. Les valeurs enregistrées sont assez constantes. Seuls trois blancs ont connu des valeurs plus élevées que la moyenne : le 04/02/2002 (environ 3 fois plus de composés dans la mousse que la moyenne, avec en particulier un excès de benzo(a)anthracène), le 05/10/2002 et le 16/01/2004 (excès de naphtalène). Le transport ne semble pas entraîner de contamination, au vue des valeurs similaires mesurées sur le site grenoblois (transport plus long jusqu'au laboratoire) et le site lyonnais investigué par COPARLY.

4) Principaux résultats

a) Rapport phase gazeuse/phase particulaire

Jusqu'à 4 cycles benzéniques, les composés sont majoritairement en phase gazeuse¹. A partir de 4 cycles, la phase particulaire domine largement.

¹ Les phases gazeuse et particulaire ont été analysées séparément jusqu'à fin 2002, afin de vérifier la répartition des deux phases pour les différents composés sur une période significative. A partir de 2003, les prélèvements sont toujours effectués à l'aide de filtres et de mousses, pour récolter l'intégralité des HAP, mais les phases gazeuse et particulaire sont analysées ensemble.

HAP	Rapport moyen des concentrations enregistrées en phase gazeuse et particulaire	
	Le Rondeau (64échantillons, du 09/11/2001 au 16/12/2002)	
Naphtalène	180,34	
2-méthylnaphtalène	89,30	
Acénaphène	34,02	
Fluorène	337,62	
Phénantrène	41,43	
Anthracène	50,51	
Fluoranthène	13,04	
Pyrène	8,17	
2-méthylfluoranthène	2,10	
Benzo(a)anthracène	2,61	
Chrysène	0,11	
Benzo(b)fluoranthène	0,04	
Benzo(k)fluoranthène	0,06	
Benzo(a)pyrène	0,02	
Dibenzo(a,h)anthracène	0,32	
Benzo(g,h,i)pérylène	0,01	
indeno(1,2,3,cd)pyrène	0,04	

A la rédaction de ce document, nous ne disposons que de peu d'éléments comparatifs sur la répartition gaz/particules. Le futur rapport de l'INERIS concernant le programme pilote HAP, qui paraîtra courant 2004, devrait traiter ce sujet [convention 115/2003 – Décembre 2003 – INERIS DRC/ARIRE – 03 – 45568 (I) – Ele – n° 876v2].

b) Concentrations enregistrées

Les tableaux suivants résument les concentrations obtenues sur le trafic du Rondeau, pour trois périodes, à raison d'un prélèvement d'une durée de 24 heures tous les 6 jours :

- du 02/01/2002 au 28/12/2002, pour l'année 2002
- du 03/01/2003 au 29/12/2003, pour l'année 2003
- du 16/01/2004 au 14/06/2004, pour l'année 2004.

Les valeurs ne sont pas corrigées avec les blancs. Pour la plupart des HAP, les valeurs sont cohérentes avec celles de la bibliographie (cf. tableaux ci-après). Les principales disparités concernent les composés légers, comme l'anthracène ou le fluorène.

	Année 2002 - Concentrations en ng.m ⁻³				
	Le Rondeau (Grenoble) 57 échantillons			Moyenne annuelle biblio.	Moyenne annuelle biblio.
	Moyenne	Max.	Ecart- type	Site trafic	Site urbain
Naphtalène	1,30	11,18	1,52		
2-méthylnaphtalène	0,65	4,31	0,74		
Acénaphène	0,17	1,26	0,25		

Fluorène	1,42	7,59	1,42	9,9 – 16,7	
Phénanthrène	13,51	58,14	12,45		
Anthracène	1,72	9,52	1,84	0,2 – 0,6	
Fluoranthène	4,31	17,35	3,56		
Pyrène	4,70	18,27	3,53	9,2 - 15	0,24 – 1,2
2-méthylfluoranthène	0,01	0,02	0,00		
Benzo(a)anthracène	0,76	5,69	1,12	0,6 – 4,2	0,2 – 1,3
Chrysène	1,18	8,94	1,67		0,3 – 2,2
Benzo(b)fluoranthène	0,77	5,57	1,06		
Benzo(k)fluoranthène	0,39	2,63	0,55		0,2 – 1
Benzo(a)pyrène	0,77	5,18	1,08	0,7 – 3,1	0,4 – 2
Dibenzo(a,h)anthracène	0,11	0,68	0,14	0,1 – 0,4	0,06 – 0,3
Benzo(g,h,i)pérylène	0,95	5,09	1,01	1 – 4,7	0,5 – 2,8
indeno(1,2,3,cd)pyrène	0,54	4,67	0,77	1,3 – 2,6	0,3 – 2,1

Année 2003 - Concentrations en ng.m⁻³					
	Le Rondeau (Grenoble) 61 échantillons			Moyenne annuelle biblio.	Moyenne annuelle biblio.
	Moyenne	Max.	Ecart- type	Site trafic	Site urbain
Naphtalène	1,18	8,57	1,33		
2-méthylnaphtalène	0,65	3,90	0,71		
Acénaphène	0,23	2,32	0,32		
Fluorène	1,74	10,02	1,93	9,9 – 16,7	
Phénanthrène	14,78	62,01	14,87		
Anthracène	1,83	8,69	2,10	0,2 – 0,6	
Fluoranthène	7,05	44,34	7,59		
Pyrène	5,73	23,13	4,86	9,2 - 15	0,24 – 1,2
2-méthylfluoranthène	0,00	0,01	0,00		
Benzo(a)anthracène	1,42	8,94	2,08	0,6 – 4,2	0,2 – 1,3
Chrysène	1,83	10,25	2,45		0,3 – 2,2
Benzo(e)pyrène	1,21	4,94	1,36	0,9 – 3,7	0,2 – 2,1
Benzo(j)fluoranthène	0,53	1,79	0,64		
Benzo(b)fluoranthène	1,62	9,29	2,09		
Benzo(k)fluoranthène	0,66	3,54	0,87		0,2 – 1
Benzo(a)pyrène	1,37	8,17	1,92	0,7 – 3,1	0,4 – 2
Dibenzo(a,h)anthracène	0,29	3,09	0,52	0,1 – 0,4	0,06 – 0,3
Benzo(g,h,i)pérylène	1,53	7,84	1,81	1 – 4,7	0,5 – 2,8
indeno(1,2,3,cd)pyrène	0,90	4,88	1,09	1,3 – 2,6	0,3 – 2,1

Année 2004 - Concentrations en ng.m⁻³

	Le Rondeau (Grenoble) 27 échantillons			Moyenne annuelle biblio.	Moyenne annuelle biblio.
	Moyenne	Max.	Ecart- type	Site trafic	Site urbain
Naphtalène	1,15	2,74	0,76		
2-méthylnaphtalène	0,62	1,68	0,45		
Acénaphène	0,20	0,77	0,18		
Fluorène	1,73	5,98	1,46	9,9 – 16,7	
Phénanthrène	15,35	42,54	11,77		
Anthracène	1,74	5,04	1,34	0,2 – 0,6	
Fluoranthène	6,28	14,69	3,87		
Pyrène	5,94	13,14	2,99	9,2 - 15	0,24 – 1,2
2-méthylfluoranthène	0,01	0,08	0,01		
Benzo(a)anthracène	1,17	4,35	1,22	0,6 – 4,2	0,2 – 1,3
Chrysène	1,53	5,04	1,34		0,3 – 2,2
Benzo(e)pyrène	1,01	3,42	0,96		0,2 – 2,1
Benzo(j)fluoranthène	0,00	0,00	0,00		
Benzo(b)fluoranthène	1,47	5,43	1,44		
Benzo(k)fluoranthène	0,56	2,09	0,57		0,2 – 1
Benzo(a)pyrène	1,14	4,02	1,13	0,7 – 3,1	0,4 – 2
Dibenzo(a,h)anthracène	0,00	0,00	0,00	0,1 – 0,4	0,06 – 0,3
Benzo(g,h,i)pérylène	1,54	4,63	1,20	1 – 4,7	0,5 – 2,8
indeno(1,2,3,cd)pyrène	0,90	3,07	0,83	1,3 – 2,6	0,3 – 2,1

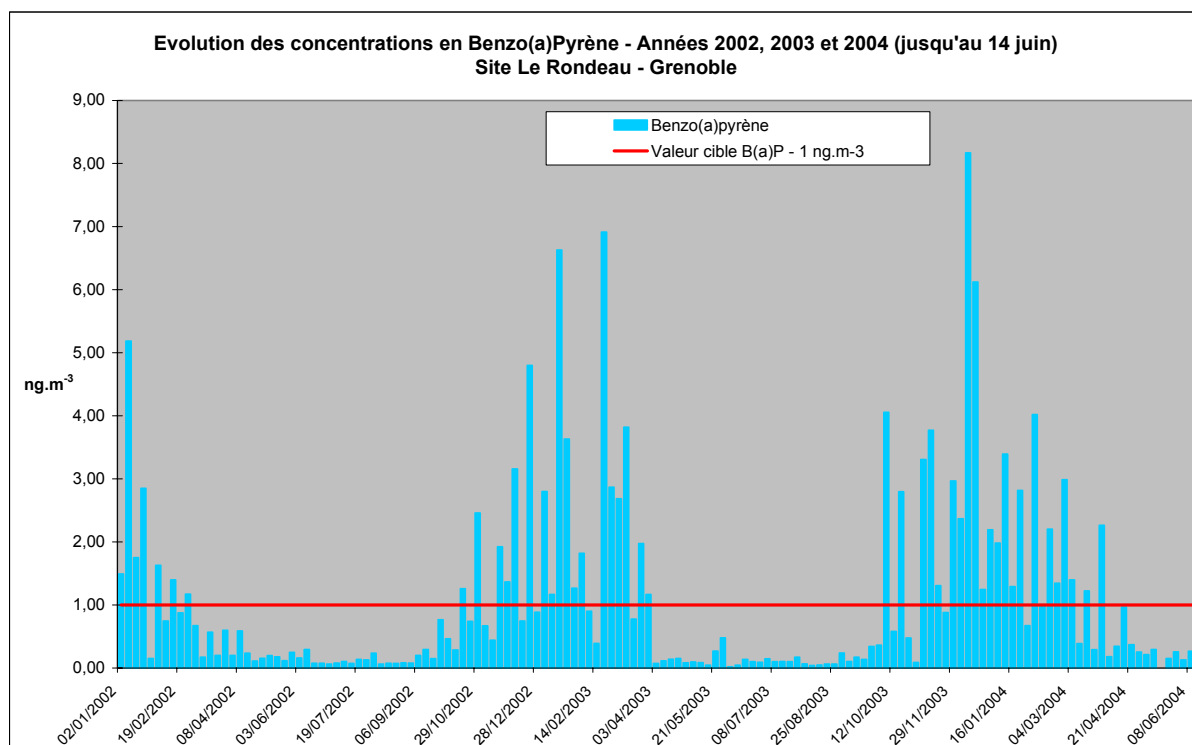
Rappel : La future valeur cible européenne pourrait être **1 ng.m⁻³** en moyenne annuelle. Les résultats mettent en évidence un risque de dépassement de la future valeur cible pour le B(a)P pour le site trafic investigué sur Grenoble.

Moyenne annuelle B(a)P (en ng.m ⁻³)	
Agglomération grenobloise (Le Rondeau – Site trafic)	
2002	0,77
2003	1,37

Sur 2004, le faible échantillon (6 mois de données) ne permet pas de comparaison avec la future réglementation.

c) *Evolution*

Le graphique suivant met en évidence la forte composante hivernale des HAP.



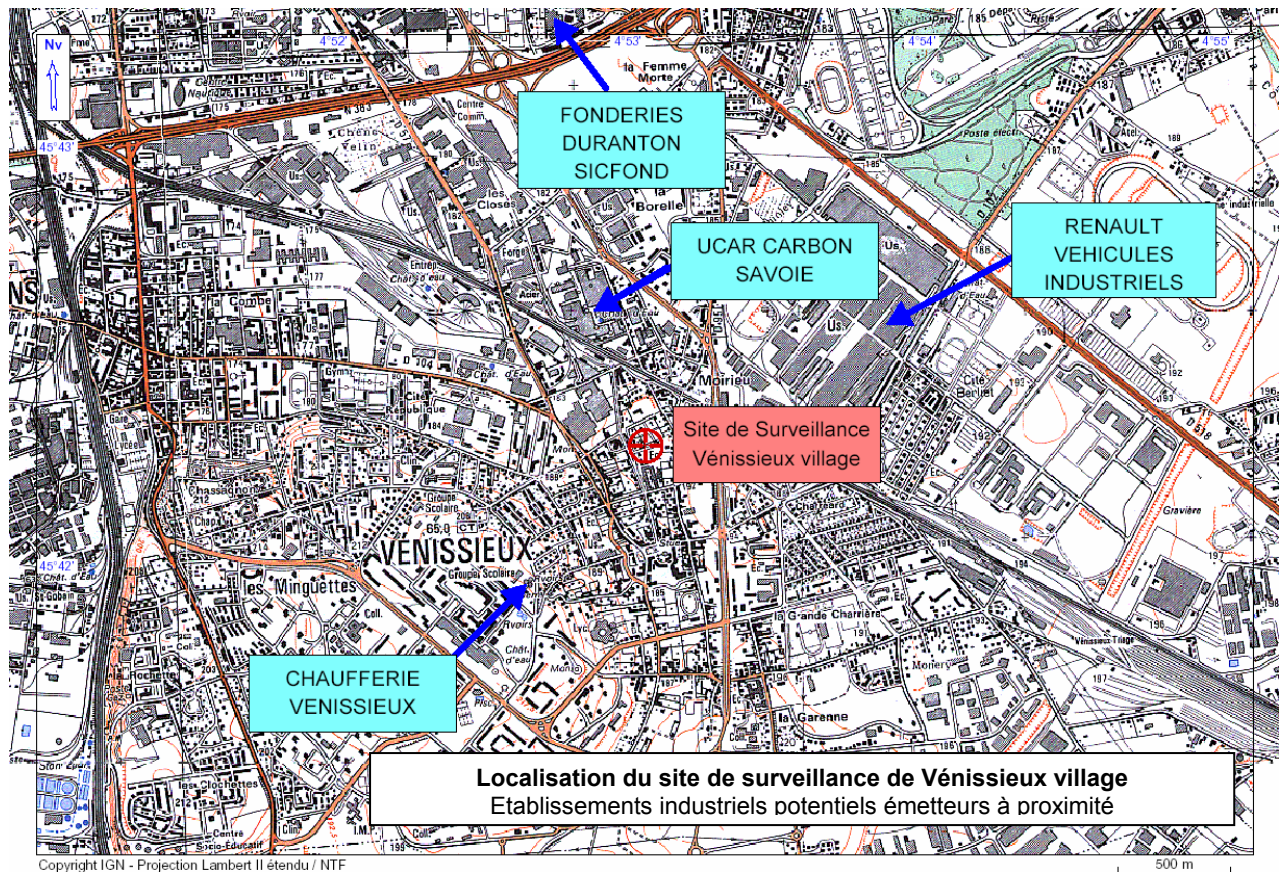
II) Résultats COPARLY

Les résultats présentés ici portent sur la période qui s'étend de **décembre 2001 à mi-juin 2004**.

1) Les sites de surveillance COPARLY

La convention signée entre l'ADEME et COPARLY dans le cadre du programme pilote prévoyait l'équipement de deux sites, respectivement caractéristiques d'une exposition urbaine liée au trafic et d'une exposition due pour partie à des retombées industrielles. Le second site proposé par COPARLY, en milieu industriel, n'a pu être instrumenté au démarrage du programme pilote, principalement pour la raison évoquée ci-après. Parmi les sites fixes susceptibles d'accueillir le préleveur, celui envisagé sur la commune de Vénissieux ne répondait pas aux critères nationaux d'implantation et sa localisation n'était pas optimale au vu de l'objectif de surveillance d'installations industrielles émettrices de HAP. Dans le cadre du plan de restructuration du réseau COPARLY, le déplacement du site de Vénissieux a été programmé en 2002. Ce plan est ambitieux puisque presque la totalité des sites du réseau tel qu'il existait en 2000 sont concernés par un réaménagement ou un déplacement. Au premier semestre 2004, près de 20 sites ont déjà été fermés, des aménagements sont terminés ou en cours sur une dizaine de sites et trois nouveaux sites ont été installés, dont celui dit de **Vénissieux village, qui a notamment pour vocation le**

suivi des HAP. La plus grande attention a été portée à l'implantation de ce site, afin d'appréhender les retombées d'installations industrielles du secteur (fabrication de cathodes et fonderies). Ce site a été qualifié d'industriel en particulier au regard de l'influence qu'il est susceptible de subir de l'établissement UCAR CARBON SAVOIE (fabrications de cathodes, cf. carte ci-après), notamment en terme de retombées de HAP et métaux lourds. D'autres établissements industriels sont cependant également susceptibles d'influencer les mesures du site, en particulier des fonderies. Conformément au document Classification et critères d'implantation des stations de surveillance de la qualité de l'air [Coordination technique de la surveillance de la qualité de l'air – ADEME], le site de Vénissieux a été défini comme étant industriel car son objectif est de fournir des informations sur les concentrations représentatives du niveau maximal auquel la population riveraine de sources fixes est susceptible d'être exposée, pour tout type de commune dont la densité de population est inférieure à 4000 habitants/km² (3654 à Vénissieux), pour des polluants tels que SO₂, COV, **HAP**, métaux lourds, etc. Par ailleurs, le document évoqué ci-dessus précise qu'il est possible de juger a posteriori du caractère industriel du site retenu.





Site de surveillance Vénissieux village

Typologie	Adresse	Latitude (DMS)	Longitude (DMS)	Altitude (mètres)
Industriel	39, bd Laurent Gérin 69200 Vénissieux	45°42'14"	04°53'01"	160



Site de surveillance Etats Unis

Typologie	Adresse	Latitude (DMS)	Longitude (DMS)	Altitude (mètres)
Trafic	37, rue Audibert et Lavirotte 69008 LYON	45°44'18"	04°51'37"	172

Autres paramètres mesurés sur le site

	PM10	PM2.5	SO2	NO	NO2	BTX	Comptage véhicules	Météorologie Vitesse et direction du vent
Vénissieux	non	non	oui	non	non	non	non	non
Etats Unis	oui	non	oui	non	non	non	non	non

2) Conservation des échantillons

La problématique générale est équivalente à celle évoquée pour ASCOPARG (cf. II.2), avec cependant une différence notable, un temps de transport nettement inférieur (moins de 15 minutes). COPARLY a cependant fait l'acquisition, courant 2004, d'une glacière équipée d'un groupe frigorifique (glacière « traditionnelle » de 2001 à 2003).

3) Blancs terrains

Les blancs terrains montrent une **contamination quasiment nulle pour les composés particulaires**, recueillis sur les filtres. En revanche, une contamination non négligeable est constatée pour les composés gazeux, en particulier pour le Naphtalène,

le 2-méthylnaphtalène et l'Acénaphène : en moyenne, la quantité de composé recueillie par les blancs représente 10 à 20% de la quantité prélevée pour ces composés, mais moins de 1% pour les autres. Les valeurs enregistrées sont assez constantes. Seuls trois blancs ont connu des valeurs plus élevées que la moyenne, le 26/01/2002 pour le site Etats-Unis (4 fois la moyenne pour le Naphtalène), le 25/07/2002 (9 fois plus de Naphtalène sur la mousse sur le site Etats-Unis) et enfin le 20/07/2003 (3 fois la moyenne pour le Naphtalène sur le site Etats-Unis). Le transport ne semble pas entraîner de contamination, au vue des valeurs similaires mesurées sur le site grenoblois par ASCOPARG (transport plus long jusqu'au laboratoire) et le site lyonnais.

4) Principaux résultats

a) Rapport phase gazeuse/phase particulaire

Jusqu'à 4 cycles benzéniques, les composés sont majoritairement en phase gazeuse². A partir de 4 cycles, la phase particulaire domine largement. Des données comparatives avec d'autres sites français devraient être disponibles en 2004 (publication de l'INERIS à venir).

HAP	Rapport moyen des concentrations enregistrées en phase gazeuse et particulaire
	Etats-Unis (50 échantillons, du 27/12/2001 au 16/12/2002)
Naphtalène	333,71
2-méthylnaphtalène	115,12
Acénaphène	64,53
Fluorène	449,76
Phénanthrène	71,39
Anthracène	52,18
Fluoranthène	32,13
Pyrène	23,05
2-méthylfluoranthène	1,52
Benzo(a)anthracène	2,54
Chrysène	0,97
Benzo(b)fluoranthène	5,00
Benzo(k)fluoranthène	0,08
Benzo(a)pyrène	0,05
Dibenzo(a,h)anthracène	0,18
Benzo(g,h,i)pérylène	0,04
indeno(1,2,3,cd)pyrène	0,05

² Les phases gazeuse et particulaire ont été analysées séparément jusqu'à fin 2002, afin de vérifier la répartition des deux phases pour les différents composés sur une période significative. A partir de 2003, les prélèvements sont toujours effectués à l'aide de filtres et de mousses, pour récolter l'intégralité des HAP, mais les phases gazeuse et particulaire sont analysées ensemble.

b) Concentrations enregistrées

Les tableaux suivants résument les concentrations obtenues sur les deux sites Etats-Unis (trafic) et Vénissieux (industriel), pour trois périodes, à raison d'un prélèvement d'une durée de 24 heures tous les 6 jours :

- du 02/01/2002 au 28/12/2002, pour l'année 2002
- du 03/01/2003 au 29/12/2003, pour l'année 2003
- du 04/01/2004 au 20/06/2004, pour l'année 2004. La moyenne établie sur 2004 n'est qu'une estimation, 6 mois de données seulement étant disponibles sur le site trafic Etats-Unis. Concernant le site de Vénissieux, le premier prélèvement a été effectué le 21/04/2004, et, au jour de la rédaction de ce rapport, 10 échantillons ont pu être analysés. Sur ces premiers échantillons, on remarque surtout des concentrations nettement plus intenses à Vénissieux pour le phénanthrène, le fluoranthène et le pyrène. Si elles se confirment, il conviendra à l'avenir de déterminer précisément l'origine de ces valeurs.

Les valeurs ne sont pas corrigées avec les blancs.

Pour la plupart des HAP, les valeurs sont cohérentes avec celles de la bibliographie (cf. tableaux ci-dessous). Les principales disparités concernent les composés légers, comme l'anthracène ou le fluorène.

	Année 2002 - Concentrations en ng.m⁻³				
	Etats-Unis (Lyon) 51 échantillons			Moyenne annuelle biblio.	Moyenne annuelle biblio.
	Moyenne	Max.	Ecart-type	Site trafic	Site urbain
Naphtalène	1,49	10,90	2,19		
2-méthylnaphtalène	0,73	4,91	1,05		
Acénaphène	0,26	1,47	0,31		
Fluorène	1,88	11,03	2,41	9,9 – 16,7	
Phénanthrène	18,02	85,39	17,77		
Anthracène	1,82	10,33	2,12	0,2 – 0,6	
Fluoranthène	11,45	48,05	11,86		
Pyrène	8,32	34,48	7,72	9,2 - 15	0,24 – 1,2
2-méthylfluoranthène	0,01	0,09	0,01		
Benzo(a)anthracène	1,06	5,40	1,23	0,6 – 4,2	0,2 – 1,3
Chrysène	2,11	10,49	2,39		0,3 – 2,2
Benzo(b)fluoranthène	1,33	5,20	1,40		
Benzo(k)fluoranthène	0,57	2,03	0,57		0,2 – 1
Benzo(a)pyrène	0,83	3,76	0,97	0,7 – 3,1	0,4 – 2
Dibenzo(a,h)anthracène	0,12	0,57	0,14	0,1 – 0,4	0,06 – 0,3
Benzo(g,h,i)pérylène	1,12	5,92	1,16	1 – 4,7	0,5 – 2,8
indeno(1,2,3,cd)pyrène	0,66	2,65	0,66	1,3 – 2,6	0,3 – 2,1

Année 2003 - Concentrations en ng.m⁻³					
	Etats-Unis (Lyon) 59 échantillons			Moyenne annuelle biblio.	Moyenne annuelle biblio.
	Moyenne	Max.	Ecart-type	Site trafic	Site urbain
Naphtalène	1,41	10,57	1,71		
2-méthylnaphtalène	0,76	5,07	0,98		
Acénaphène	0,36	2,05	0,45		
Fluorène	2,02	11,37	2,27	9,9 – 16,7	
Phénantrène	21,63	97,77	23,02		
Anthracène	2,01	8,46	2,39	0,2 – 0,6	
Fluoranthène	12,63	58,50	12,72		
Pyrène	9,58	40,76	8,85	9,2 - 15	0,24 – 1,2
2-méthylfluoranthène	0,00	0,01	0,00		
Benzo(a)anthracène	1,42	8,52	1,93	0,6 – 4,2	0,2 – 1,3
Chrysène	2,90	19,08	3,76		0,3 – 2,2
Benzo(e)pyrène	1,87	7,78	2,18		
Benzo(j)fluoranthène	0,82	3,25	0,99		
Benzo(b)fluoranthène	2,35	15,95	3,10		
Benzo(k)fluoranthène	0,82	5,31	1,09		0,2 – 1
Benzo(a)pyrène	1,07	5,80	1,36	0,7 – 3,1	0,4 – 2
Dibenzo(a,h)anthracène	0,34	3,18	0,55	0,1 – 0,4	0,06 – 0,3
Benzo(g,h,i)pérylène	1,69	7,89	1,81	1 – 4,7	0,5 – 2,8
indeno(1,2,3,cd)pyrène	0,85	4,39	0,99	1,3 – 2,6	0,3 – 2,1

Année 2004 - Concentrations en ng.m⁻³									
	Etats-Unis (Lyon) 29 échantillons (janvier à mi-juin 2004)			Vénissieux 10 échantillons (mi-avril à mi-juin 2004)			Moyenne annuelle biblio.		
	Moyenne	Max.	Ecart-type	Moyenne	Max.	Ecart-type	Site trafic	Site urbain	Site industriel
Naphtalène	1,28	4,90	1,20	0,34	0,78	0,22			
2-méthylnaphtalène	0,71	3,39	0,69	0,27	0,64	0,18			
Acénaphène	0,38	1,84	0,37	0,33	1,86	0,55			
Fluorène	2,02	9,77	1,91	0,56	1,36	0,35	9,9 – 16,7		
Phénantrène	18,65	64,14	18,21	27,50	109,08	41,42			16
Anthracène	1,47	9,39	1,97	1,48	6,12	2,17	0,2 – 0,6		1,1
Fluoranthène	12,37	63,11	13,36	54,47	168,31	58,68			42

Pyrène	8,97	41,02	8,83	34,82	112,59	38,53	9,2 - 15	0,24 – 1,2	75
2-méthylfluoranthène	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00			
Benzo(a)anthracène	0,98	5,56	1,29	1,98	8,04	2,50	0,6 – 4,2	0,2 – 1,3	0,37 - 42
Chrysène	2,26	10,49	2,60	8,56	26,57	9,16		0,3 – 2,2	0,3 - 37
Benzo(e)pyrène	1,34	5,75	1,55	4,30	11,53	4,63	0,2 – 2,1	0,9 – 3,7	0,65 - 80
Benzo(j)fluoranthène	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00			
Benzo(b)fluoranthène	1,93	8,46	2,31	6,82	18,49	7,51			0,3 - 34
Benzo(k)fluoranthène	0,59	2,70	0,65	1,53	4,51	1,61		0,2 – 1	0,3 - 17
Benzo(a)pyrène	0,83	5,45	1,11	0,89	2,47	0,88	0,7 – 3,1	0,4 – 2	0,5 - 39
Dibenzo(a,h)anthracène	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,1 – 0,4	0,06 – 0,3	0,05 – 7,5
Benzo(g,h,i)pérylène	1,41	6,72	1,38	2,46	7,83	2,77	1 – 4,7	0,5 – 2,8	0,7 - 52
indeno(1,2,3,cd)pyrène	0,72	4,31	0,81	0,96	2,66	0,92	1,3 – 2,6	0,3 – 2,1	0,4 - 37

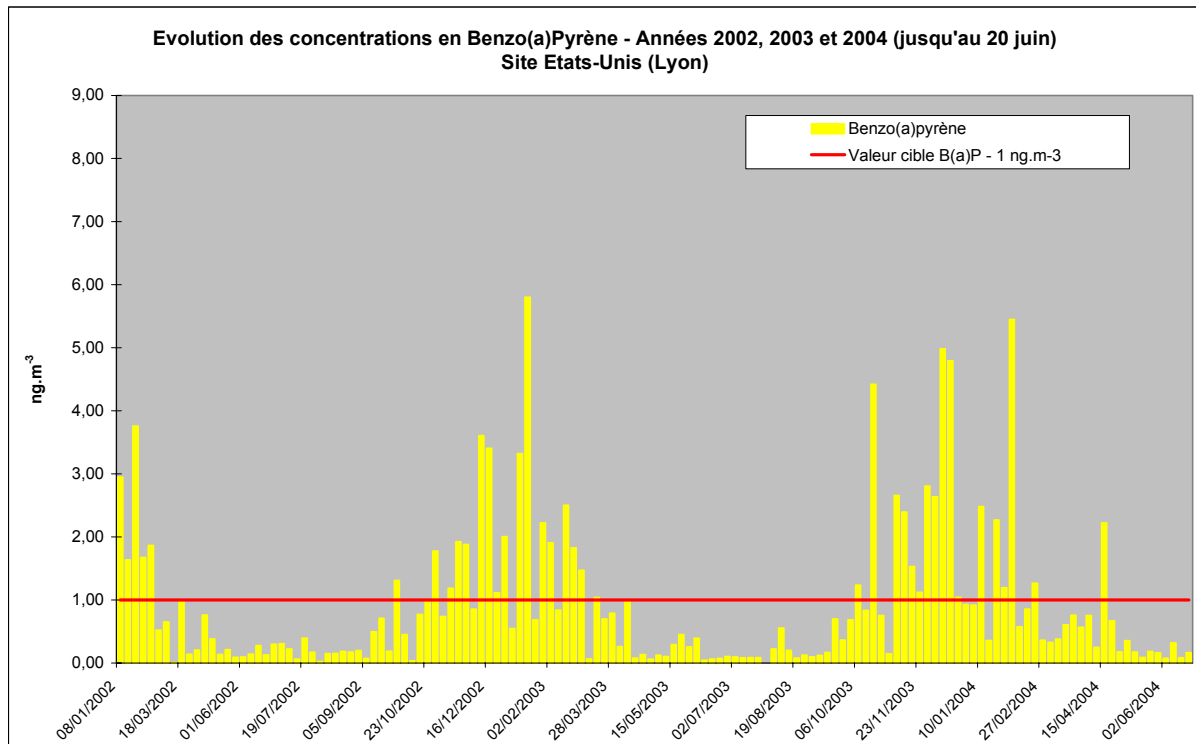
Rappel : La future valeur cible européenne pourrait être **1 ng.m⁻³** en moyenne annuelle. Les résultats mettent en évidence un risque de dépassement de la future valeur cible pour le B(a)P pour le site trafic investigué sur Lyon.

Moyenne annuelle B(a)P (en ng.m⁻³)	
Agglomération lyonnaise (Etats-Unis – Site trafic)	
2002	0,83
2003	1,07

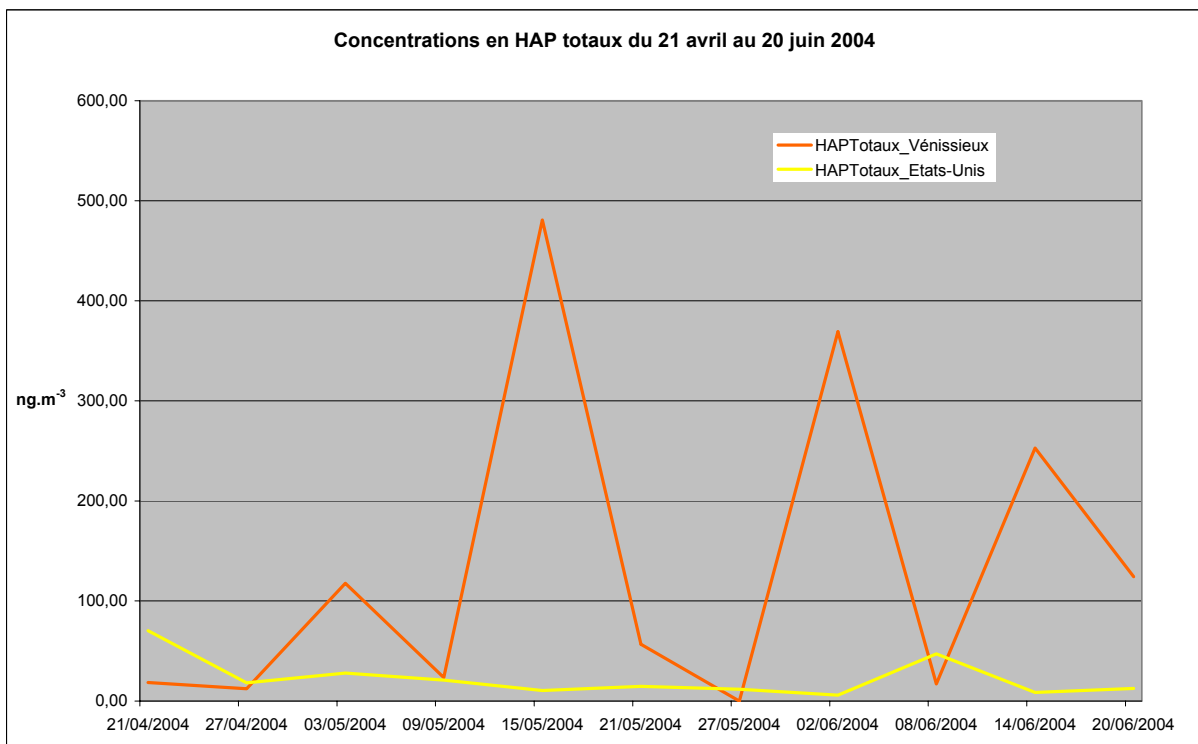
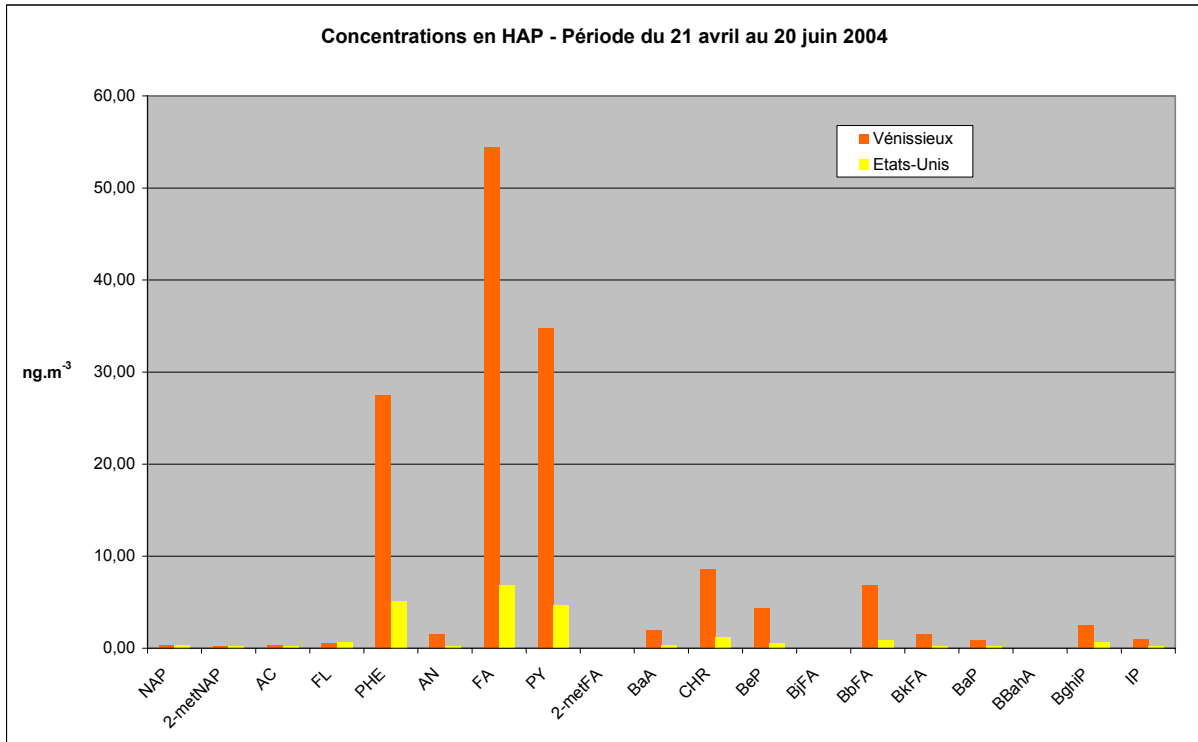
Sur 2004, le faible échantillon (6 mois de données) ne permet pas de comparaison avec la future réglementation.

c) Evolution

La forte composante hivernale des HAP est illustré ci-après.



Les graphiques suivants permettent de constater des différences significatives au niveau des concentrations enregistrées sur les deux sites investigués en région lyonnaise, pour la période du 21 avril au 20 juin 2004. Des concentrations plus élevées ont en particulier été enregistrées sur le site de Vénissieux le 15 mai, ainsi que les 02 et 14 juin. Il s'avère que les conditions de dispersion atmosphérique étaient similaires ces 3 journées, avec un vent de nord établi (3 à 4 mètres par seconde en moyenne) ne faiblissant pas.



III) Difficultés rencontrées

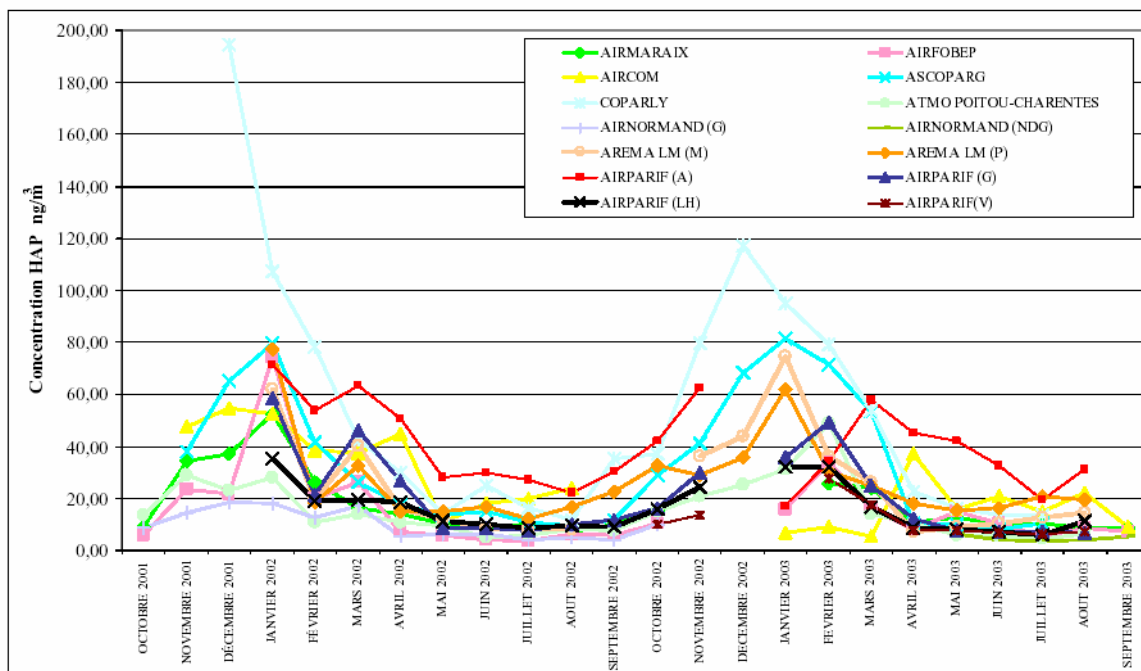
- Dans la première phase de l'étude pilote, le matériel de raccordement du débit du préleveur n'étant pas disponible au démarrage du programme pilote, il a été constaté a posteriori un défaut de réglage de débit pour le préleveur utilisé sur le site trafic de Lyon (Etats-Unis). De ce fait, les concentrations ont été dans un premier temps surestimées (écart de 30% sur le volume). Les volumes et concentrations ont été corrigés par la suite (non-conformité interne N° 284, enregistrée le 5 décembre 2002). Les données sur 2003 et 2004 ne sont pas concernées.
- La température programmée sur le préleveur pour l'expression des volumes en normal mètre-cube était 25°C et non 0°C comme préconisé par l'INERIS. Les données concernées (sur 2001 et 2002) ont été corrigées a posteriori, les données 2003 et 2004 ne sont pas affectées.
- Le préleveur grenoblois a connu un problème électronique qui s'est traduit par l'impossibilité de récupérer les données de volume et température. Pour 3 échantillons, ces données ont donc été estimées à partir des résultats obtenus pour les autres prélèvements, afin de déterminer tout de même une concentration.
- La préconisation initiale de l'INERIS de conserver les échantillons prélevés, y compris pendant le transport, à -10°C, s'est avérée difficile à suivre systématiquement, en dépit de l'achat d'un groupe frigorifique portatif, compte tenu de l'intensité des températures enregistrées dans des véhicules non climatisés (plus de 40°C).

IV) Conclusions et perspectives

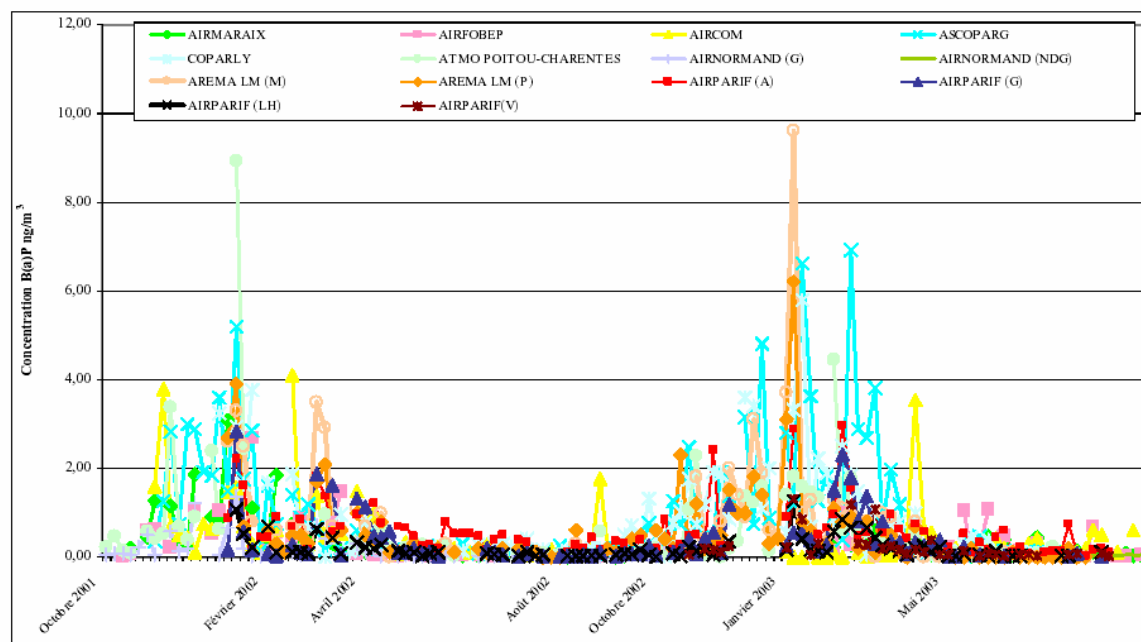
- Les résultats mettent en évidence la cohérence des concentrations enregistrées avec celles de la bibliographie issue du Position Paper. Attention cependant, il faut signaler que les références bibliographiques européennes prises en compte sont entachées d'incertitude, compte tenu d'une certaine hétérogénéité des techniques de mesure utilisées en Europe [*Ambient Air Pollution by PAH – Position Paper – July 27th 2001 – EC*]. L'exploitation complète des données françaises dans le cadre du programme pilote est en cours [*publication du document en 2004 selon rapport convention 115/2003 – Décembre 2003 – INERIS DRC/ARIRE – 03 – 45568 (I) – Ele – n° 876v2*]. A la rédaction de ce document, faute d'avoir eu à disposition l'intégralité des données recueillies dans le cadre du programme pilote, ASCOPARG et COPARLY ne peuvent situer avec précision les sites investigués par rapport aux autres sites ayant fait l'objet de mesures en France. Cependant, à la lecture du rapport de l'INERIS de décembre 2003 [*convention 115/2003 – Décembre 2003 – INERIS DRC/ARIRE – 03 – 45568 (I) – Ele – n° 876v2*], les sites trafics de Lyon et Grenoble apparaissent comme les plus touchés du panel national, notamment en hiver, pour les HAP totaux comme pour le B(a)P. Les graphiques suivants montrent les résultats obtenus pour les HAP totaux et le B(a)P dans le cadre du programme pilote [*convention 115/2003 – Décembre 2003 – INERIS DRC/ARIRE – 03 – 45568 (I) – Ele – n° 876v2*]. Sur ces graphiques, le pic à environ 200 ng.m⁻³ observé à Lyon ne correspond pas à une moyenne mensuelle, puisque c'est la seule mesure disponible pour le mois de décembre 2001.



Graphiques issus du document [convention 115/2003 – Décembre 2003 – INERIS DRC/ARIRE – 03 – 45568 (I) – Ele – n° 876v2]. ASCOPARG, site du Rondeau (cyan) / COPARLY, site Etats-Unis (bleu ciel)



Graphique 2. Concentrations moyennes mensuelles pour les HAP totaux (oct 2001-oct 2003)



Graphique 4. Concentrations du B(a)P sur tous les sites (oct 2001- oct 2003)

- Du fait du mode de formation de ces composés et de l'influence des conditions météorologiques, les plus fortes teneurs en HAP ont été enregistrés en période hivernale. Cette composante hivernale marquée se retrouve d'ailleurs sur les autres sites français d'après les publications du LCSQA [cf. notamment le rapport convention 115/2003 – Décembre 2003 – INERIS DRC/ARIRE – 03 – 45568 (I) – Ele – n° 876v2]
- La valeur cible prévue pour le BaP (1 ng.m⁻³ en moyenne annuelle) a été dépassée au moins une fois sur les deux sites trafics investigués. A l'avenir, le risque de franchir cette valeur pour les sites de cette typologie n'est donc pas exclu. Les données recueillies sur le site industriel sont encore trop partielles pour conclure.
- Compte tenu des émissions potentielles, il serait pertinent d'investiguer d'autres types de sites, en particulier urbains (chaufferies urbaines et incinérateurs), industriels mais également ruraux (chauffage au bois). En 2004/2005, un recensement des principaux émetteurs de HAP sera effectué sur les territoires surveillés par ASCOPARG et COPARLY, en vue de définir une stratégie de surveillance. Des contrôles réguliers dans le voisinage des établissements concernés pourront alors être envisagés. Par ailleurs, un travail bibliographique plus approfondi sera mené pour identifier les sources principales des différents composés suivis, ce qui aidera comprendre l'origine des valeurs enregistrées, notamment pour le B(a)P, futur composé réglementé.