



Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques HAP

Bilan de la surveillance en air ambiant dans les
départements du Rhône et de l'Isère

2002-2006



TABLE DES MATIERES

Introduction	4
1 Etat des connaissances	5
1.1 Définition et propriétés physico-chimiques	5
1.2 Risque sanitaire	6
1.3 Contexte réglementaire	7
1.4 Sources	8
2 La surveillance des Hap dans l'air ambiant	15
2.1 Le « Position PAPER »	15
2.2 Le programme pilote en France	17
2.3 La surveillance des HAP en région Rhône-Alpes	20
3 Résultats des concentrations de HAP dans l'air ambiant des départements de l'Isère et du Rhône	27
3.1 Profils des HAP mesurés en fonction des typologies de sites	27
3.2 Relations entre concentrations de HAP et types d'exposition	29
3.4 Etudes spécifiques	43
Conclusion	62

RESUME

Les Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP) sont présents dans l'atmosphère sous forme particulaire ou gazeuse et sont émis lors de combustion de matière organique (pétrole, charbon, bois). Leur toxicité est très variable d'un composé à l'autre et le Benzo(a)pyrène a été retenu comme traceur du risque cancérigène car il représenterait 40% de la toxicité globale des HAP.

La surveillance des HAP est réglementée par la directive européenne du 15 décembre 2004 (2004/107/CE) qui fixe une liste de composés à suivre obligatoirement ainsi qu'une valeur cible de 1 ng.m⁻³ concernant le benzo(a)pyrène applicable en 2012.

Les émissions de HAP en France sont en baisse sur la période 1990 à 2004 mais elles apparaissent élevées en comparaison des autres pays européens. De plus la région Rhône-Alpes rassemble des émissions importantes. Il convient néanmoins de rester vigilant vis-à-vis de ces informations car les méthodes d'inventaires ne sont pas homogènes entre les différents pays. Les travaux du CITEPA montrent que les émissions nationales de HAP proviennent principalement du secteur résidentiel tertiaire artisanat (et notamment chauffage au bois) et du transport routier.

La présente étude montre qu'il est difficile d'identifier précisément l'apport respectif de chacune des sources d'émissions car peu de polluants sont traceurs d'une seule source et il n'existe pas à ce jour d'inventaire détaillé local des sources d'émission en région Rhône Alpes. Il ressort néanmoins des mesures dans l'air ambiant, qu'au niveau des agglomérations Lyonnaise et grenobloise, les HAP paraissent influencés de façon mineure par la source automobile en comparaison des autres sources d'émissions (industrielles, chauffage, ...).

Les agglomérations grenobloise et lyonnaise apparaissent comme particulièrement sensibles à la pollution par les HAP au vue des différentes études réalisées (Eurobionet, Programme Pilote National) et de la comparaison des moyennes de BaP avec les niveaux parisiens. Depuis le début des mesures en 2002, les sites de typologies trafic (à l'exception du site du Rondeau à Grenoble en 2003) et les niveaux de fond urbain à Grenoble respectent la valeur cible de 1 ng.m⁻³ en benzo(a)pyrène. En revanche cette valeur est systématiquement dépassée sur le site de typologie industriel de Vénissieux Village.

Bien que le lien entre composés mesurés et sources soit difficile à établir, l'analyse spécifique des niveaux de HAP sur le site de Vénissieux Village, réalisée dans le présent rapport, a permis de confirmer l'influence de la source industrielle située au nord de la station. En revanche, concernant l'influence du chauffage au bois en zone rurale de montagne, il est délicat de tirer des conclusions en raison de la faible représentativité de l'échantillon de données disponible.

Des travaux complémentaires seront nécessaires dans les prochaines années pour confirmer les résultats actuels au niveau local comme national. La mise en œuvre du Plan Régional de Surveillance de la Qualité de l'Air de Rhône-Alpes devrait permettre de répondre, en partie, à ce besoin : élaboration d'un inventaire local des émissions, renforcement de la surveillance continue, études spécifiques en proximité industrielle, recherche de traceur des émissions dans le cadre de participation à des programmes de recherche, ...

INTRODUCTION

Les Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP) se forment lors de la combustion de matières organiques (bois, charbon, pétrole) et sont présents dans tous les milieux (air, eau, sols). Les HAP font partie des premiers composés à avoir été identifiés comme cancérogènes et mutagènes, cependant leur toxicité est très variable d'un composé à l'autre.

En Europe, la directive du 27 septembre 1996 a initié une dynamique de surveillance en prévoyant la prise en compte obligatoire de ces polluants dans le cadre de l'évaluation et la gestion de la qualité de l'air ambiant. C'est la 4^{ème} directive fille promulguée le 15 décembre 2004 qui a rendu obligatoire en Europe la surveillance des HAP et métaux lourds dans l'air ambiant.

Ces composés chimiques sont qualifiés « **d'émergents** » car jusqu'à présent peu suivis en routine dans l'air ambiant.

Concernant les sources de HAP, l'inventaire des émissions du CITEPA¹ réalisé en avril 2005 a montré que les émissions nationales de HAP sont globalement en baisse sur la période de 1990 à 2004. Toutefois, les émissions françaises et particulièrement celles de la région Rhône-Alpes sont élevées par rapport aux autres pays européens d'après le bilan sur des émissions européennes².

En Rhône-Alpes, l'étude Eurobionet³ (2000/2001) réalisée à partir de bioindicateurs sur l'agglomération lyonnaise a mis en évidence des concentrations de HAP parmi les plus élevées en comparaison à d'autres villes européennes. Les premières mesures dans l'air réalisées entre 2001 et 2003, dans le Rhône et l'Isère, dans le cadre du programme pilote⁴, ont confirmé des niveaux de HAP élevés par rapport à la moyenne nationale.

L'objectif du présent rapport est de faire le bilan synthétique des connaissances réunies depuis le début de la surveillance des HAP en Rhône-Alpes et plus spécifiquement dans le Rhône et l'Isère. Ce document fait le point notamment sur les émissions, la surveillance au niveau national et régional et l'évolution des concentrations dans l'air ambiant depuis 2002.

Par ailleurs, deux types d'exposition particulière aux HAP ont été abordés : la première concerne l'étude d'une zone exposée à une source connue d'émissions de HAP, d'origine industrielle, sur la commune de Vénissieux (69) ; la seconde une zone rurale de montagne potentiellement influencée par des émissions de HAP liées au chauffage au bois sur la commune de Méaudre dans le parc du Vercors (38).

Les concentrations présentées dans le document sont exprimées dans les « conditions réelles »⁵ conformément à la directive 2004/107/CE. Il convient de noter que cette contrainte a limité les possibilités de comparaison avec les autres données disponibles au niveau national.

¹ **CITEPA** : Centre Interprofessionnel Technique d'Études de la Pollution Atmosphérique

² **Source** : inventaire européen réalisé dans le cadre du Position Paper

³ **Eurobionet** : projet européen d'évaluation de la qualité de l'air à partir des bioindicateurs

⁴ **Programme Pilote** : mise en œuvre par l'INERIS dans le cadre du LCSQA (2001 à 2003)

⁵ **Conditions réelles** : expression des concentrations dans les conditions réelles de température et de pression atmosphérique (vs conditions « normales »)

1 ETAT DES CONNAISSANCES

Les Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP) sont des polluants qui colonisent tous les milieux : air, eau, sol. Le suivi régulier de ces composés dans l'air ambiant est assez récent. En Europe, la directive 96/62/CE du 27 septembre 1996 a initié une dynamique de surveillance, en prévoyant la prise en compte obligatoire de ces polluants dans le cadre de l'évaluation et de la gestion de la qualité de l'air ambiant.

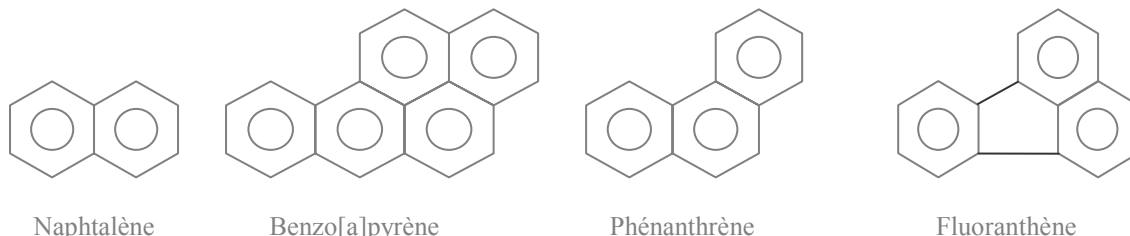
Compte tenu des nombreux travaux réalisés actuellement sur ces polluants, la bibliographie présentée dans ce document ne doit pas être considérée comme exhaustive.

1.1 Définition et propriétés physico-chimiques

Les hydrocarbures aromatiques polycycliques sont des composés organiques constitués de plusieurs noyaux benzéniques faits de carbone et d'hydrogène. Les noyaux benzéniques, essentiellement de 2 à 7 pour les HAP dans l'air ambiant, sont accolés de façon linéaire, angulaire ou en grappe.

Ils sont formés lors de la combustion incomplète ou lors des processus pyrolytiques à haute température mettant en cause des combustibles fossiles, ou plus généralement des composés contenant du carbone et de l'hydrogène.

Ils peuvent se trouver dans l'air ambiant sous forme gazeuse ou particulaire selon leur nature et les conditions environnementales. Plus précisément, cette répartition entre les deux phases est fonction du poids moléculaire du composé, de sa tension de vapeur et de la température ambiante (les composés à deux noyaux benzéniques se trouvent principalement en phase gazeuse, ceux à quatre noyaux en phase particulaire, les HAP à trois noyaux pouvant se trouver en phase gazeuse ou particulaire). *Ainsi, certains HAP ayant une tension de vapeur comprise entre 10^{-4} et 10^{-8} mm de mercure peuvent donc être considérés comme semi-volatils et se trouver dans la phase gazeuse et la phase particulaire de l'atmosphère.* C'est le cas par exemple de l'**anthracène**, du **phénanthrène**, et du **pyrène** (LEOZ-GARZIANDIA, INERIS, Décembre 2000)



Formules chimiques de quelques HAP

<i>HAP lourds (plus de 4 cycles aromatiques)</i>	<i>HAP légers (moins de 4 cycles aromatiques)</i>
Fluoranthène	Naphtalène
Pyrène	Acénaphtène
Chrysène	Fluorène
Benzo(b)fluoranthène	Phénanthrène
Benzo(k)fluoranthène	Anthracène
Benzo(a)pyrène	
Benzo(e)pyrène	
Benzo(j)fluoranthène	
Dibenzo(a,h)anthracène	
Indeno(1,2,3,cd)pyrène	
Benzo(g,h,i)pérylène	

Classification des HAP en fonction du nombre de cycle aromatique

Des composés réactifs

Comme pour la plupart des composés organiques, des phénomènes d'incorporation aux aérosols sur les particules préexistantes sont observés après l'émission.

Des composés secondaires peuvent se former dans l'air ambiant lors de réactions hétérogènes pendant le transport dans l'atmosphère. Les composés ainsi formés peuvent s'avérer plus dangereux que les composés initiaux, comme par exemple certains HAP oxygénés et nitrés.

Les HAP peuvent réagir avec les rayons UV, les oxydes d'azote, l'ozone, les composés soufrés, les peroxydes, les radicaux libres, etc. et se décomposer thermiquement. La photooxydation des HAP produit des composés oxygénés, dont certains sont classés comme probablement cancérigènes. Lors d'essais dans des atmosphères contrôlées, certaines réactions entre les HAP et les composés nitrés ont pu être mises en évidence ; elles ont conduit à la formation de nitro-HAP.

1.2 Risque sanitaire

La toxicité des HAP est très variable. Certains ont des effets modérée (hépatiques, hématologiques, immunologiques) comme l'anthracène, le pyrène alors que d'autres comme le benzo(a)pyrène sont reconnus cancérigènes (B DOORNAERT et A.PICHARD, INERIS, 2003, p 3&5).

De nombreuses études sur l'animal ont montré que plusieurs HAP ont un potentiel immunotoxique, génotoxique, carcinogène. Les HAP classés comme cancérigènes probables ou possibles peuvent en particulier provoquer l'apparition de cancers du poumon en cas d'inhalation (phase particulaire surtout). Par ailleurs, ils peuvent affecter le processus de reproduction (Air Quality Guidelines for Europe, 2^{ème} édition). Le passage des hydrocarbures dans l'organisme humain s'effectue par inhalation, par ingestion mais également par transfert au travers de la peau. Ainsi, en milieu professionnel exposé, la peau et les poumons sont les deux voies de pénétrations prépondérantes. Le cancer du scrotum des petits ramoneurs de Londres a été l'un des premiers cancers professionnels identifiés, au 18^{ème} siècle. Il était dû au passage cutané des polluants présents dans la suie (AIRFOBEP, septembre 2004).

Le benzo(a)pyrène est le HAP le plus étudié, il représenterait 40% de la toxicité globale des HAP. L'unité de risque dans le cas d'une exposition de la population à une concentration de 1 ng.m⁻³ de benzo(a)pyrène tout au long de la vie a été estimée à 8,7*10⁻⁵ par l'OMS. Aussi ce composé a été retenu comme traceur du risque cancérigène pour l'ensemble de la famille des HAP.

Le tableau suivant présente un récapitulatif de la toxicité de certains HAP (E.LEOZ-GARZIANDIA, INERIS, 2000, p 9 & novembre 2004, p 7)

Polluants	Abréviation	Toxicité CIRC /EPA	Toxicité	Cancérogénèse	Mutagénèse
Anthracène	AN	US-EPA ¹	Modérée		Constatée
Benzo(a)anthracène	BaA	CIRCS 2A ² /US-EPA	Elevée	Confirmée	Constatée
Benzo(b)fluoranthène	BbFA	CIRCS 2B/US-EPA		Confirmée	Constatée
Benzo(k)fluoranthène	BkFA	CIRCS 2B/US-EPA		Confirmée	Constatée
Benzo(ghi)pérylène	BghiP	US-EPA		Non confirmée	Constatée
Benzo(a)pyrène	BaP	CIRCS 2A/US-EPA	Elevée	Confirmée	Constatée
Chysène	CHR	US-EPA		Confirmée	Constatée
Dibenzo(a,h)anthracène	BBahA	CIRCS 2A/US-EPA	Elevée	Confirmée	Constatée
Fluoranthène	FA	US-EPA	Modérée	Non confirmée	Constatée
Indéno(123,cd)pyrène	IP	CIRCS 2B/US-EPA		Confirmée	Constatée
Phénanthrène	PHE	US-EPA	Modérée		Constatée
Pyrène	PY	US-EPA	Modérée	Non confirmée	Constatée

Toxicité des HAP d'après Lewis, Richard J., Sr, SAX'S, 1996

¹ EPA : Environmental protection Agency

² CIRC 2A : cancérigène probable pour l'homme ; CIRC 2B : cancérigène possible pour l'homme (Centre International de Recherche sur le Cancer).

1.3 Contexte réglementaire

Les HAP font partie des Polluants Organiques Persistants (POP), substances définies selon les critères suivants (ADEME, journées techniques nationales) :

- le risque de transport atmosphérique à grande distance. Du fait de leurs propriétés de persistance et de bioconcentration, ces composés semi volatils peuvent se déplacer sur de longues distances, loin des lieux d'émissions ;
- la toxicité : risque d'effets nocifs sur la santé et l'environnement ;
- la persistance : résistance aux dégradations biologiques ;
- la bioconcentration : leur concentration augmente le long de la chaîne alimentaire. Ces molécules s'accumulent dans les tissus vivants du fait de leur faible solubilité aqueuse et leur forte solubilité dans les lipides.

Au niveau international, les HAP sont notamment visés par le protocole d'Aarhus, signé en juin 1998 dans le cadre de la Convention de Genève sur la pollution transfrontalière longue distance. Le protocole a été ratifié par la France le 25 juillet 2003 et il est en vigueur depuis le 23 octobre 2003.

Au niveau communautaire, le cadre de la surveillance des HAP dans l'air ambiant est défini dans la directive 2004/107/CE du Parlement Européen et du Conseil du 15 décembre 2004 concernant l'arsenic, le cadmium, le mercure, le nickel, le plomb, et les hydrocarbures aromatiques polycycliques dans l'air ambiant. La date du 15 février 2007 a été fixée pour les pays membres afin qu'ils mettent en vigueur les dispositions législatives, réglementaires et administratives nécessaires pour se conformer aux exigences de la directive.

La directive 2004/107/CE établit une valeur cible¹ pour le benzo(a)pyrène : 1 ng.m⁻³ dans l'air ambiant en moyenne annuelle applicable en 2012. Elle impose également la surveillance d'autres HAP, comprenant au minimum benzo(a)anthracène, benzo(b)fluoranthène, benzo(j)fluoranthène, benzo(k)fluoranthène, indeno(1,2,3-cd)pyrène, dibenzo(a,h)anthracène.

Pour le prélèvement, une durée d'échantillonnage de 24 heures est rendue obligatoire par la directive, qui par ailleurs définit une période minimale de prise en compte des données : 33% pour des mesures fixes, et 14% pour des mesures indicatives, ce qui conduit à des fréquences respectives de prélèvement d'un jour sur trois et un jour sur six.

La directive précise l'emplacement et le nombre minimal de points de prélèvements à prévoir sur le territoire, avec pour priorité l'évaluation des zones et agglomérations où la population est susceptible d'être la plus exposée. Les sites représentatifs du niveau d'exposition moyen de la population doivent également être pris en compte. Dans tous les cas, il convient de prévoir au minimum un site de surveillance pour les agglomérations comprises entre 250 000 et 2 000 000 habitants, voire deux sites pour les agglomérations de plus de 750 000 habitants en cas de dépassement du seuil d'évaluation² maximal.

¹ **Valeur cible** : signifie une concentration dans l'air ambiant fixée dans le but d'éviter, de prévenir ou de réduire les effets nocifs pour la santé des personnes et l'environnement dans son ensemble qu'il convient d'atteindre, si possible, dans un délai donné.

² **Seuils d'évaluation** : les seuils d'évaluation minimal et maximal, établis sur la base des concentrations mesurées, orientent la stratégie de surveillance. Si le seuil d'évaluation maximal est franchi, une surveillance fixe et continue s'impose. Entre le seuil minimal et le seuil maximal, une combinaison de mesures et de modélisation peut être employée pour évaluer la qualité de l'air. En dessous du seuil minimal, peut se contenter des techniques de modélisation peuvent être utilisées. Ces seuils s'expriment en pourcentage de valeur cible. Ainsi, pour le B(a)P, le seuil d'évaluation maximal est 60% de la valeur cible (soit 0,6 ng.m⁻³) et de 40% pour le seuil minimal (soit 0,4 ng.m⁻³).

Valeur cible	Benzo(a)pyrène	
	Moyenne annuelle	1 ng.m ⁻³
Seuil d'évaluation maximal	Seuil en dessous duquel il est autorisé de combiner mesures et modélisation	0,6 ng.m ⁻³
Seuil d'évaluation minimal	Seuil en dessous duquel il est possible de recourir uniquement à la modélisation ou l'estimation objective	0,4 ng.m ⁻³

Enfin, indépendamment des niveaux de concentration dans l'air ambiant, la directive demande à chaque état membre de fournir une mesure indicative du dépôt total de B(a)P, sur la base d'un point de prélèvement tous les 100 000 km².

1.4 Sources

1.4.1 Spéciation

Les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) sont émis dans les suies et les fumées lors de combustion de matière organique (bois, charbon, pétrole) et lors de phénomène naturels (éruptions volcaniques, feux de forêts). Ils se forment dans des proportions importantes lorsque la combustion (et tout particulièrement celle de la biomasse) s'effectue 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 à l'avenir grâce à l'augmentation du rendement dans les poêles modernes et à l'application de règles de bonne pratique comme par exemple (ADEME, 2005) :

- ne pas brûler de bois souillé, vernis ou peint ainsi que des déchets ménagés et végétaux ;
- favoriser l'utilisation de bois ayant le label « NF Bois de chauffage » et d'une chaudière, poêle ou d'un insert ayant le « label Flamme verte ».

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.

Différents travaux ont permis de mettre en évidence les sources principales de certains HAP. Il s'avère cependant **que peu de composés sont réellement spécifiques d'une seule activité** (E.LEOZ-GARZIANDIA, INERIS, 2004, p 7 complété par INERIS, 2000, p 6)

HAP	Formule	Phase	Toxicité CIRC/EPA	Sources principales ¹	Indicateurs d'inventaires d'émission ²
Phénanthrène (PHE)	C ₁₄ H ₁₀	Gaz & particule	US-EPA	Diesel/ raffinerie pétrole Centrale électrique à charbon/Usine d'incinération des déchets/ Usine engrais	
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/Usine engrais/Centrale électrique à charbon/Fonderie	Borneff
Pyrène (PY)	C ₁₆ H ₁₀	Gaz & particule	US-EPA	Chauffage domestique/diesel/Raffinerie pétrole/ Usine d'incinération des déchets	
Benzo[a]anthracène (BaA)	C ₁₈ H ₁₂	Particulaire	CIRC 2A US-EPA	Chauffage domestique / fonderie/Usine engrais	
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

Sources principales d'émissions de différents HAP

¹ Masclat & al., 1984

² **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

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, septembre 2003). 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 :

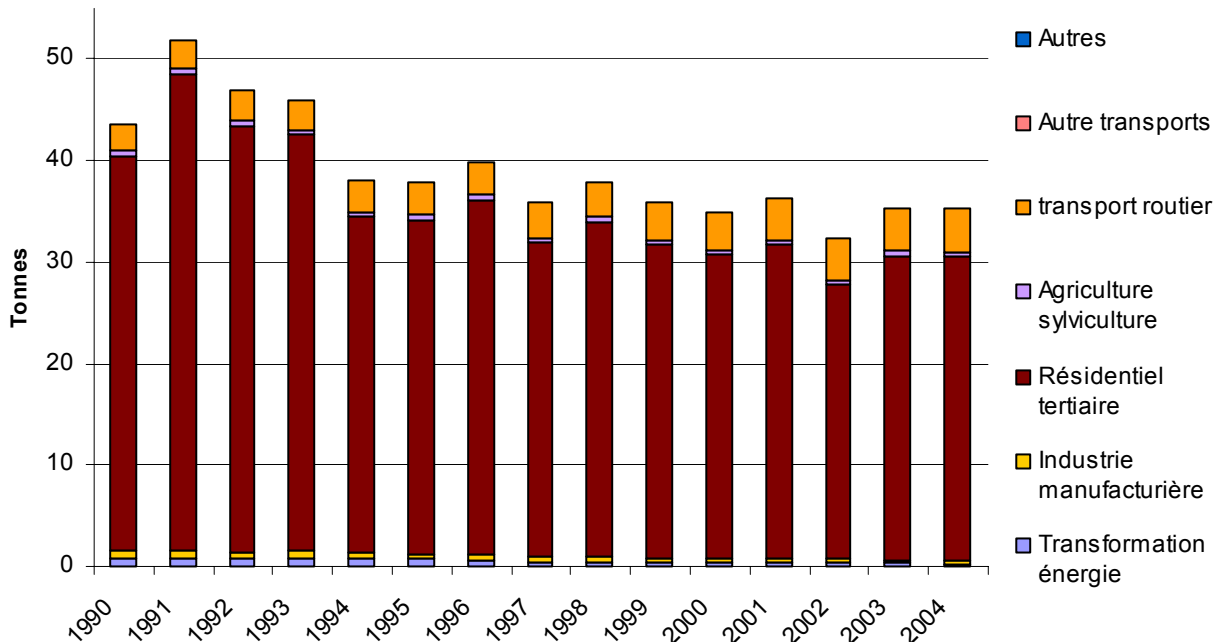
Facteurs d'émission des véhicules pour le Benzo(a)pyrène (CORINAIR) ¹	
Catégorie de véhicules	Facteur d'émission (µg/km)
Véhicules particuliers – Essence - Non Catalysé	1,1
Véhicules particuliers – Essence - Catalysé	0,4
Véhicules particuliers – Diesel - Injection directe	0,7
Véhicules particuliers –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

1.4.2 Les émissions en France

Depuis l'année 2005, les bilans d'émissions nationaux effectués pour le Ministère de l'Ecologie par le CITEPA concernent les 4 HAP suivants : benzo(a)pyrène, benzo(b)fluoranthène, benzo(k)fluoranthène et indeno(1,2,3)pyrène. Ces 4 HAP sont ceux définis par le protocole d'Aarhus et par le règlement n°850/2004 du Parlement européen et du Conseil du 29 Avril 2004.

Les émissions de ces 4 HAP s'élèvent à 35 tonnes en 2004. Les émissions sont globalement en baisse sur la période 1990 à 2004. Ainsi, les émissions totales de la France métropolitaine étaient de 44 tonnes en 1990, soit une baisse de 20,5%. Les émissions semblent stagner depuis 2000 et notamment celles du secteur résidentiel tertiaire artisanat. La part du transport routier n'a pas diminuée et a même tendance à légèrement augmenter depuis 1999.

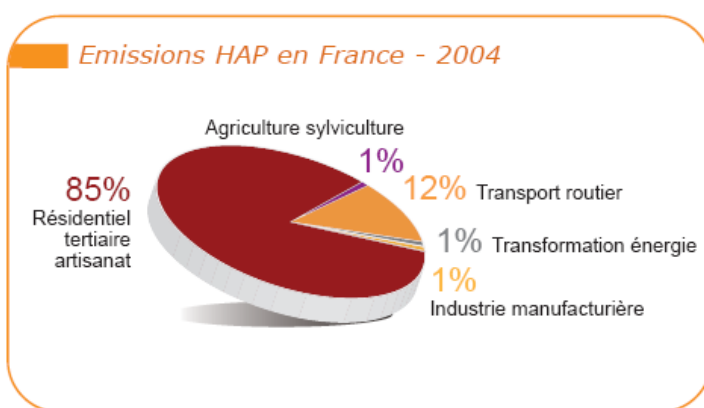
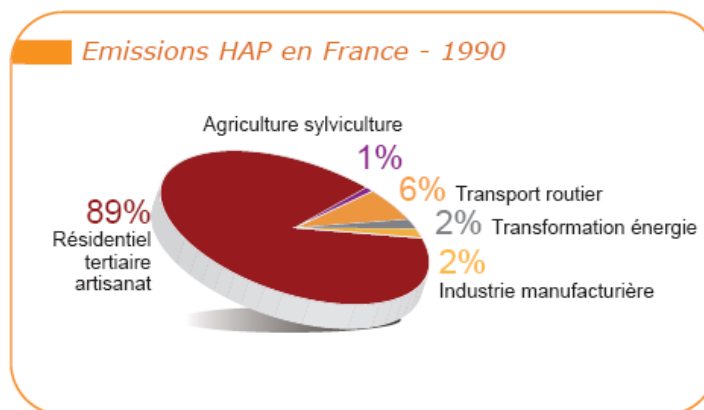
Emissions de HAP dans l'air en France métropolitaine (4 HAP)



²CITEPA /CORALIE/format SECTEN

¹ CORINAIR : COoRdination d'INformation Environnementale AIR

² CITEPA : Centre Interprofessionnel Technique d'Etudes de la Pollution Atmosphérique



Sur la base des 4 HAP cités précédemment, les émissions nationales proviennent principalement de deux secteurs, qui sont par ordre d'importance en 2004 :

- **le résidentiel/tertiaire** : 85% des émissions totales de la France métropolitaine en 2004, du fait de la combustion du bois et du charbon pour le chauffage ;
- **le transport routier** : 12%, en particulier les véhicules diesels.

Les autres secteurs contribuent peu, voire pas du tout, aux émissions de ces quatre composés.

Il est à noter, au niveau de l'inventaire français, une évolution considérable des quantités estimées. En effet, l'inventaire du CITEPA réalisé en 2001 estimait à 1834 tonnes les rejets en France (données 1999), dont environ 80% en provenance des combustions du secteur résidentiel. En 2005, compte tenu des révisions des méthodes d'estimation et des règles de restitution, sur cette même année 1999, les rejets sont estimés à 36 tonnes.

En 1999, en plus des 4 HAP cités précédemment (benzo(a)pyrène, benzo(b)fluoranthène, benzo(k)fluoranthène et indeno(1,2,3)pyrène) 12 autres HAP étaient également intégrés dans les inventaires, d'où les différences considérables en terme de quantités rejetées (Naphtalène, Acenaphtylène, Acénaphtène, Fluorène, Anthracène, Phénanthrène, Fluoranthène, Pyrène, Benzo(a)anthracène, Chrysène, Dibenz(ah)anthracène, Benzo(ghi)pérylène).

Les HAP gazeux ne sont donc pas pris en compte dans les inventaires actuels du CITEPA. Certains de ces composés ayant une origine industrielle majoritaire, les inventaires nationaux ne reflètent par conséquent pas toujours une situation locale potentiellement influencée par d'importantes émissions industrielles.

Un inventaire des principales émissions atmosphériques d'origine industrielle en France (IREP) pour certains polluants dont les HAP a été établi par la Direction de la Prévention des Pollutions et des Risques du Ministère de l'Ecologie et du Développement Durable. La collecte des informations est effectuée auprès des industriels après vérifications des données par les DRIRE. Si cet inventaire donne une idée sur la localisation des gros émetteurs, il est loin d'être exhaustif car il comptabilise

uniquement les établissements soumis à réglementation d'autosurveillance (E.LEOZ-GARZIANDIA, INERIS, Novembre 2005).

L'IREP comptabilise environ **50 tonnes de HAP globaux** pour l'année 2004 alors que le CITEPA estime les émissions à **35 tonnes** (4 HAP de l'inventaire 2006). Les inventaires fournissent des chiffres dont le recouplement n'est pas aisé. Il convient d'être attentif aux polluants pris en compte car ils peuvent faire varier sensiblement les quantités d'émissions.

1.4.3 Comparaison avec d'autres pays

Le tableau ci-dessous compare les données d'émissions de 1990 de différents pays d'Europe de l'ouest issues du rapport du TNO¹ publié en 1997 (LEOZ-GARZIANDIA, décembre 2001 ; Position Paper, 27 juillet 2001).

Le CITEPA estime dans un rapport de 1999 que les émissions de HAP en France s'élèvent à **1834 tonnes**.

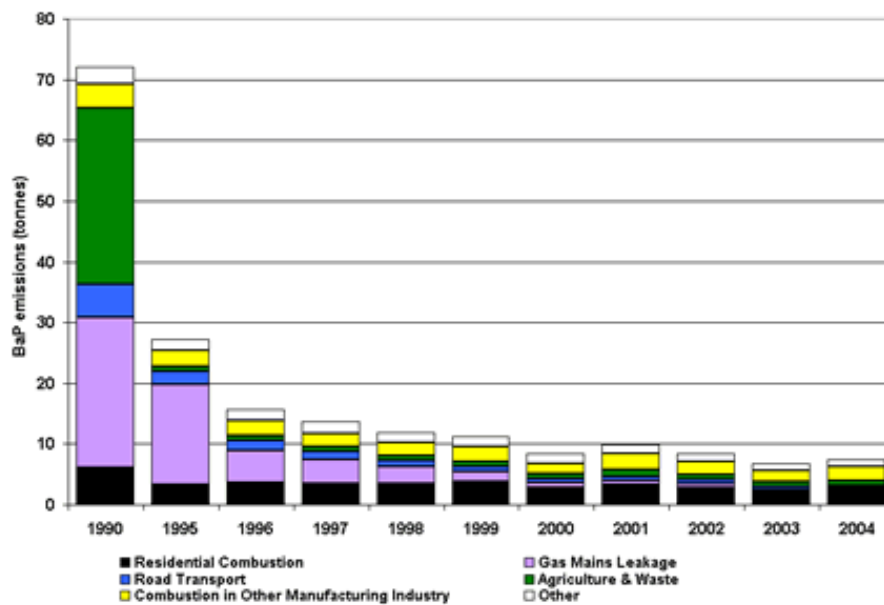
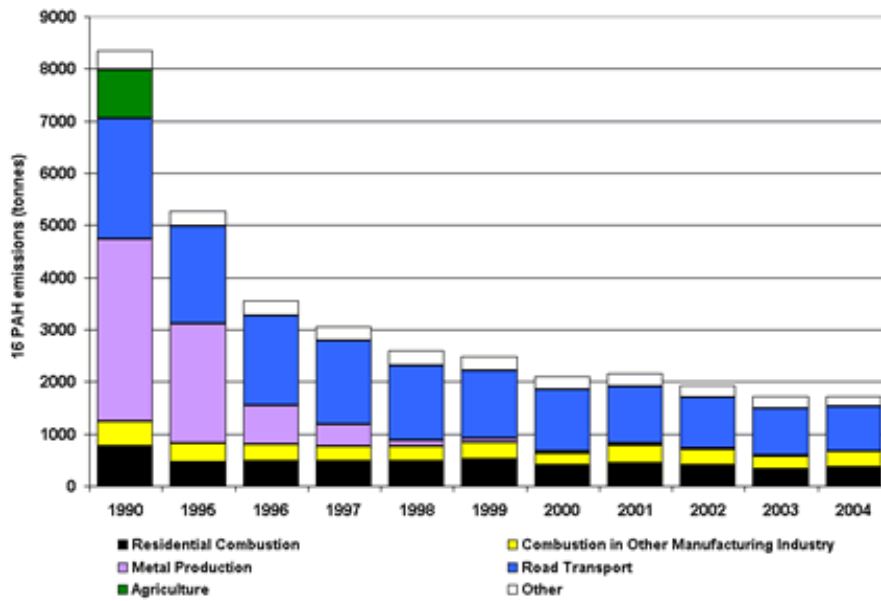
Les données des autres pays sont inférieures à celle de la France. D'après ce rapport, il semblerait que les autres pays sous estiment ou ne répertorient pas (cas de l'Allemagne et de l'Espagne) la source combustion résidentielle (dont le bois). Par conséquent d'autres sources deviennent majoritaires comme par exemple l'utilisation des solvants au Danemark et au Pays Bas, et la combustion dans l'industrie de l'énergie en Autriche. En Suède uniquement, la combustion résidentielle est également la source majoritaire.

Les variations entre pays sur le nombre et le type de polluants pris en compte dans les inventaires accroissent les difficultés de comparaison.

Pays	Emission en tonnes (TNO) 1990
France	3479
Royaume-Uni	1437
Italie	694
Espagne	521
Allemagne	420
Suède	282
Autriche	243
Pays-Bas	184
Norvège	140
Danemark	77

¹ TNO : organisme d'inventaire européen

➤ Exemple du Royaume-Uni (<http://www.naei.org.uk>)



En 2004, les émissions de HAP au Royaume-Uni s'élèvent à environ 1500 tonnes. Elles ont sensiblement diminué depuis 1990 (8000 tonnes), avec une baisse de 80%. A contrario de la France la principale source d'émissions identifiée est le transport routier qui contribue pour 50 % dans les émissions totales. L'autre principal secteur émetteur est le résidentiel (combustion) et la production des métaux non-ferreux.

Les émissions de B(a)p ont diminué au cours des 13 dernières années (d'environ 70 tonnes en 1990 à 8 tonnes en 2004), avec notamment une baisse importante des émissions liées aux procédés de production.

En 2004, Les émissions de B(a)p proviennent majoritairement des combustions du secteur résidentiel.

Les données d'émissions issues de l'inventaire du NAEI (National Atmospheric Emissions Inventory) concernant le Royaume-Uni diffèrent des chiffres présentés précédemment.

L'analyse de ces données montre qu'il est nécessaire d'harmoniser les facteurs d'émissions et les méthodes d'inventaires entre les pays pour procéder à une comparaison valide. Dans la situation actuelle, hormis l'observation d'une évolution au sein d'un même pays, il n'est pas envisageable de réaliser une comparaison fiable entre pays.

1.4.4 Emissions en région Rhône-Alpes

Territoires	Emissions (en kg)
Rhône-Alpes	3056
Ardèche	272
Drôme	234
Isère	541
Loire	416
Rhône	751
Savoie	265
Haute Savoie	315
Ain	262

D'après les travaux du CITEPA, les émissions Rhône-Alpes représentent la part la plus importante (environ 9%) des émissions françaises, suivie de la région Midi-Pyrénées (7% avec 2346 kg). L'Île de France représente environ 5% avec 1838 kg.

Emissions de HAP en 2000 (données CITEPA)

Un cadastre local des émissions de HAP est en cours de réalisation par les associations agréées de surveillance de la qualité de l'air de Rhône-Alpes. A l'heure actuelle, la connaissance des émissions en HAP en Rhône-Alpes se limite aux sources industrielles, grâce à la DRIRE¹ qui effectue chaque année un bilan des quantités de polluants émises par les grandes sources ponctuelles. La somme des émissions industrielles 2004 des principaux émetteurs répertoriés représente 42 tonnes de HAP. Cet inventaire est susceptible d'être complété à l'avenir avec d'autres émetteurs potentiels de HAP qui ne sont pas pris en compte, notamment les chaufferies bois, dont le développement est important en région Rhône-Alpes (cf. carte ADEME ci-dessous).

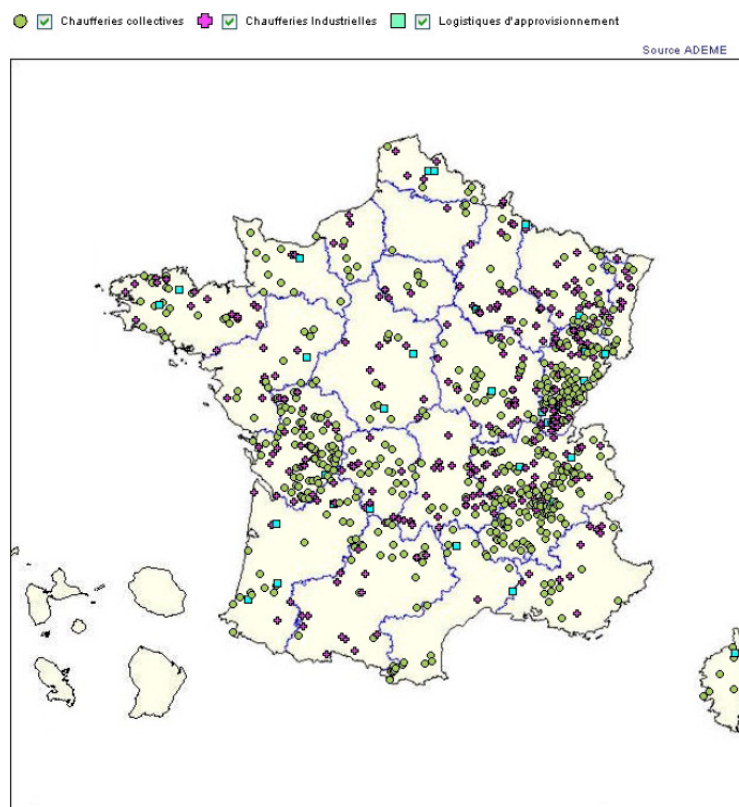
Etablissement	Commune	Département	Flux 2005 en Kg/an	Flux 2004 en Kg/an	Flux 2003 en Kg/an	Flux 2002 en Kg/an	Flux 2001 en Kg/an	Flux 2000 en Kg/an
MESSIER BUGATTI	Villeurbanne	69	47	39 449	78 800	NC	NC	NC
SGL CARBON SA	Passy	74	1790	1504	575	740	1700	NC
Carbone Savoie (ex UCAR)	Vénissieux	69	3073	1362	939	NC	NC	730
Carbone Savoie	La léchère	73	730	151	161	550	1299	NC
ALUMINIUM PECHINEY	St Jean de Maurienne	73	104	NC	NC	NC	NC	NC
Somme			5744	42 466	80 475	1290	2999	730

Liste des établissements émettant plus de 50 kilogrammes de HAP par an

L'émetteur de HAP le plus important en 2004 était l'usine Messier BUGATTI (environ 39,5 tonnes de HAP) situé sur la commune de Villeurbanne dans le département du Rhône. Les émissions de HAP de cet établissement ont très largement diminué en 2005 (47 kg) suite à la mise en service d'un traitement des gaz de procédés.

En revanche, les émissions de HAP de l'usine UCAR (commune de Vénissieux) ont augmenté depuis 2003. Elles s'élevaient à environ 3 tonnes en 2005. Une meilleure surveillance des émissions atmosphériques a permis depuis 2005 d'évaluer plus précisément les quantités annuelles de HAP émises dans l'atmosphère.

¹ Direction Régionale de l'Industrie de la Recherche et de l'Environnement



Cartographie des chaufferies BOIS en France (ADEME, 2003)

2 LA SURVEILLANCE DES HAP DANS L'AIR AMBIANT

2.1 Le « Position PAPER »

Le Position Paper (préalable à la rédaction du texte européen) a été élaboré par un groupe de travail regroupant les pays suivant : la Grande Bretagne, l'Italie, les Pays Bas, l'Autriche, l'Allemagne, la Norvège, la Suède et la France. Ce rapport a été rédigé dans une approche purement sanitaire et en fonction des données toxicologiques et épidémiologiques existantes. Par conséquent seuls les HAP classés comme étant probablement ou possiblement cancérigènes pour l'homme ont été retenus. Ce rapport a servi de base pour la rédaction de la directive fille de 2004.

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

Le tableau suivant, figurant dans le « Position Paper » a le mérite de donner une vision synthétique et assez exhaustive des concentrations annuelles de HAP au niveau européen. **Les auteurs 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 pour la période 2001-2004.

HAP en ng.m ⁻³	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
Phénathrène (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

Valeurs typiques de concentrations de HAP dans l'air ambiant - Synthèse du "Position Paper, annexe14 »

2.2 Le programme pilote en France

2.2.1 Les objectifs

Avant la parution du « Position Paper », la France, entre octobre 2001 et décembre 2003, a mis en place un groupe de travail chargé de proposer une stratégie de surveillance. L'INERIS, dans le cadre de ses activités au sein du LCSQA¹ a été chargé de la conception et du suivi d'un programme pilote de surveillance des HAP dont les objectifs étaient les suivants :

- Connaissance des concentrations en France dans l'air ambiant ;
- Etudes en vue de déterminer les choix météorologiques et méthodologiques pertinents ;
- Quantification des incertitudes ;
- Elaboration d'une stratégie de surveillance (sites, fréquence de prélèvement, assurance qualité..) ;
- Evaluation des coûts de la surveillance.

2.2.2 Choix des sites de mesures

Plusieurs associations de surveillance de la qualité de l'air (AASQA²) se sont impliquées dans ce programme pilote, permettant le recueil d'un nombre important de données de concentrations sur l'ensemble du territoire métropolitain, entre octobre 2001 et décembre 2003 :

Réseau de surveillance	Nombre de sites	Typologie
AIRPARIF (Paris)	3	Urbain, trafic, urbain à influence industrielle
AIR LR (Montpellier)	1	Urbain
AIRMARAIX (Marseille)	2	Urbain
ATMO POITOU (La Rochelle)	1	urbain
ASCOPARG (Grenoble)	1	Trafic
COPARLY (Lyon)	1	Trafic
AIRNORMAND (Le Havre)	1	Industriel
AIRCOM (Caen)	1	Trafic
AREMA LM (Lille)	2	Urbain, trafic

Les sites de mesure ont été choisis par chaque AASQA, en fonction de leurs attentes et contraintes. Le groupe de travail n'a pas imposé de site mais cependant souhaité avoir un panel représentatif de différentes typologies de sites. Concernant la représentativité, les sites industriels paraissent sous-représentés au regard de la liste des sites retenus. L'absence de site rural est également à noter.

Sur ce sujet, la Commission des Communautés Européennes a constaté qu'il existe peu de données dans l'Union Européenne concernant les communautés rurales où les foyers se chauffent au charbon et au bois. 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) .

Dans le cadre de ce programme pilote, les HAP les plus légers (Naphtalène, Acénaphthylène, Acénaphthène, Fluorène) n'ont pas été analysés en raison de leur faible toxicité et des difficultés d'analyse.

¹ Laboratoire central de Surveillance de la Qualité de l'Air. Sous l'égide du Ministère de l'Ecologie et du Développement Durable, le LCSQA est une entité constituée des compétences des 3 organismes, l'école des Mines de Douai, l'Institut National de l'Environnement et des risques Industriels (INERIS) et le Laboratoire National d'Essai (LNE)

² **AASQA** : Association Agréée de Surveillance de la Qualité de l'Air

2.2.3 Liste des HAP surveillés pendant le programme pilote :

HAP	Abrév.	Formule	Etat	Raison du choix
Anthracène	ANT	C ₁₄ H ₁₀	Volatil	Abondance
Benzo(a)anthracène	BaA	C ₁₈ H ₁₂		Cancérogène Abondance
Benzo(b)fluoranthène	BbF	C ₂₀ H ₁₂	Particulaire	Cancérogène Indicateur d'émissions essence
Benzo(k)fluoranthène	BkF	C ₂₀ H ₁₂	Particulaire	Cancérogène Indicateur d'émissions essence
Benzo(ghi)pérylène	BghiP	C ₁₄ H ₁₀	Particulaire	Cancérogène Indicateur d'émissions essence
Benzo(a)pyrène	BaP	C ₂₀ H ₁₂	Particulaire	Cancérogène
Chrysène	CHR	C ₁₈ H ₁₂		
Dibenzo(a,h)anthracène	DBahA	C ₁₄ H ₁₀	Particulaire	Cancérogène
Fluoranthène	FL	C ₁₆ H ₁₀	Volatil	Cancérogène
Indéno(123,cd)pyrène	IP	C ₂₂ H ₁₂	Particulaire	Cancérogène Indicateur d'émissions essence
Phénanthrène	PHE	C ₁₄ H ₁₀	Volatil	Abondance
Pyrène	PY	C ₁₆ H ₁₀	Semi-volatil	Abondance

2.2.4 Méthode de prélèvement et d'analyse

Les prélèvements duraient 24 heures, à raison d'un tous les six jours de façon à couvrir tous les jours de la semaine (préconisation reprise dans la directive dans le cas de mesures dites indicatives).

Les prélèvements ont été réalisés avec des préleveurs haut débit (DA-80 de Digital de 30m³/h) munis d'une tête PM₁₀, sur filtre en fibre de quartz et mousses en polyuréthane (PUF) pour étudier la partition gaz/particules. Les filtres étaient issus d'un même lot et ont été fournis par l'INERIS, afin de garantir leur homogénéité.

Compte tenu des contraintes analytiques (besoin de réaliser les extractions rapidement par exemple) et des risques de dégradation des HAP dans le temps (photodégradation, volatilisation.....), les AASQA se sont associées avec des laboratoires proches des sites de prélèvement.

Le protocole analytique a été fourni par l'INERIS, cependant chaque laboratoire pouvait utiliser sa propre méthode à condition de participer aux campagnes d'inter comparaison.

2.2.5 Les résultats

Moyenne Annuelle B(a)P	Stations de mesures	Typologie	2002 programme pilote	2002 (données corrigées) *	2003 programme pilote	2003 (données corrigées) *
AIRPARIF	Gennevilliers	urbain (influence industrielle)	0,34	0,31	0,49	0,34
	Paris 1er Les Halles	urbain	0,16	non renseigné	0,27	0,23
	Boulevard périphérique Auteuil	trafic	0,6	0,68	0,59	0,68
AREMA	Pasteur	trafic	0,63	0,59	0,62	0,59
	Marcq en Baroeul	urbain	1,03	0,75	0,88	0,86
COPARLY	Etats Unis	trafic	0,83	0,83	1,07	0,92
ASCOPARG	Le Rondeau	trafic	0,77	0,74	1,37	1,32
AIRFOBEP	Port de bouc la leque	urbain (influence industrielle)	0,27	0,307 (oct 2001à 2002)	0,31	0,332 (janv 2003 à2004)
POITOU-CHARENTES		urbain	0,6	0,36	0,51	0,46
AIRMARAIX	Marseille cinq avenue	urbain	0,292	0,385 (oct 2001à 2002)	0,21	0,22
AIRCUM		Trafic	0,51		0,25	
AIR Normand		industriel industriel	0,14		0,17	

* explications paragraphe suivant

2.2.6 Corrections des données à postériori

Les valeurs du programme pilote ont été corrigées postérieurement par les réseaux de surveillance pour différentes raisons :

- Correction des données inférieures à la limite de détection en ce qui concerne AREMA.
- Mise en conformité des données de COPARLY et ASCOPARG par rapport à l'annexe V de la directive 2004/107/CE qui demande une expression des concentrations en ng.m^{-3} dans les conditions réelles. La méthode de calcul utilisée pour la remise en conformité des résultats est détaillée en annexe.

NB : Cette exigence est en désaccord avec le programme pilote HAP dont les préconisations étaient de se référer aux conditions normales de température et de pression. Toutefois l'INERIS a évoqué le problème dans le document LCSQA INERIS Etude n°7(3/4) de novembre 2004. « Les AASQA devront donner les résultats en ng.m^{-3} avec l'incertitude associée, avec le volume d'air calculé dans des conditions ambiantes ». Les valeurs ne sont donc pas comparables aux autres réseaux (à l'exception D'AIRPARIF) dont la plupart calculent leur données avec un volume normal.

- Problèmes techniques rencontrés lors de prélèvement ou d'analyses effectuées en laboratoires.

Il apparaît une disparité dans la méthode de calcul des résultats en conditions ambiantes selon les AASQA due à une interprétation différente des recommandations et textes réglementaires, en l'absence de règles nationales.

2.2.7 Les principaux résultats

Les principaux résultats du programme pilote ont été publiés fin 2004 par le LCSQA. Il ressort principalement les points suivants :

- Sur les sites investigués, la valeur cible pour le B(a)P n'est dépassée que sur un nombre limité de sites. Parmi les sites en dépassement figurent les sites trafic de **Grenoble** (ASCOPARG) et **Lyon** (COPARLY) en 2003 [avant correction] et un des sites (urbain) du **Nord pas de Calais** AREMA en 2002 [avant la correction des données liée au remplacement des données inférieures à la limite de détection (LD) 0.1 ng.m^{-3} par la valeur LD/2].
- Le seuil d'évaluation maximal est en revanche franchi sur presque la moitié des sites investigués, rendant obligatoire la surveillance continue du B(a)P dans les agglomérations concernées.
- Des efforts restent à faire pour atteindre la préconisation de la directive en terme de saisie minimale de données, à savoir 90%, cette valeur étant de 87% en moyenne durant le programme pilote.
- L'étude des concentrations obtenues pour les HAP totaux montre une nette différence été/hiver, avec des concentrations hivernales de l'ordre de 80 ng.m^{-3} , contre 25 ng.m^{-3} en été. Les concentrations hivernales les plus élevées ont été enregistrées sur les sites de Lyon et Grenoble. En été, les concentrations les plus importantes sont observées sur le site parisien d'Auteuil. Les teneurs mesurées à Lyon sont également parmi les plus élevées. Les résultats sont équivalents pour le seul B(a)P, avec même un rapport hiver/été encore plus important que pour les HAP totaux, du fait de la grande réactivité du B(a)P, composé subissant une intense dégradation en été sous l'action des rayons du soleil.
- Les plus fortes concentrations ont été observées sur les sites trafics, suivies des sites urbains et enfin des sites industriels. Il faut souligner que la période traitée par le programme pilote, à savoir d'octobre 2001 à décembre 2003, les sites industriels étaient peu nombreux (un seul) et le site de Vénissieux Village, en région lyonnaise, n'était pas encore opérationnel (printemps 2004).
- La contribution du B(a)P au mélange de HAP pris en compte par la directive est la plupart du temps de 15 à 20%. Il faut également souligner la forte corrélation entre le B(a)P et les HAP totaux alors qu'ils ne représentent que 5% de la totalité des HAP.
- Les concentrations annuelles se situent dans la gamme de celles mentionnées par le Position Paper pour le B(a)p : de 0.4 à 2 ng.m^{-3} pour des sites dits urbains (voir chapitre suivant).

2.3 La surveillance des HAP en région Rhône-Alpes

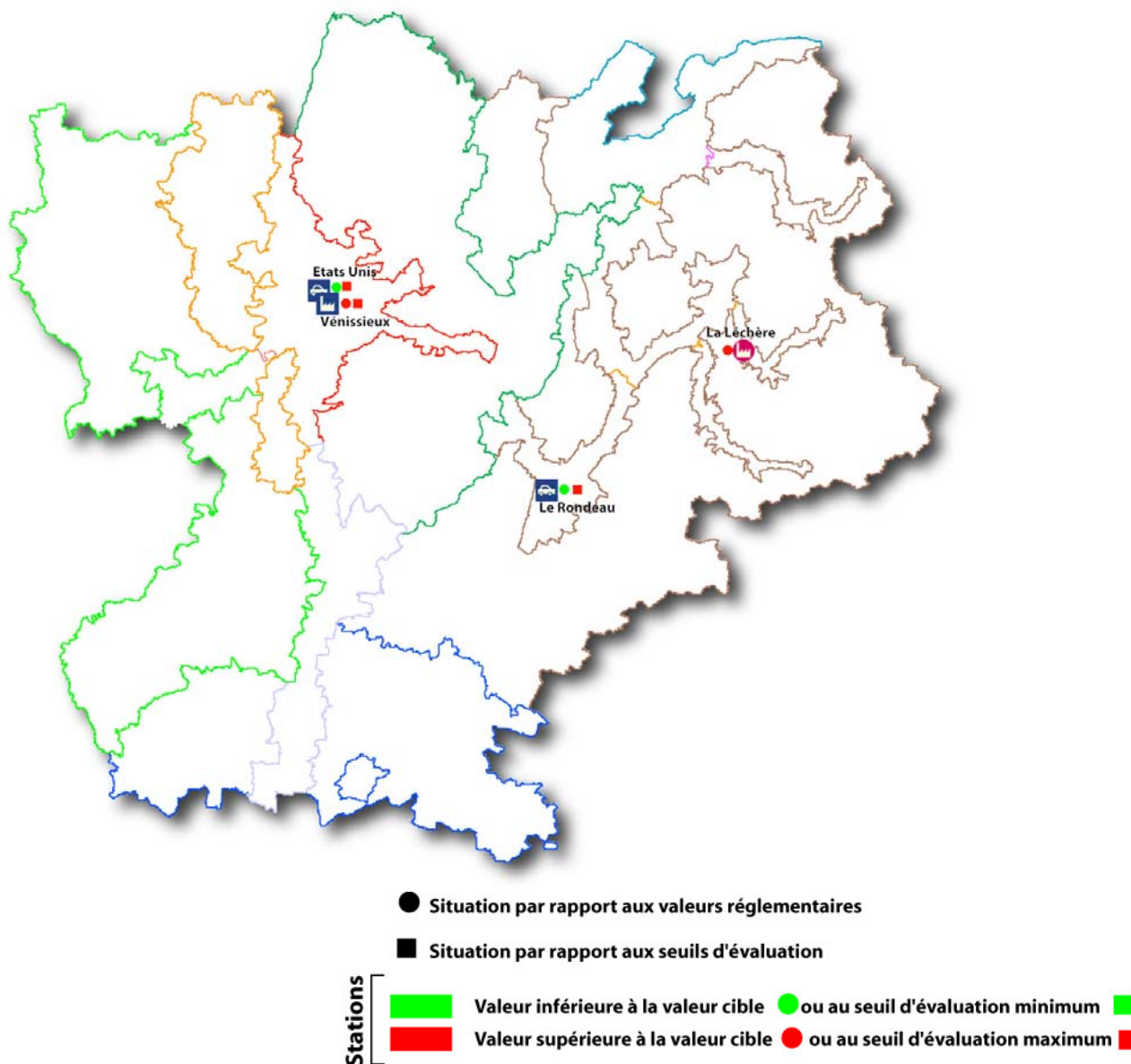
Les mesures régulières de HAP dans l'air ambiant ont débuté en novembre 2001 dans les départements de l'Isère et du Rhône, dans le cadre du programme pilote national. ASCOPARG et COPARLY ont souhaité participer aux travaux préliminaires et à la définition d'une stratégie de surveillance de ces polluants.

A partir de 2004, d'autres mesures ont été effectuées sur des sites notamment industriels, urbains et ruraux.

Afin d'assurer une surveillance cohérente du territoire de Rhône-Alpes, les 6 associations agréées de la région ont décidé de proposer une stratégie commune de surveillance à l'échelle régionale qui prend en compte les polluants émergents tels que les HAP.

2.3.1 Le plan de surveillance de la qualité de l'air en région Rhône-Alpes

Situation pour les HAP en 2004



Les évaluations des HAP en 2004 ont été réalisées essentiellement dans les agglomérations lyonnaise et grenobloise en site de proximité automobile et industrielle. Aucune mesure en station urbaine ne permettait alors d'évaluer la situation par rapport au seuil d'évaluation (cf chap 1.3).

En 2005, le site urbain installé à Grenoble « Les frênes » atteignait le seuil d'évaluation maximum. Des mesures en milieu urbain sont réalisées, depuis janvier 2006, au niveau de l'agglomération stéphanoise et ont débuté, en janvier 2007, sur l'agglomération lyonnaise.

Concernant la surveillance en proximité industrielle, le Plan Régional de Surveillance de la Qualité de l'Air adopté fin 2005, définit des critères de surveillance sur la base de seuils d'émission par an pour les installations industrielles. Le seuil d'émission pour les HAP est fixé à 50 kilogrammes par an. Cinq émetteurs sont alors concernés dans la région Rhône-Alpes (tableau chapitre émissions en Rhône-Alpes).

Parmi ces 5 sources d'émission, 3 sont surveillés de manière continue ou temporaire :

- Carbone Savoie (ex UCAR), située sur la commune de Vénissieux : depuis avril 2004 grâce à la station de proximité industrielle « Vénissieux Village » et, à la demande de l'industriel concerné, COPARLY a renforcé cette surveillance en 2006 par une mesure temporaire supplémentaire sous les vents dominants des cheminées.
- Temporaire :
 - Carbone Savoie (ex UCAR SNC) (73) en 2001/02 sur la commune de la Léchère.
 - MESSIER BUGATTI (69) en 2006.

2.3.2 Mesures des HAP dans les départements du Rhône et de l'Isère

Les concentrations prises en compte dans ce rapport ont été mesurées entre janvier 2002 et décembre 2006 inclus.

• Composés suivis

Douze HAP, choisis en raison de leur potentiel toxique et de leur abondance, avaient été retenus initialement dans le programme pilote national. 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. Les HAP les plus légers (Naphtalène, Acénaphthylène, Acénaphène, 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, certains de ces composés ont été retenus par ASCOPARG et COPARLY. En plus du benzo(a)pyrène, la 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. A l'exception du benzo(j)fluoranthène, tous ces composés avaient été retenus initialement par le programme pilote.

Le tableau ci-contre recense les composés finalement retenus par ASCOPARG et COPARLY :

	Signification des abréviations HAP	Forme
NAP	Naphtalène	Gazeux
2-metNAP	2-méthylnaphtalène	Gazeux
AC	Acénaphène	Gazeux
FL	Fluorène	Gazeux
PHE	Phénanthrène	Gazeux
AN	Anthracène	Gazeux
FA	Fluoranthène	Particulaire/Gazeux
PY	Pyrène	Particulaire/Gazeux
2-metFA	2-méthylfluoranthène	Particulaire/Gazeux
BaA	Benzo(a)anthracène	Particulaire/Gazeux
CHR	Chrysène	Particulaire
BeP	Benzo(e)pyrène	Particulaire
BjFA	Benzo(j)fluoranthène	Particulaire
BbFA	Benzo(b)fluoranthène	Particulaire
BkFA	Benzo(k)fluoranthène	Particulaire
BaP	Benzo(a)pyrène	Particulaire
BBaA	Dibenzo(a,h)anthracène	Particulaire
BghiP	Benzo(g,h,i)pérylène	Particulaire
IP	Indeno(1,2,3,cd)pyrène	Particulaire



Appareil de mesure de HAP

Liste des HAP suivis dans l'Isère et le Rhône

- **Prélèvements** (INERIS, décembre 2000 et Leoz- Garzianda, INERIS, Novembre 2004, convention 0400087)

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 directive, la période minimale recommandée pour les mesures fixes est de 33% (soit un jour sur 3), et 14% (un jour sur 6, permettant de couvrir tous les jours de la semaine) pour les mesures indicatives. Au démarrage du programme pilote, la directive n'était pas encore parue, et les modalités retenues correspondent à des mesures indicatives (un jour sur six). Les résultats ayant mis en évidence un dépassement du seuil d'évaluation maximal sur les agglomérations de Grenoble et Lyon, le suivi sur ces deux agglomérations a été renforcé et est réalisé sur la base d'un jour sur trois depuis début 2006.

Suite aux différents essais de l'INERIS, le choix d'un préleveur à moyen ou haut débit ($> 15 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$) a été recommandé. ASCOPARG et COPARLY ont fait le choix d'un appareil à haut débit de marque DIGITEL, modèle DA80, muni d'une tête coupant à $10 \mu\text{m}$, le débit étant fixé à $30 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$.

Les 19 composés se trouvant en phase gazeuse et particulaire, un prélèvement des deux phases a été nécessaire, d'où l'utilisation de filtres pour retenir les particules et de mousses en polyuréthane pour piéger la phase gazeuse. 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. A partir de 2004, ASCOPARG et COPARLY ont commandé leurs propres filtres.

Filtres et mousses sont conservés 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 . ASCOPARG et COPARLY ont donc acquis un groupe frigorifique portatif permettant d'atteindre des valeurs négatives. Avant et après échantillonnage, les supports en verre dans lesquels sont stockés filtres et mousses sont emballés dans du papier d'aluminium, afin de limiter les phénomènes de dégradation.

Préleveur	Coupe granulométrique	Débit	Durée prélèvement	Fréquence prélèvement	Filtres	Mousses
DIGITEL DA80	$10 \mu\text{m}$	$30 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$	24 heures	Un jour sur six Un jour sur 3 depuis janvier 2006	Microfibres de quartz QMA Marques : - Phymep - Schleicher et Schuell	Polyuréthane PUF Marque : Ecomesure

Récapitulatif des conditions de prélèvement des HAP

- **Analyses** (FABLE & STRUBLE, LCSQA, juin 2004)

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 et suivi par CARSO, qui a participé aux campagnes d'inter-comparaison¹ 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'éluion 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).

- **Blancs de terrain et de laboratoire (FABLE & STRUBLE, LCSQA, juin 2004)**

Conformément au protocole de l'INERIS, des blancs de terrain sont effectués à une fréquence mensuelle (soit environ un blanc pour 10 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 laissés 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. Les valeurs enregistrées doivent être inférieures à 5 ng (jusqu'à 50 ng pour le phénanthrène), des valeurs supérieures doivent être enlevées aux résultats obtenus.

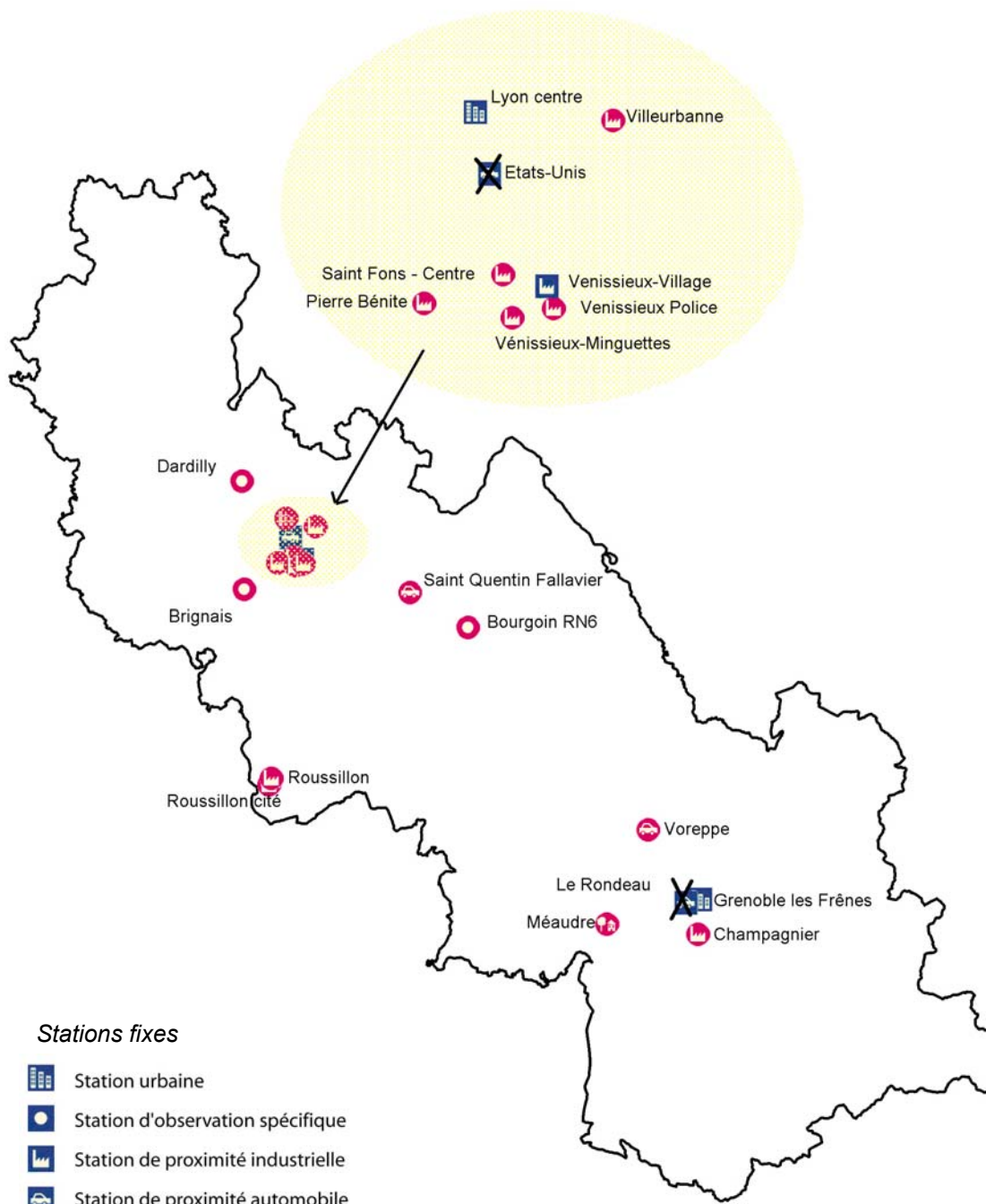
- **Sites surveillés**

Les sites ont été initialement choisis dans le cadre du programme pilote. Les résultats obtenus ont conduit à compléter les investigations sur d'autres types de sites, notamment urbain et industriel. Des études complémentaires sont réalisées à partir de moyens mobiles





Site	Typologie ⁱⁱ	Agglomération Département	Adresse	Latitude (DMS)	Longitude (DMS)	Altitude (mètres)	Début/Fin mesures des HAP	Autres paramètres mesurés
 Grenoble les Frênes	Urbain	Grenoble Isère	Ecole Les Frênes 1, allée Pelouse La Villeneuve 38100 Grenoble	45°09'41"	05°44'07"	214	Début : 29/11/2004 Fin : en cours	C ₆ H ₆ , C ₇ H ₈ , NO, NO ₂ , PM ₁₀ , PM _{2,5} , SO ₂
 Le Rondeau	Trafic	Grenoble Isère	Rue Tremblay 38130 Echirolles	45°09'31"	05°42'15"	255	Début : 09/11/2001 Fin : 22/01/2005	C ₆ H ₆ , C ₇ H ₈ , CO, NO, NO ₂ , PM ₁₀ , PM _{2,5} , SO ₂ Comptage véhicules jusqu'en juin 2003 Vitesse et direction du vent
 Etats-Unis	Trafic	Lyon Rhône	37, rue Audibert et Lavirotte 69 008 Lyon	45°44'18"	04°51'37"	172	Début : 27/12/2001 Déplacement en 2007 vers Lyon centre	PM ₁₀ , SO ₂
 Vénissieux village	Industriel	Lyon Rhône	39, bd Laurent Gérin 69200 Vénissieux	45°42'14"	04°53'01"	160	Début : 21/04/2004 Fin : en cours	SO ₂

Sites de surveillance des HAP - Départements de l'Isère et du Rhône

La surveillance des HAP dans l'Isère et le Rhône en 2006






Stations fixes

-  Station urbaine
-  Station d'observation spécifique
-  Station de proximité industrielle
-  Station de proximité automobile

 Station supprimée

Stations temporaires

-  Station d'observation spécifique
-  Station de proximité industrielle
-  Station de proximité automobile

Conformément au Plan de Surveillance de la Qualité de l'Air établi pour la région Rhône-Alpes (PSQA), en complément des sites de surveillance continue, des campagnes de mesures sont programmées sur le reste du territoire. Ces dernières sont réalisées en application du PSQA ou dans le cadre d'études spécifiques d'amélioration des connaissances dans des zones d'exposition spécifiques :

- La proximité industrielle :
 - Etude des zones industrielles multi-émettrice de la région Rhône-Alpes : sud Lyonnais (69), zone de Roussillon (38), sud Grenoblois (38) en 2006/2007 (partenaire : DRASS Rhône-Alpes).
- La proximité automobile :
 - Etude dans le cadre de projets routiers A89 et A45 dans le Rhône ou RN6 en Isère (partenaire : DRE Rhône-Alpes ou DDE)
 - Collaboration dans le cadre de l'étude de traceurs /indicateurs de la proximité automobile. Programme Primequal proposé par les laboratoires LGGE Grenoble, LCE Marseille, LACE Villeurbanne, LCME Chambéry.
- Le milieu rural et urbain :
 - Etude dans le parc régional du Vercors à Méaudre (partenaire : LCSQA)
 - Mesures spécifiques dans le cadre de l'étude INERIS/CITEPA sur l'étude de traceurs liés au chauffage au bois.

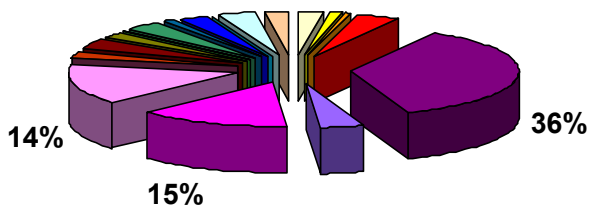
3 RESULTATS DES CONCENTRATIONS DE HAP DANS L'AIR AMBIANT DES DEPARTEMENTS DE L'ISERE ET DU RHONE

Une première analyse vise à étudier les profils de concentration de différents sites de mesures afin d'identifier les composés HAP majoritaires et d'observer la relation entre la proportion des différents HAP et les types ou la localisation géographique des sites de mesure.

3.1 Profils des HAP mesurés en fonction des typologies de sites

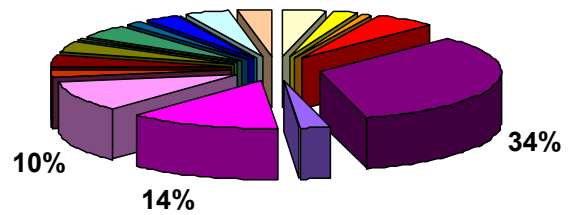
Proximité automobile (Grenoble)

Proportion HAP Le rondeau 2004



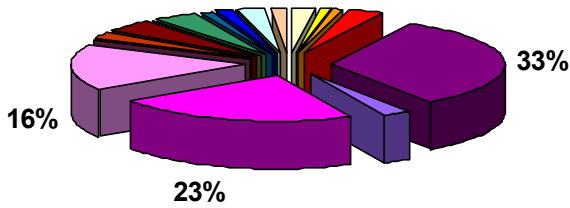
Zone urbaine (Grenoble)

Proportion HAP les Frênes 2005



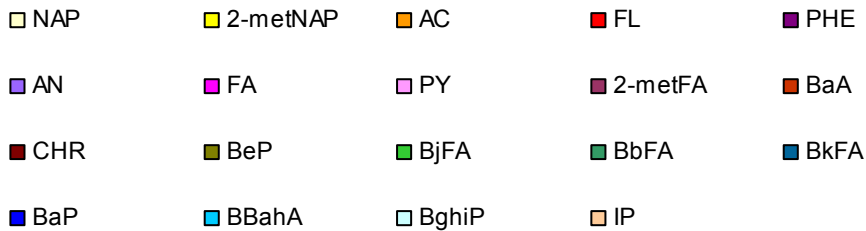
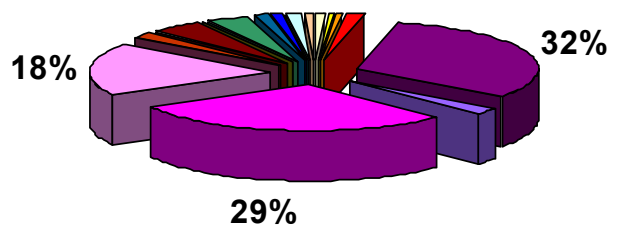
Proximité automobile (Lyon)

Proportion HAP Etats-Unis 2004



Zone industriel (Lyon)

Proportion HAP Vénissieux 2005



Les graphiques précédents représentent la proportion moyenne de chaque HAP mesuré pour les sites de mesure :

- en proximité automobile (dit « trafic »),
- en proximité industrielle,
- en milieu urbain,

Les profils de concentrations de HAP sont sensiblement identiques sur l'ensemble des sites. Le composé léger majoritaire est le Phénanthrène (PHE) suivi du Fluoranthène (FA) et du Pyrène (PY). Ces 3 composés représentent environ 70% de la moyenne des concentrations de HAP.

Il faut souligner toutefois une différence de proportions des concentrations moyennes de certains HAP en fonction de la typologie ou de la localisation géographique du site. Par exemple, il existe un écart de proportion de Fluoranthène entre les 2 sites « trafic » (23 % des HAP pour la station lyonnaise Etats-Unis contre 15% pour celle de Grenoble Le Rondeau).

Le profil des concentrations moyennes de HAP sur le site « trafic » de Grenoble « Le Rondeau » se rapproche du site urbain de Grenoble « Les Frênes », alors que le profil du site lyonnais « Etats-Unis » est semblable à celui du site de proximité industrielle « Vénissieux ».

Ceci peut s'expliquer par le fait que par vent de sud le site Etats-Unis subit l'influence des émissions industrielles en provenance de Vénissieux.

Une analyse plus spécifique de cette influence, prenant en compte les facteurs météorologiques, est réalisée dans le chapitre (3.4.1) de ce rapport.

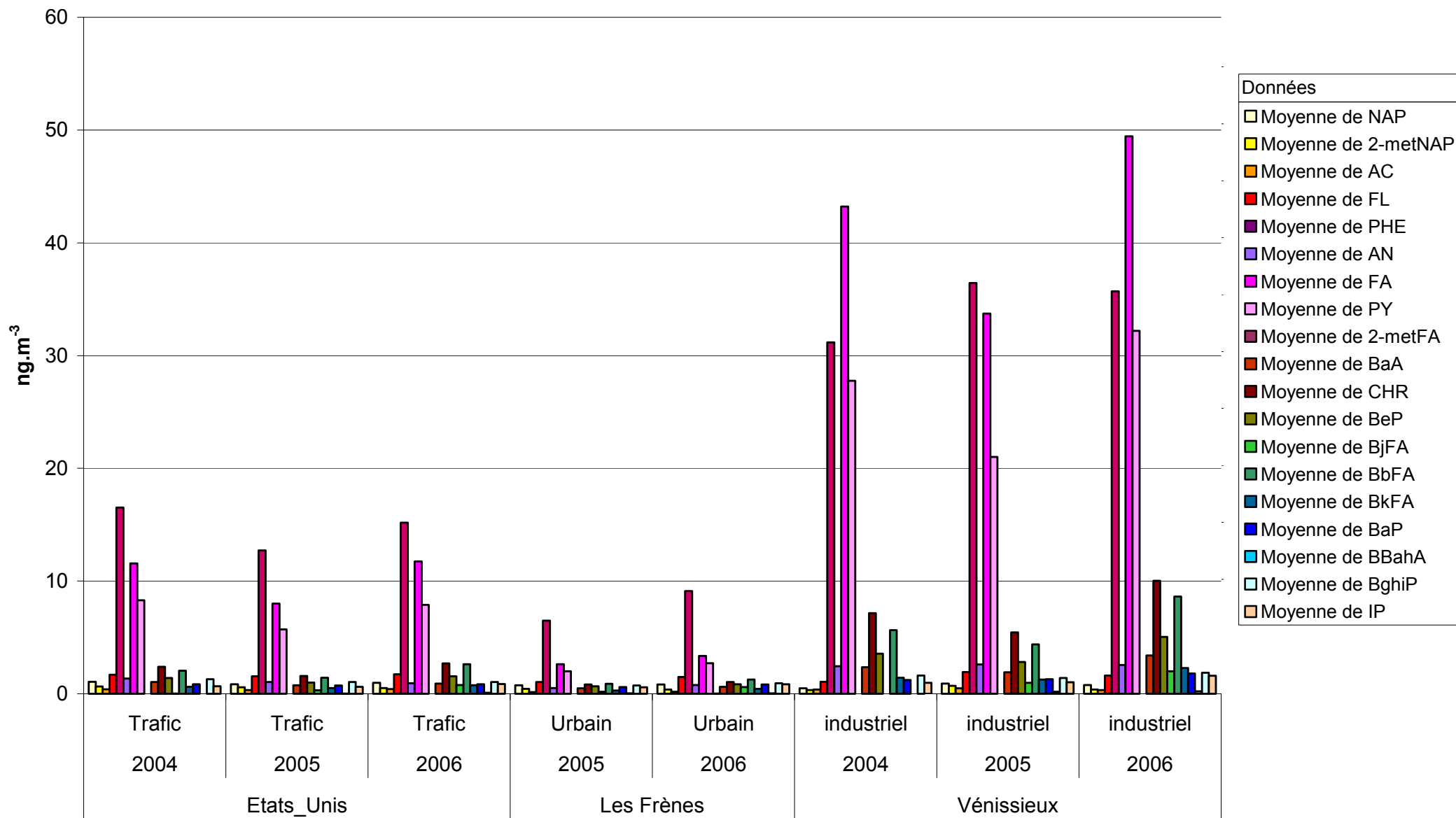
3.2 Relations entre concentrations de HAP et types d'exposition

Le graphique suivant représente les concentrations moyennes de HAP sur les sites « **trafic** » (Lyon Etats-Unis), « **industriel** » (Vénissieux) et « **urbain** » (Grenoble Les Frênes) pour les années 2004, 2005 et 2006. Les concentrations moyennes les plus élevées sont observées pour le PHE, le FA et le PY pour l'ensemble des typologies de sites.

Les mesures sur le site de Vénissieux, à proximité directe d'un émetteur connu de HAP, sont nettement supérieures aux autres stations de surveillance « urbaines » et « trafic » à l'exception des 3 composés : NAP, 2-metNAP et AC pour lesquelles les concentrations sont équivalentes aux autres sites.

Les concentrations à Vénissieux pour les 3 HAP majoritaires (le PHE, le PY et le FA) sont 3 à 4 fois plus élevées que sur un site trafic et de 6 à 13 fois plus élevées que sur un site urbain.

Comparaison des concentrations moyennes de HAP par typologie



3.3 Evolution annuelle : HAP totaux¹ et B(a)p

La directive européenne du 15 décembre 2004 (2004/107/CE) dresse une liste de composés à suivre obligatoirement (cf chapitre 1.3). La valeur cible de 1 ng.m^{-3} (moyenne annuelle) fixée pour 2012 ne concerne que le benzo(a)pyrène, HAP traceur du risque cancérigène.

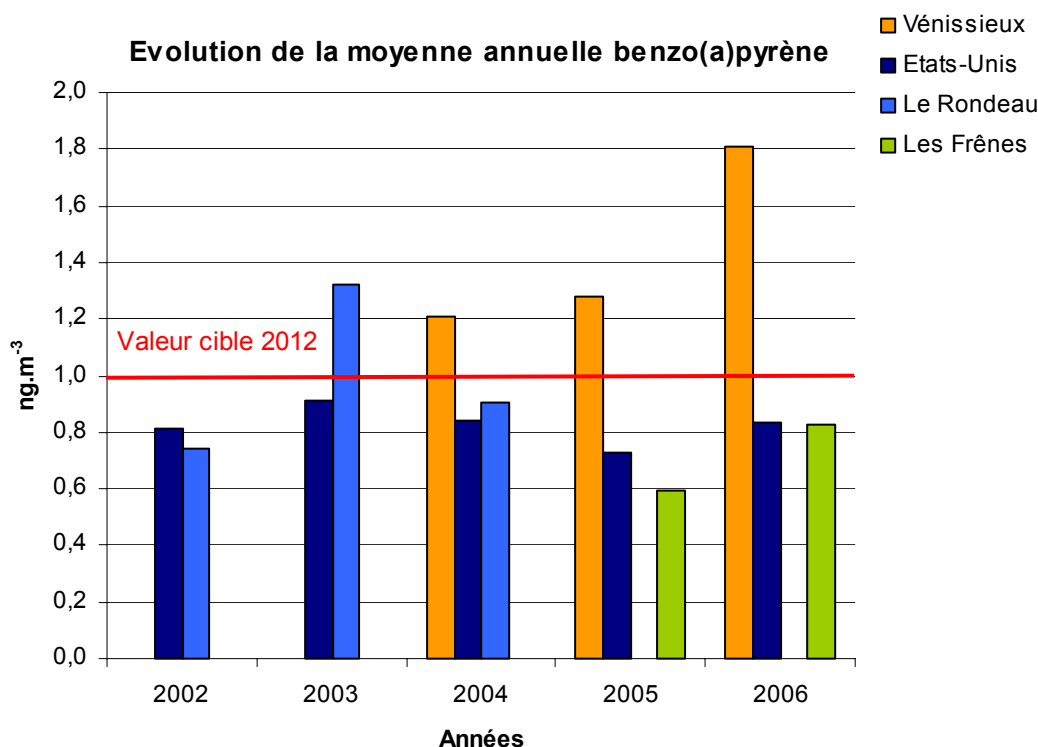
3.3.1 Evolution de la moyenne annuelle de benzo(a)pyrène par rapport à la valeur réglementaire

Le graphique suivant présente l'évolution de la moyenne annuelle de benzo(a)pyrène de 2002 à 2006 pour l'ensemble des sites fixes de Grenoble et Lyon, au regard de la valeur cible de 2012.

La valeur cible est dépassée systématiquement sur le site « industriel » de Vénissieux depuis 2004 et l'a été une fois en 2003 en proximité automobile à Grenoble (Le Rondeau).

Les mesures du Rondeau ont été arrêtées en 2005 pour 2 raisons principales :

- Une réorientation de la surveillance avec mise en place du site urbain les Frênes, plus représentatif de l'exposition moyenne de la population ;
- Un manque de financement pour conserver deux sites de mesures.



En proximité automobile : Le site trafic Etats-Unis respecte la valeur cible depuis 2002 sans réelle tendance. Le site grenoblois Le Rondeau se distingue en 2003 par un dépassement de la valeur cible mais reste similaire au site Etats-Unis en 2002 et 2004 (mesure arrêtée en 2005).

En moyenne les mesures de B(a)p sont plus élevées sur le site trafic du Rondeau que sur celui d'Etats-Unis, et cela en raison très probablement d'un trafic plus important sur le site grenoblois du Rondeau (environ 90 000 véhicules jour contre environ 20 000 autour du site Etats-Unis).

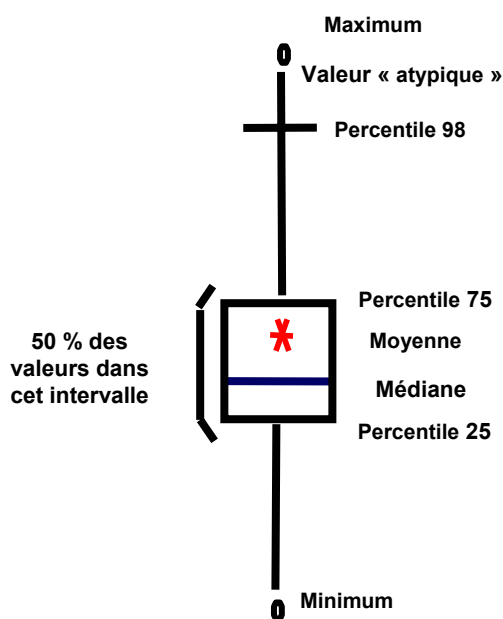
En proximité industrielle, le site de Vénissieux (mis en service en avril 2004) présente des concentrations qui dépassent la valeur cible imposée en 2012. Les niveaux sont sensiblement supérieurs aux autres sites et les concentrations tendent à augmenter sur les 3 années de mesures pour le BaP.

¹ **HAP totaux** : Concentration moyenne de la somme des HAP

En site urbain de fond (Grenoble Les Frênes), depuis 2005, les moyennes annuelles respectent la valeur cible, cependant la moyenne annuelle 2006 est plus élevée et pratiquement égale à celle d'un site trafic (Lyon Etats-Unis)

3.3.2 Etude de la distribution des valeurs de BaP

La représentation utilisée pour étudier la distribution des valeurs de BaP est dérivée de la « boîte à moustaches » (traduction française du terme « Box and Whiskers Plot », ou en abrégé « Box Plot ») qui est une représentation graphique de quelques paramètres décrivant la distribution d'une variable (inventé en 1977 par J.W Tukey).

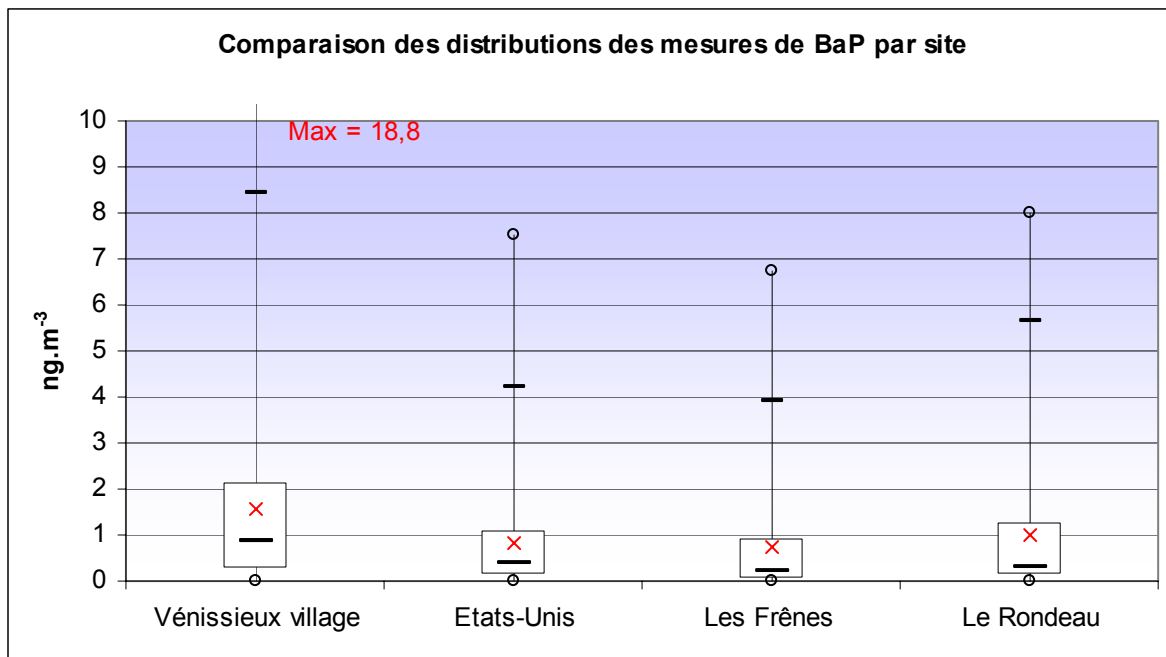


- Les 1^{er} et 3^{ème} quartiles (P25 et P75) représentent les bords inférieur et supérieur de la boîte rectangulaire
 - P25 correspond à 25% des effectifs
 - P75 correspond à 75% des effectifs
 La hauteur de cette boîte (écart interquartile) est un indicateur de la dispersion). Il correspond à 50% des données situées dans la partie centrale de la série statistique.
- La médiane : (trait horizontal bleu dans la boîte). Elle partage la distribution en 2 sous ensemble d'égal effectif.
- La moyenne : représentée par le signe x
- La « moustache » supérieure (trait horizontal, en dehors de la boîte) est basée sur le percentile 98. Une valeur est atypique si elle dépasse le percentile 98.
- Les minimum et maximum : valeurs extrême en forme de cercle 0. Si le mini ou le maxi n'est pas confondu avec le tiret d'extrémité de la moustache, il s'agit d'une valeur atypique.

Les figures ci-dessous présentent la distribution des valeurs de BaP pour les sites suivants :

- Vénissieux Village (valeurs de avril 2004 à 2006)
- Etats-Unis (Valeurs de 2002 à 2006)
- Le Rondeau (Valeurs de 2002 à 2004)
- Les Frênes (Valeurs de 2005 à 2006)

ng.m ⁻³	Vénissieux village	Etats-Unis	Les Frênes	Le Rondeau
Moyenne	1,55	0,83	0,75	0,99
Médiane	0,88	0,37	0,22	0,32
Max	18,81	7,51	6,76	8,02
Min	0	0,01	0	0,02
P 25	0,25	0,12	0,06	0,12
P 75	2,11	1,1	0,91	1,25
P 98	8,44	4,18	3,9	5,64



La comparaison des distributions des mesures de BaP en fonction de la typologie des sites met en évidence une différence notable entre le site industriel (Vénissieux Village) et les autres typologies de sites (trafic et urbain).

En effet, sur le site de « Vénissieux Village » tous les paramètres décrivant la distribution sont nettement plus élevés que sur les autres sites.

- Environ 50 % des valeurs sur le site de Vénissieux sont supérieures au seuil de 1 ng.m⁻³ alors que sur les sites trafics environ 25 % des valeurs sont supérieures à ce seuil.

- La moyenne sur ce site est également supérieure à 1 ng.m⁻³ et 1,5 à 2 fois supérieures aux autres sites.

3.3.3 Corrélations entre HAP totaux et BaP

Le tableau suivant présente les coefficients de corrélation (R et R²) entre les données du BaP et les HAP totaux.¹

Site de mesures	Coefficient de corrélation (R) et de détermination (R ²)									
	2002		2003		2004		2005		2006	
	R	R ²	R	R ²	R	R ²	R	R ²	R	R ²
Etats-Unis	0,91	0,82	0,88	0,78	0,92	0,85	0,86	0,74	0,91	0,83
Le Rondeau	0,94	0,88	0,94	0,88	0,94	0,89				
Vénissieux					0,82	0,67	0,71	0,5	0,9	0,82
Les Frênes							0,98	0,95	0,97	0,94

Une bonne corrélation entre le BaP et les HAP totaux est observée sur la majorité des sites. Il faut toutefois souligner une moins bonne corrélation sur le site de Vénissieux en 2004 et 2005, probablement due à des émissions industrielles perturbant les corrélations habituellement rencontrées en milieu urbain.

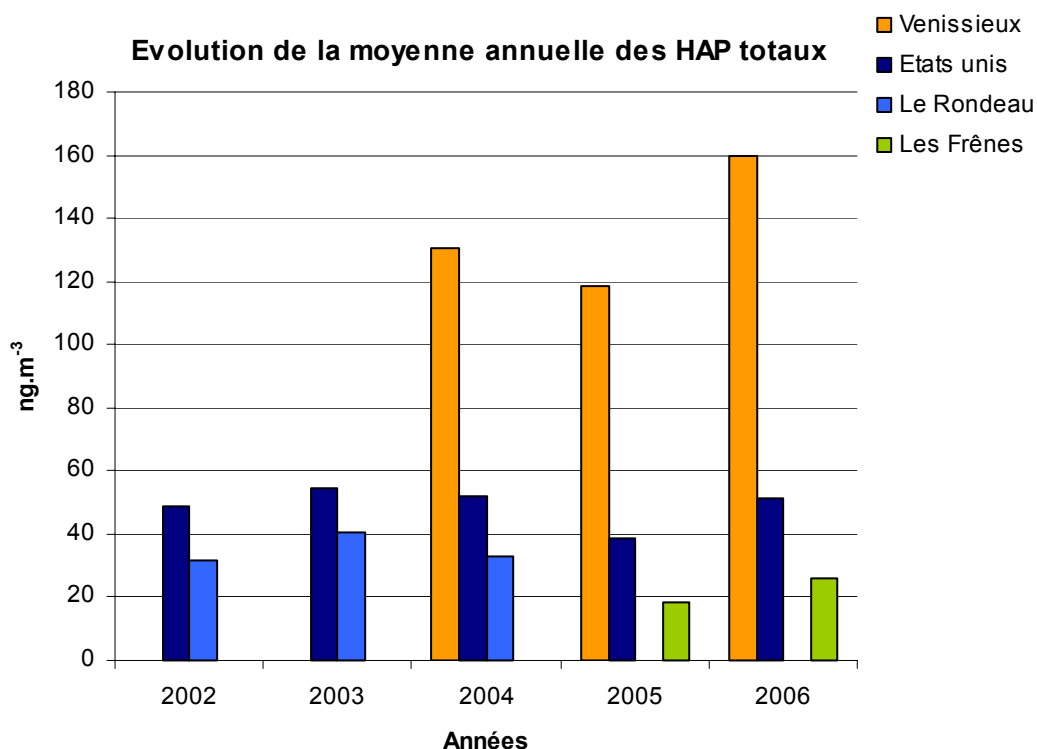
Compte-tenu de ces résultats, le BaP reste cependant un bon traceur des HAP totaux.

¹ **Coefficient de corrélation** : Mesure l'intensité de la liaison entre deux caractères quantitatifs

Coefficient de détermination : Carré du coefficient de corrélation. Il traduit la qualité d'une régression en mesurant la part de l'information totale prise en compte par le modèle de régression

Le graphique suivant présente l'évolution des moyennes annuelles des HAP totaux.

- En proximité automobile et en site urbain de fond, les mêmes tendances que pour le BaP sont observées. En revanche, les mesures de HAP totaux sur le site d'Etats-Unis sont plus élevées que sur celui du Rondeau, contrairement à ce qui a été observé sur les niveaux de BaP. Une source d'émission spécifique est probablement la cause de cette différence. (cf chapitre 3.4.1).
- En proximité industrielle, en comparaison du BaP, le site de Vénissieux présente également des concentrations moyennes élevées par rapport aux sites de proximité automobile (Etats-Unis, Le Rondeau). L'évolution des HAP totaux de 2004 à 2006 diffère par rapport à celle du BaP dans le sens où la moyenne en 2005 diminue. Il convient de rappeler que la corrélation entre le BaP et les HAP totaux est moins bonne en 2005, ce que confirme le graphique.



3.3.4 Comparaison des concentrations de BaP avec l'agglomération parisienne (moyenne annuelle)

			Concentrations de BaP ng.m ⁻³			
AASQA	Stations de mesures	Typologie	2002	2003	2004	2005
AIRPARIF (Paris)	Gennevilliers	urbain (industrielle)	0,31	0,34	0,34	0,45
	Paris 1er Les Halles	urbain	nr	0,23	0,2	0,23
	Vitry-sur-Seine	urbain	nr	0,25	0,23	0,34
	Boulevard périphérique Auteuil	trafic	0,68	0,68	0,66	0,67
COPARLY (Lyon)	Etats Unis	trafic	0,82	0,92	0,84	0,73
	Vénissieux	industrielle			1,21	1,28
ASCOPARG (Grenoble)	Le Rondeau	trafic	0,74	1,32	0,90	
	Les Frênes	urbain				0,59

nr = non renseigné

La comparaison des moyennes de BaP de 2002 à 2005 entre les sites parisiens, lyonnais et grenoblois met en évidence :

- des concentrations moyennes plus élevées en proximité automobile sur les sites grenoblois et lyonnais par rapport au site parisien du boulevard périphérique d'Auteuil. Ce dernier présente pourtant un trafic automobile 2.7 fois plus élevé que celui du Rondeau (246 439 contre 90 000 véhicules par jour en 2004).
- des concentrations moyennes plus élevées également en site urbain de fond (Grenoble les Frênes)

Ces résultats permettent d'envisager l'existence d'autres sources d'émissions de HAP sur Lyon et Grenoble influant sur les concentrations en HAP toutes typologies confondues.

Ces 2 agglomérations apparaissent comme particulièrement sensibles à la pollution par les HAP. Plusieurs sources peuvent être à l'origine de ces niveaux de concentrations élevés :

- Les émissions industrielles ;
- Le chauffage domestique (bois, fioul) ;
- Le développement des chaufferies Bois.

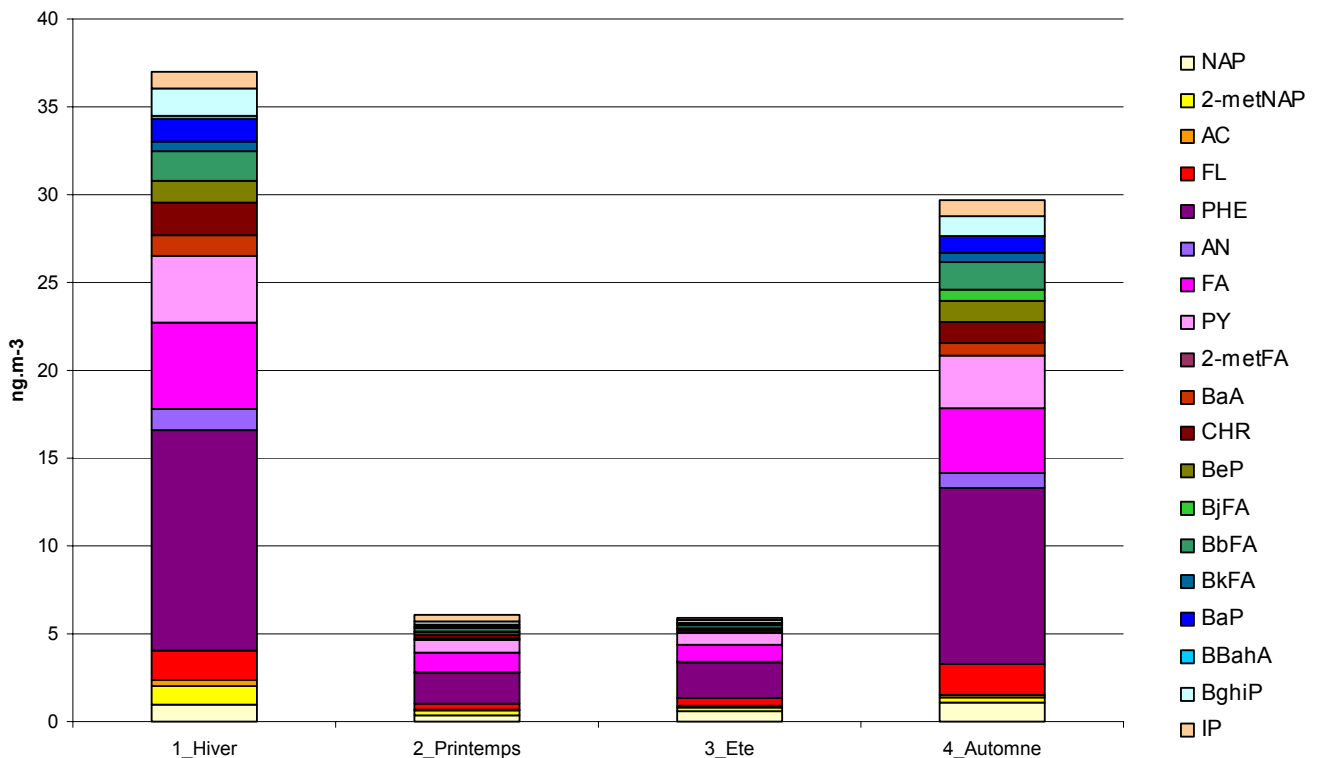
Une analyse plus spécifique de l'influence de ces sources est réalisée dans la suite de ce rapport.

3.3.5 Profil moyen saisonnier¹

L'objectif est d'étudier l'évolution des concentrations moyennes de HAP au cours de l'année entre les différentes typologies de site.

• En site urbain de fond

Cumul des concentrations moyennes en HAP sur le site de Grenoble les Frênes en 2005



¹ Saison hiver : 01/01/0x au 31/03/200x
 Saison printemps : 31/03/0x au 30/06/0x
 Saison été : 30/06/0x au 30/09/0x
 Saison automne : 30/09/0x au 31/12/0x

Les concentrations moyennes de HAP sont plus élevées en hiver et automne pour l'ensemble des composés HAP.

Ce phénomène peut s'expliquer principalement par :

- L'augmentation des émissions due au démarrage du chauffage individuel et collectif,
- Une plus grande stabilité des basses couches de l'atmosphère en période hivernale qui limite la dispersion des polluants (inversion de température)
- Les processus de dégradation des HAP qui sont moins importants l'hiver.

En effet, en été, l'augmentation de l'activité photochimique liée à un fort ensoleillement augmente la vitesse de dégradation des HAP. Cependant La réactivité photochimique des HAP varie selon les composés.

Le graphique suivant présente le rapport entre l'hiver et l'été pour chacun des composés HAP suivant différentes typologies.

- L'antracène, le benzo(a)pyrène et le benzo(a)anthracène présentent un rapport élevé entre l'hiver et l'été quelle que soit la typologie du site, ce qui met en évidence une forte réactivité de la part de ces polluants.

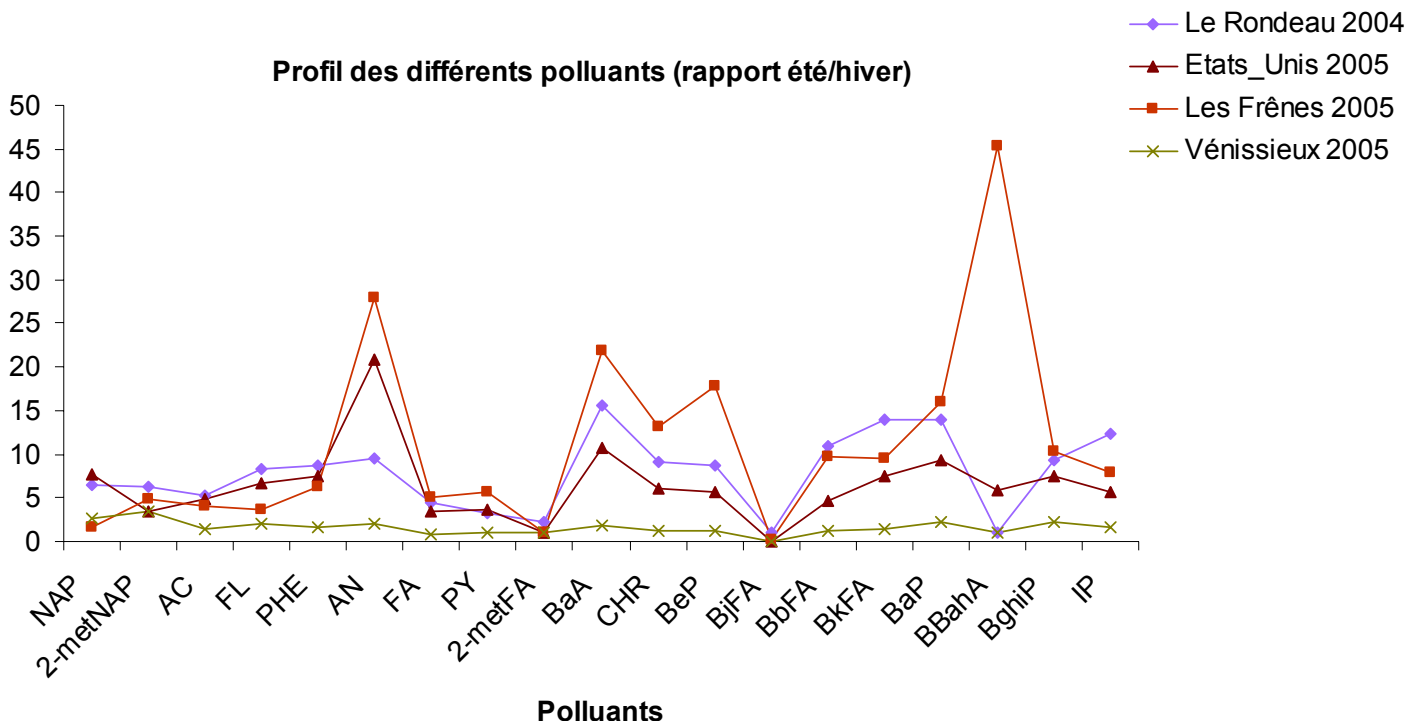
- Le fluoranthène, le pyrène semblent moins réactifs car ils présentent des rapports moins élevés entre les 2 saisons.

- Le rapport est plus élevé pour la majorité des composés en sites urbain de fond lié à des écarts plus importants entre les niveaux de concentrations l'hiver et l'été.

- Le rapport est également plus élevé sur le site trafic du Rondeau en comparaison à celui d'Etats-Unis. Ceci s'explique par les niveaux de concentrations de HAP plus élevés l'été sur le site Etats-Unis en raison très probablement de l'influence d'une source fixe d'émission de HAP et du trafic moins dense l'été sur Grenoble.

- Le rapport hiver/été sur le site de Vénissieux est faible et varie peu en fonction des composés de HAP.

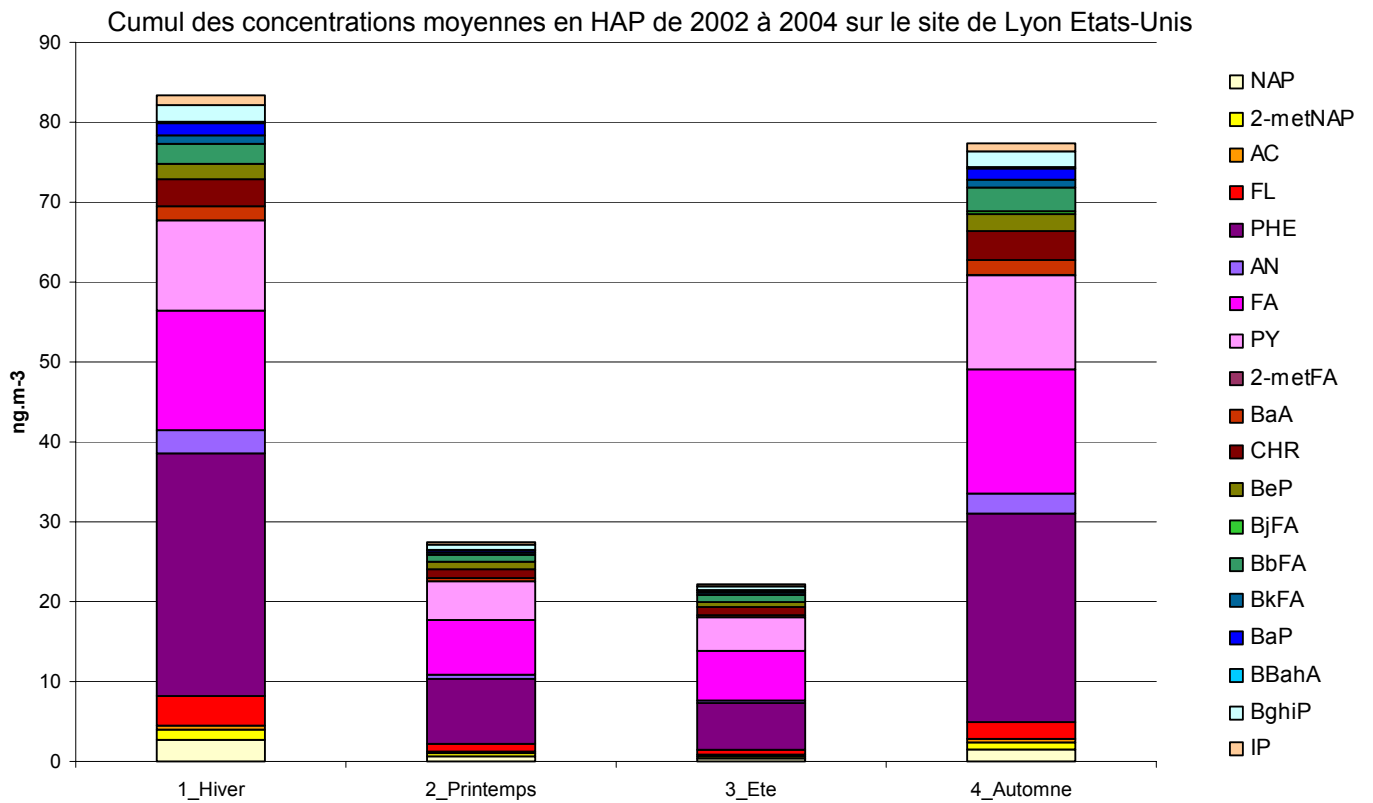
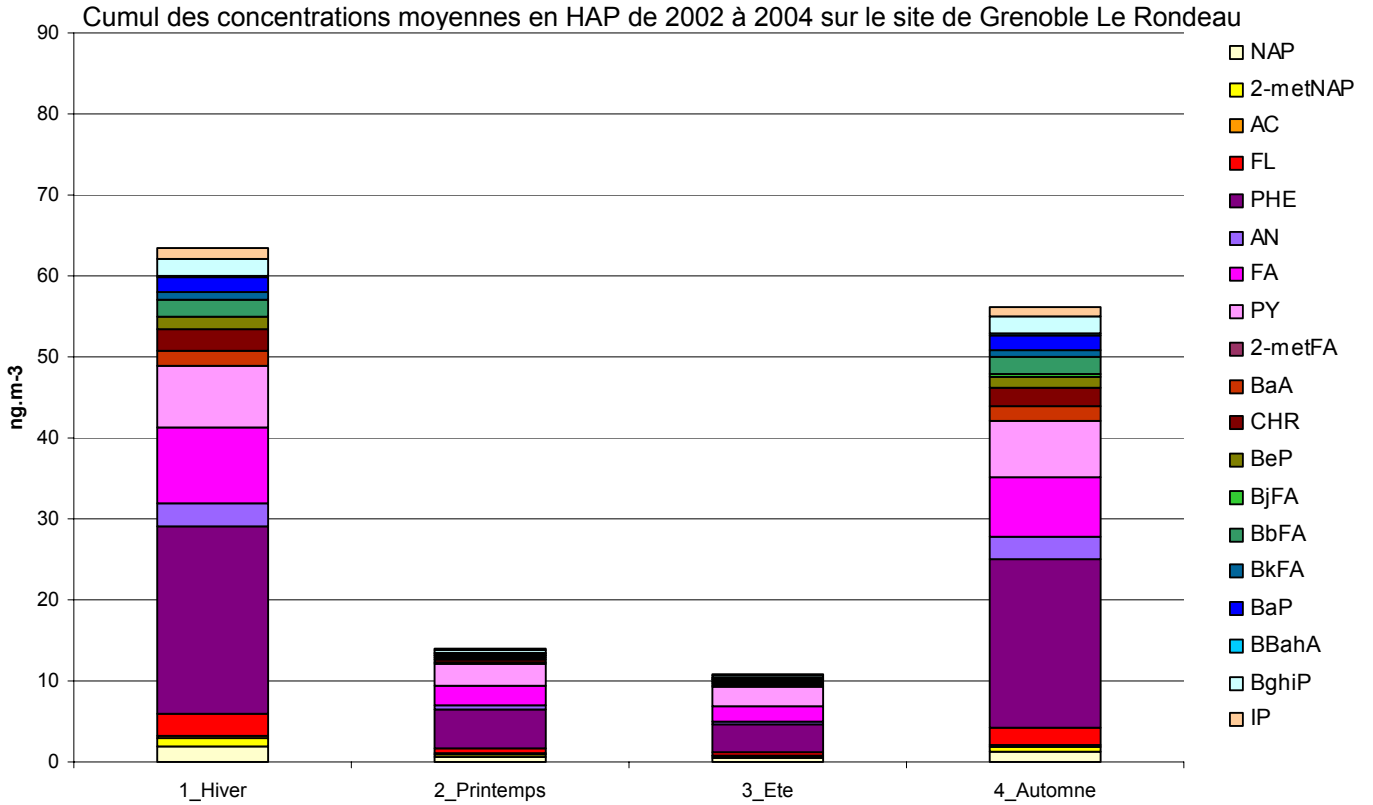
Ce résultat peut s'expliquer par une plus faible dégradation des polluants due à la proximité de l'émetteur industriel et /ou l'importance des émissions.



NB : Le rapport été/hiver du BBahA sur le site des frènes est élevé car amplifié en raison de faibles valeurs estivales très souvent proches du seuil de détection.

• **En Proximité automobile**

Comparaison des concentrations moyennes saisonnières de HAP entre les sites trafics du Rondeau et Etats-Unis.

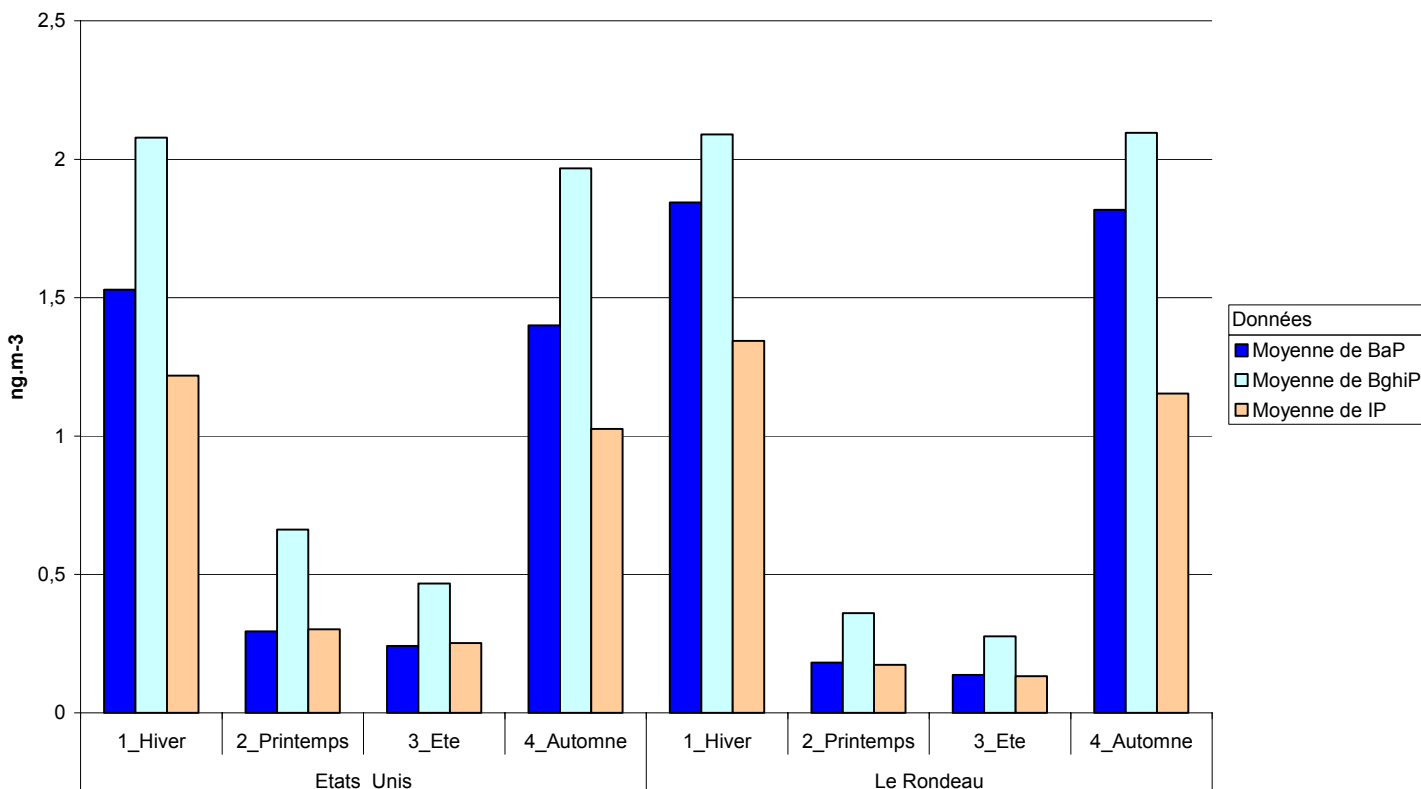


Comme sur le site urbain de Grenoble les Frênes, les concentrations moyennes de HAP sur des sites trafics sont nettement plus élevées l'hiver et l'automne que le printemps et l'été.

La comparaison du cumul des concentrations moyennes en HAP entre les sites trafics Etats-Unis et Le Rondeau met en évidence que :

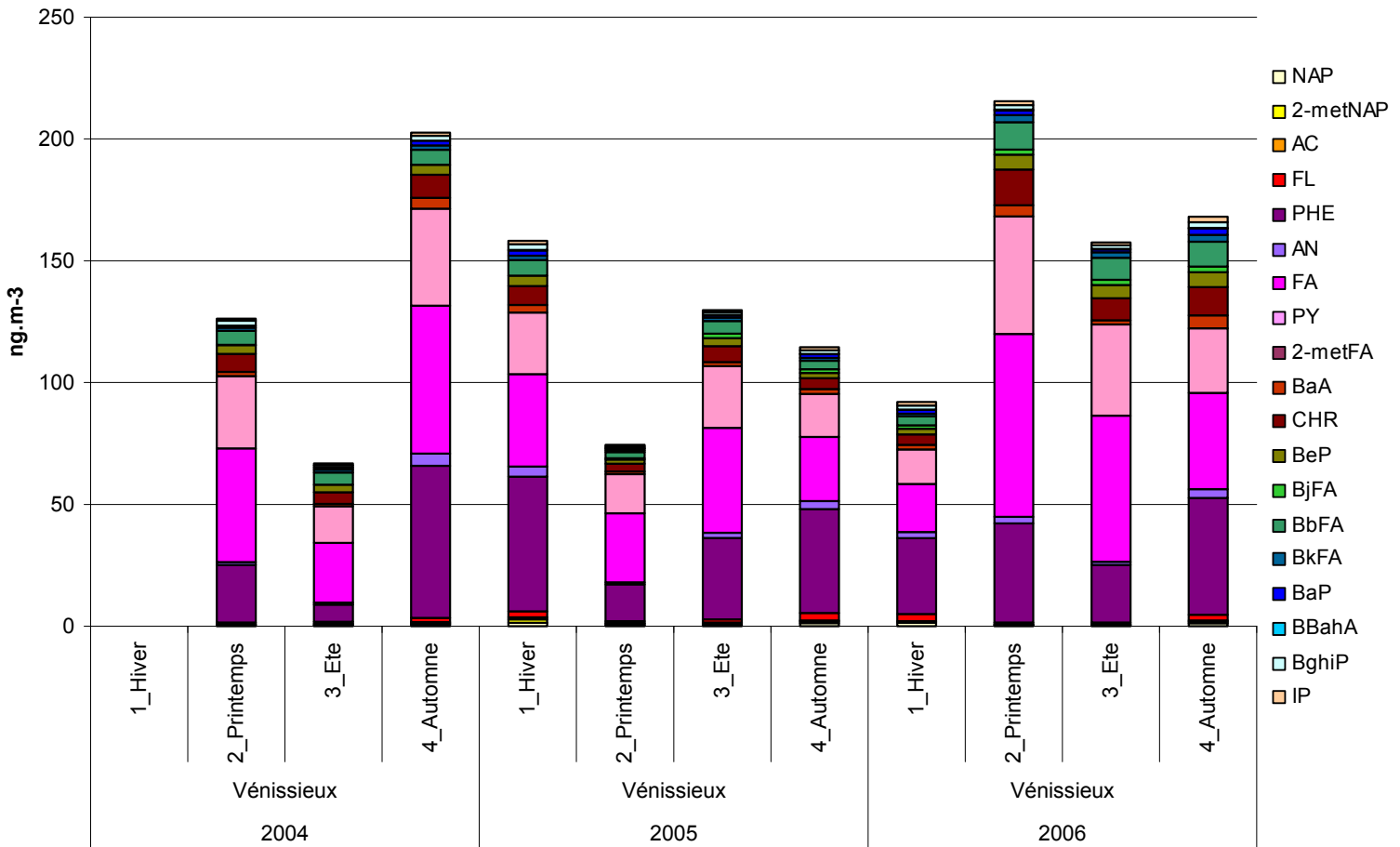
- Le PHE est un composé majoritaire sur les 2 sites. Les concentrations moyennes de FA et PY semblent équivalentes sur le site du Rondeau (FA légèrement supérieur l'hiver) alors que sur le site Etats-Unis les valeurs de FA sont plus élevées que le PY.
- Les concentrations moyennes de PHE, FA, PY, CHR, BbFA, BeP sont supérieures sur le site Etats-Unis par rapport au Rondeau pour toutes les saisons et les 3 années bien que le trafic routier autour du site Etats-Unis soit 4 fois moins élevés que celui du Rondeau. Par conséquent d'autres sources d'émission de HAP influent sur les niveaux de concentrations de HAP mesurés à Etats-Unis.
- Les concentrations moyennes de BaP, IP, BghiP sont plus élevées l'hiver et l'automne sur le site du Rondeau par rapport à Etats-Unis comme le montre plus précisément le graphique suivant. La tendance s'inverse au printemps et l'été, les concentrations sont plus élevées sur le site Etats-Unis probablement en raison :
 - du trafic moins dense l'été sur Grenoble au niveau du Rondeau ;
 - de l'influence d'une autre source qui perdure toute l'année sur Etats-Unis.
- Les variations saisonnières concernant le BbahA, BjFA, 2-metFA sont peu visibles en raison de leurs faibles concentrations.

Comparaison des concentrations moyennes de BaP, BghiP et IP de 2002 à 2004 entre les sites trafics Etats-Unis et le Rondeau



• **En Zone industrielle**

Cumul des concentrations moyennes en HAP de 2004 à 2006 sur le site de Lyon Vénissieux



La comparaison des concentrations moyennes de HAP sur le site de Vénissieux ne met pas en évidence la variation saisonnière observée sur les sites trafics et urbain. Contrairement aux sites trafic du Rondeau et urbain des Frênes, les concentrations moyennes de FA, CHR, BbFA, BeP, PY sont élevées durant l'été sur le site de Vénissieux. En effet en 2005, les concentrations moyennes estivales se rapprochent et même dépassent (cas du FA et du PY) les concentrations moyennes hivernales. En 2006, les concentrations moyennes estivales concernant ces composés sont largement supérieures aux concentrations moyennes de l'hiver. Cette tendance s'observe également sur les concentrations moyennes printanières.

Concentrations moyennes	2005 Vénissieux		2006 Vénissieux		2005 Les Frênes	
	Eté	Hiver	Eté	Hiver	Eté	Hiver
FA	43,01	37,88	59,9	19,71	0,96	4,91
PY	25,39	25,33	37,58	14,22	0,66	3,8
CHR	6,52	7,85	9,06	4,22	0,14	1,85
BbFA	5,27	6,32	9,05	3,78	0,17	1,68
BeP	3,37	4,26	5,42	2,39	0,07	1,24

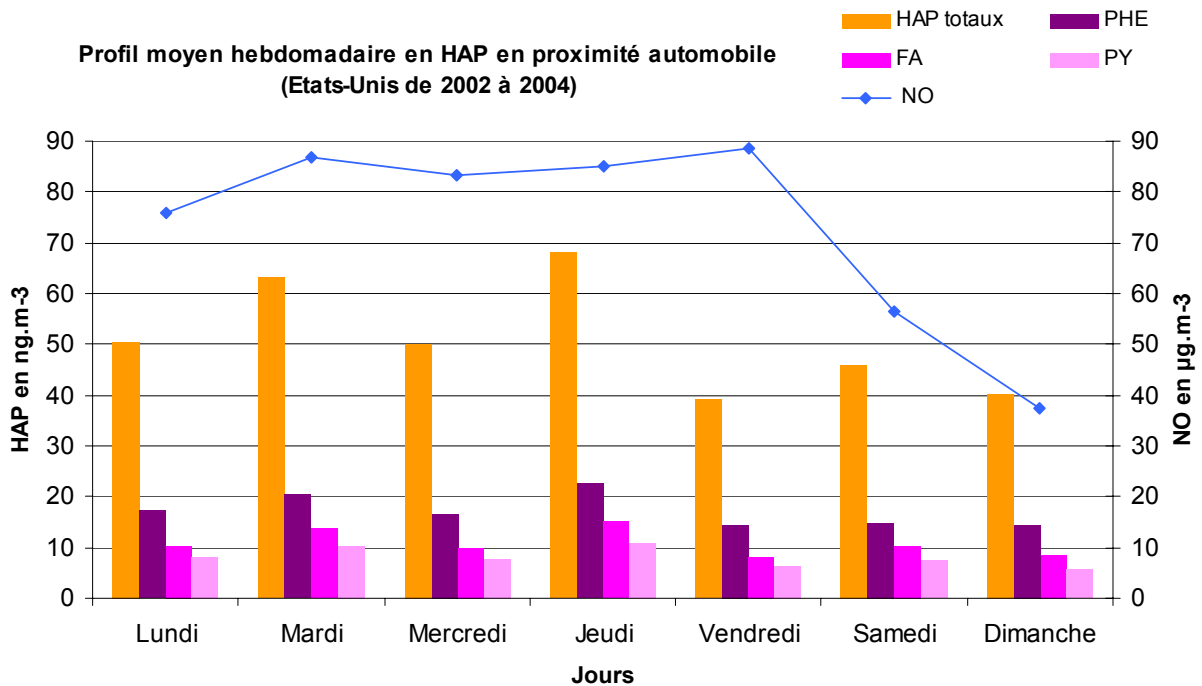
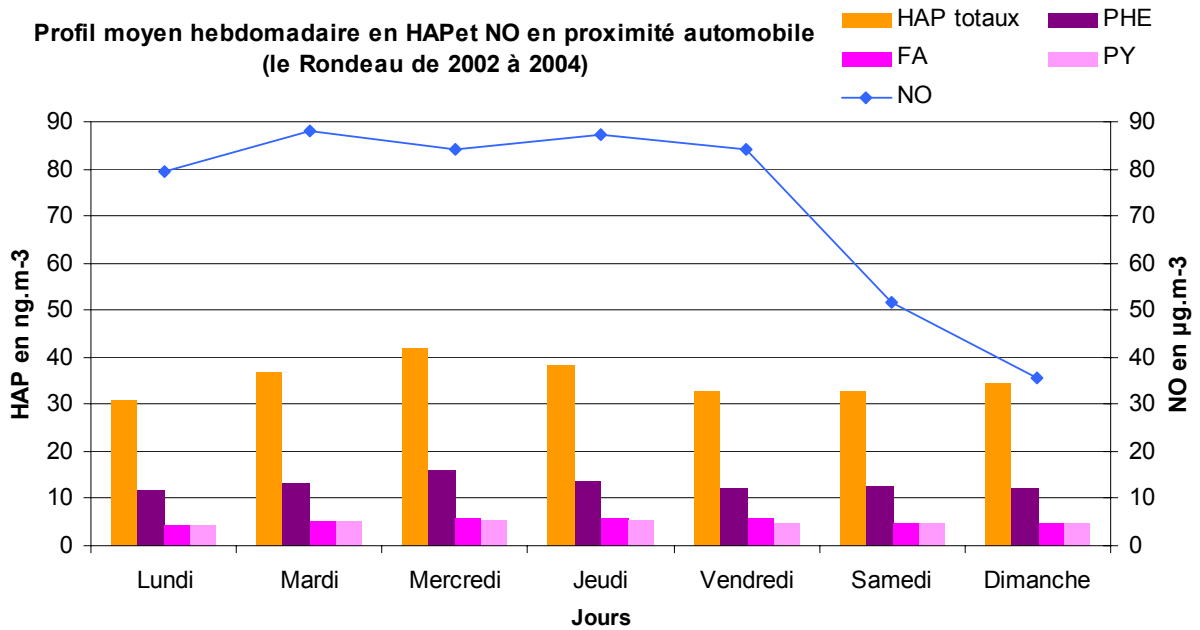
Ces résultats s'expliquent majoritairement par l'activité continue d'un émetteur industriel d'émissions de HAP situé à proximité du site de mesure de Vénissieux. Ils mettent également en évidence l'importance des émissions de HAP de cet émetteur.

3.3.6 Profil moyen hebdomadaire

- **En proximité automobile**

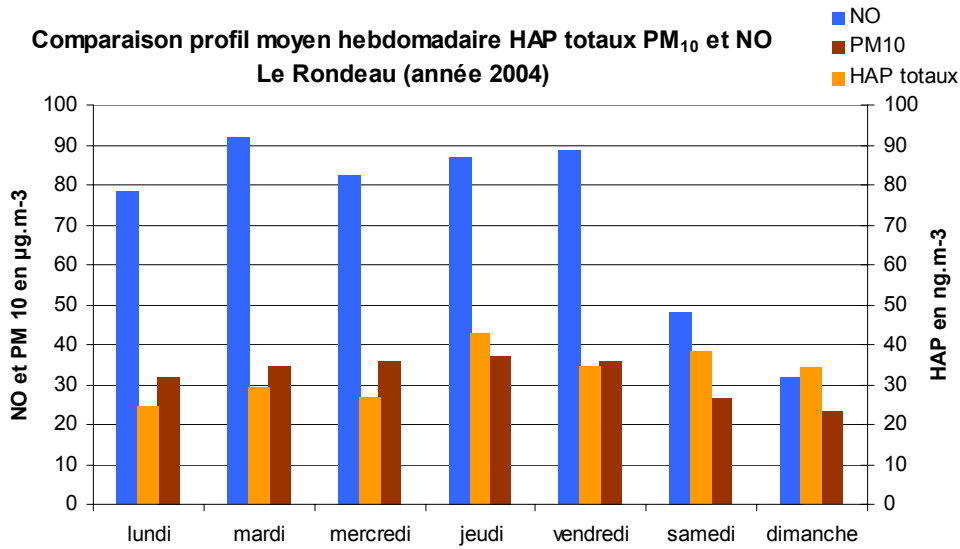
Les graphiques suivants comparent les profils moyens hebdomadaires en proximité automobile entre le monoxyde d'azote (NO), marqueur de la pollution d'origine automobile, les HAP totaux et les trois principaux HAP. L'objectif est d'étudier l'influence du trafic automobile sur les concentrations de HAP.

Le profil moyen hebdomadaire des HAP est peu marqué en comparaison au NO. La baisse des concentrations de NO le week-end montre l'influence des variations hebdomadaires liées au trafic automobile. En revanche, une faible diminution des concentrations de HAP est observée le week-end. Les concentrations de HAP sont maximales le mercredi sur le site de Grenoble Le Rondeau, diminuent légèrement en fin de semaine et ont tendance à augmenter légèrement le dimanche. Par ailleurs, les profils entre les 2 sites trafic ne sont pas identiques. Les concentrations de HAP sur le site Etats-Unis ont tendance à diminuer le mercredi, le vendredi et le dimanche.



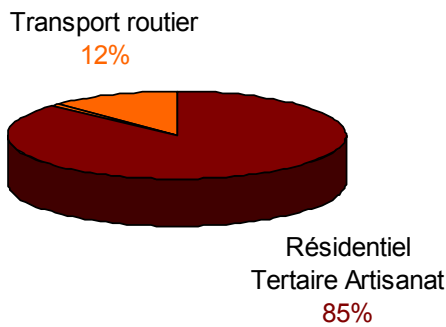
Le graphique suivant compare les profils moyens hebdomadaires en proximité automobile entre le NO, les PM₁₀ et les HAP totaux.

Les HAP étant prélevés dans la fraction PM₁₀, il est assez cohérent de constater que les profils moyens hebdomadaires des HAP totaux et PM₁₀ sont assez proches malgré une diminution légèrement plus marquée des PM₁₀ le week-end.

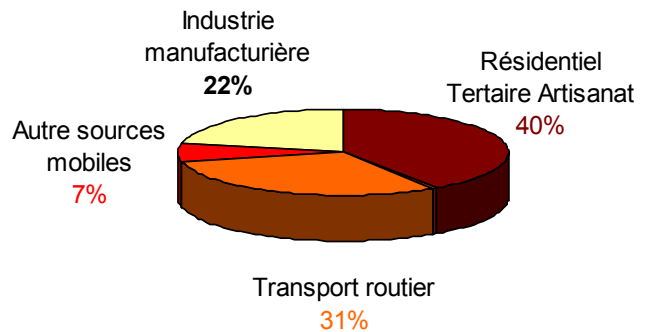


Afin de compléter les observations précédentes, les graphiques suivants présentent la part des émissions de NO_x, PM₁₀ et HAP par secteur d'activité. Il est à noter que les données d'émissions de HAP sont nationales. En effet, le cadastre des émissions de la région Rhône Alpes est actuellement en cours de réalisation.

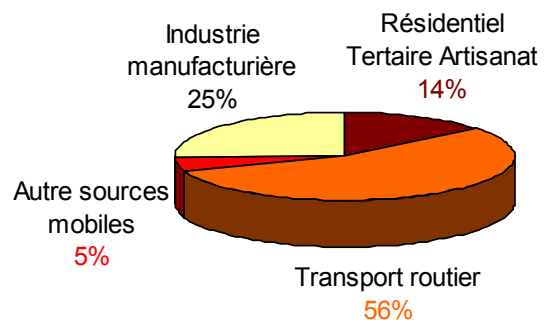
Emissions de HAP en France en 2004



Emissions de PM₁₀ à Grenoble en 2003



Emissions de NO_x à Grenoble en 2003



Ces graphiques montrent l'influence graduée du transport routier sur ces 3 polluants. La contribution de l'automobile, bien que faible par rapport aux NOx, est plus importante sur les émissions de poussières que sur les HAP.

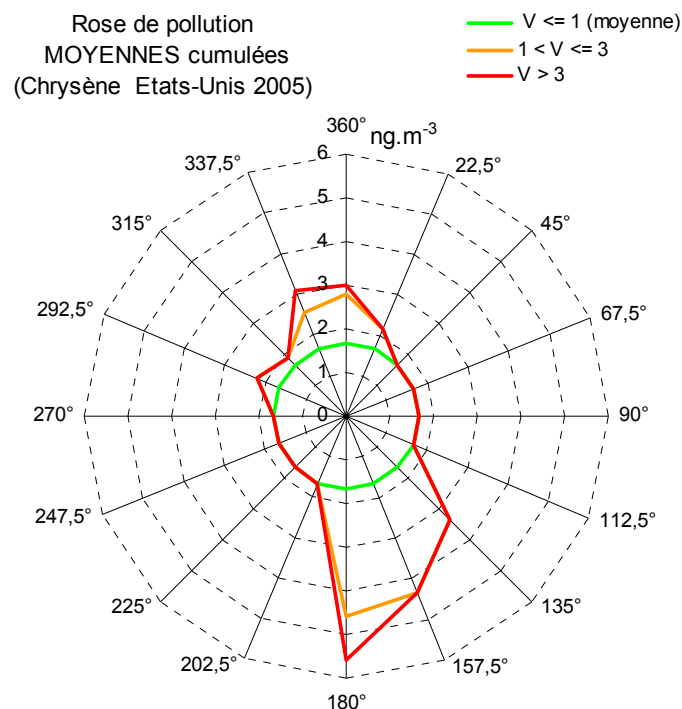
Ces résultats mettent bien en évidence le fait que les niveaux de HAP sont peu influencés par la source automobile. En effet la part du transport routier ne représente que 12% des émissions de HAP au niveau national. D'autres sources d'émissions influent davantage sur les niveaux de concentrations des HAP.

Les profils moyens hebdomadaires ci-dessus ont été tracés pour certains HAP caractéristiques d'une source. L'objectif est d'essayer d'observer leur évolution selon les jours de semaine. Il convient toutefois de préciser que cette analyse est réalisée à titre indicatif en raison du faible nombre de données disponibles sur 3 ans pour chaque jour de la semaine (environ 20 données pour chaque jour de semaine). Bien qu'il soit délicat d'en tirer des conclusions, certaines observations sont intéressantes.

- Le profil de ces polluants est peu marqué par rapport aux jours de semaine et ne suit pas systématiquement les variations du trafic. Sur le site trafic de Grenoble « Le Rondeau » des concentrations de BghiP, IP et du BaP, polluants reconnus comme traceurs de la pollution automobile à essence, augmente le week-end, ce qui est en contradiction avec l'évolution du trafic à cet endroit. Le Rondeau est probablement sous l'influence d'autres sources.
- Les concentrations de Chrysène sur le site d'Etats-Unis sont bien plus élevées et irrégulières que sur le « Rondeau », également en proximité automobile. Ce qui met en évidence une source supplémentaire de Chrysène sur le site Lyonnais, indépendante de la source automobile. Les niveaux les plus élevés sont enregistrés le lundi, le jeudi et le samedi.

Concernant le Chrysène, la rose de pollution ci-dessous présente les niveaux de concentrations sur le site d'Etats-Unis en fonction de la direction et de la vitesse des vents. Elle permet de visualiser de quelle(s) direction(s) de vent proviennent les niveaux de polluants les plus élevés.

Ainsi, les concentrations de Chrysène les plus élevées sur le site d'Etats-Unis s'observent par vent moyen à fort venant du sud. Par conséquent un ou plusieurs émetteurs potentiels de Chrysène situés au sud de la station de mesure sont probablement à l'origine des concentrations mesurées (voir ch. 3.3.1.5).



3.4 Etudes spécifiques

Le programme pilote (chap.2.2) a mis en évidence des concentrations de HAP dans l'air ambiant plus élevées par rapport à la moyenne nationale sur les mesures en proximité automobile, réalisées sur les agglomérations lyonnaise et grenobloise.

L'objectif de ce chapitre est de tenter de comprendre les raisons pour lesquelles les valeurs sont élevées à Lyon et Grenoble en essayant notamment d'identifier l'apport d'autres émetteurs potentiels de HAP (sources industrielles, chauffage au bois, etc.).

3.4.1 Etude d'une influence industrielle

Les mesures analysées sont celles de la station Vénissieux Village (agglomération lyonnaise), implantée spécifiquement sous l'influence d'un émetteur de HAP répertorié par la DRIRE depuis l'année 2004.

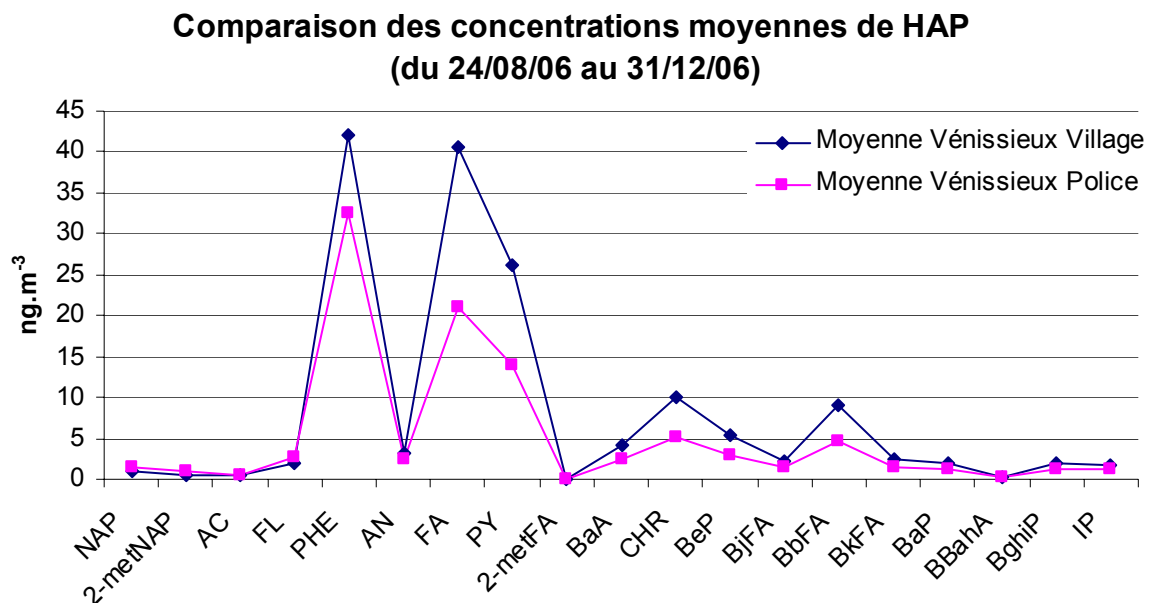
3.4.1.1 Domaine d'Etude

Les mesures continues sont effectuées depuis avril 2004 à une distance d'environ 500 mètres au sud de l'émetteur. Selon une première étude de la dispersion des polluants émis réalisée par le CAREPS¹ en 2001, le site de Vénissieux Village » serait proche de la zone de retombée maximale des émissions.

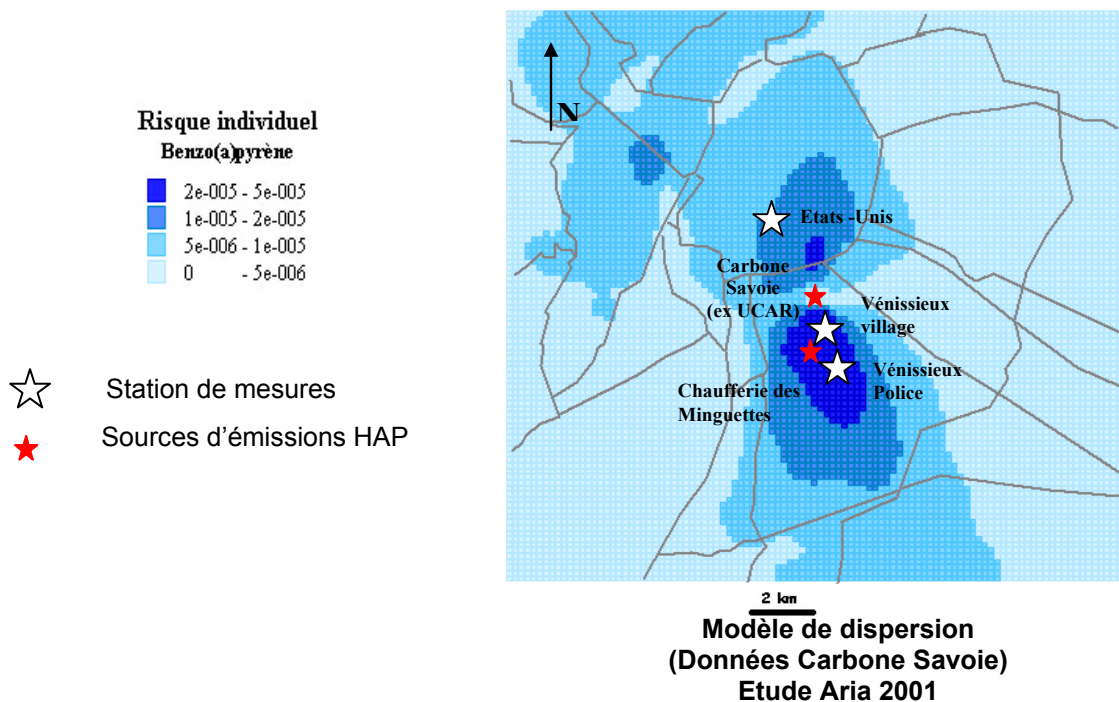
Un second site « Vénissieux police » a été installé au mois d'août 2006, un peu plus au sud dans une zone supposée plus centrale par rapport aux retombées maximales, dans un but de comparaison. L'objectif est donc de valider définitivement la position du site fixe pour la surveillance industrielle sur la commune de Vénissieux avant de placer une deuxième station fixe dans le panache nord de l'émetteur.

Enfin, un autre site, de proximité automobile « Etats-Unis » mesurant également les HAP se situait au nord ouest de l'usine à environ 3,5 km. Ce site a été déplacé en début d'année 2007.

Comparaison des concentrations moyennes de HAP entre les sites de Vénissieux village et Vénissieux Police du 24/08/06 au 31/12/06.



¹CAREPS : Centre Rhône-Alpes d'Epidémiologie et de Prévention Sanitaire



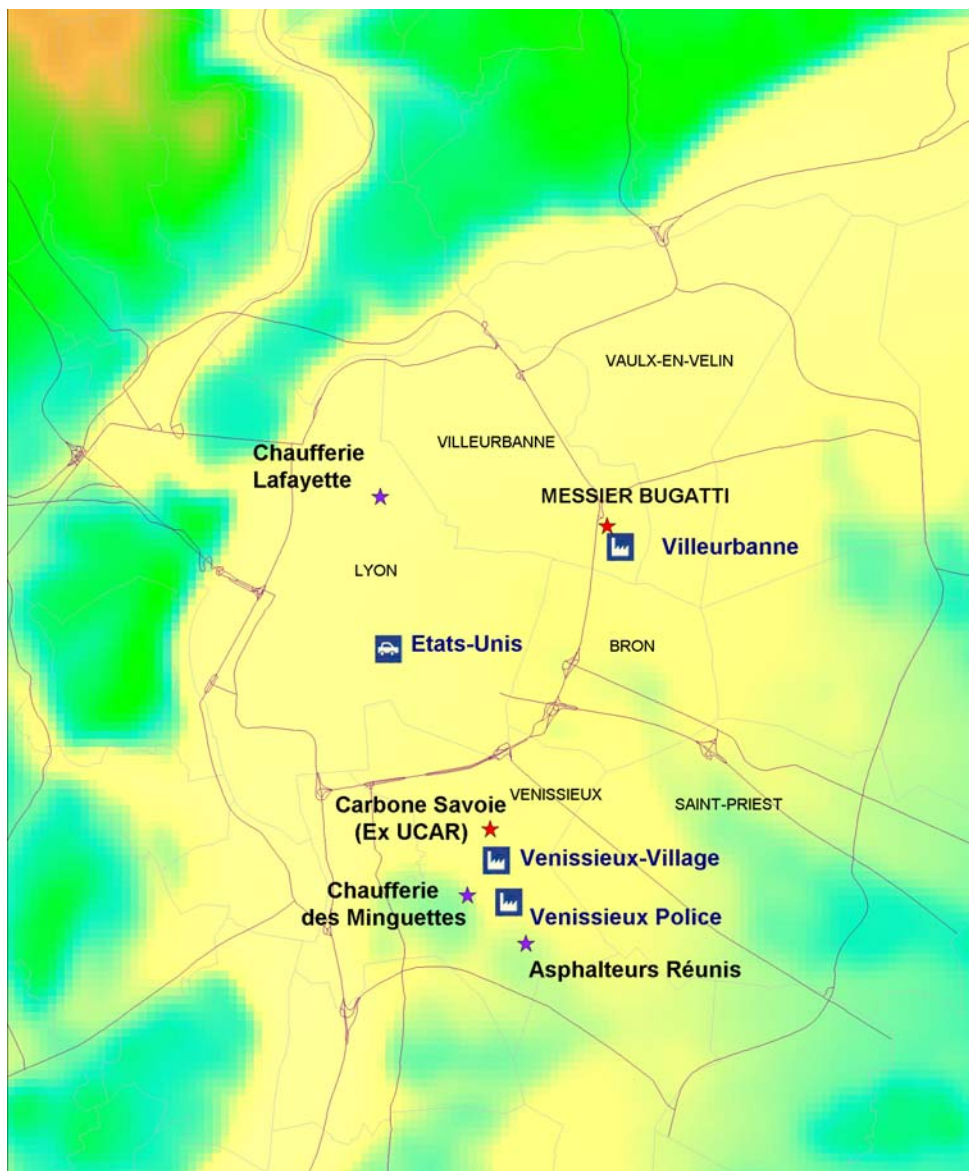
Depuis le début du doublement des mesures (Vénissieux Village/Vénissieux Police) les concentrations moyennes de HAP suivent le même profil, mais avec des valeurs plus élevées sur le site de « Vénissieux village ». Ces résultats semblent valider le bon positionnement du site de Vénissieux Village dans la zone de retombée maximale des émissions.

➤ *Localisation des sources d'émissions de HAP proches des sites de mesures*



Le but de cette carte est de localiser les principaux émetteurs de HAP connus, situés proches des stations fixes et qui peuvent par conséquent avoir une influence sur les mesures. Cette cartographie n'est donc pas exhaustive.

Elle présente à la fois :

- les principaux émetteurs répertoriés de HAP (émettant plus de 50 kg de HAP/an) proches des sites de mesures (Carbone Savoie et Messier Bugatti) ;
- certaines sources potentiellement émettrices de HAP mais dont la quantité de HAP émise par ces établissements n'est pas précisément connue. Ces dernières constituent des sources d'émissions de HAP a priori moins importantes.



Stations de mesures

-  Proximité automobile
-  Proximité industrielle










Sources d'émissions de HAP

-  Industries

Sources potentielles d'émissions de HAP

-  Chaufferies et industries

Relief en mètres

-  3 400
-  2 200
-  1 500
-  1 000
-  500
-  300
-  250
-  200
-  0

Routes principales

-  Routes principales

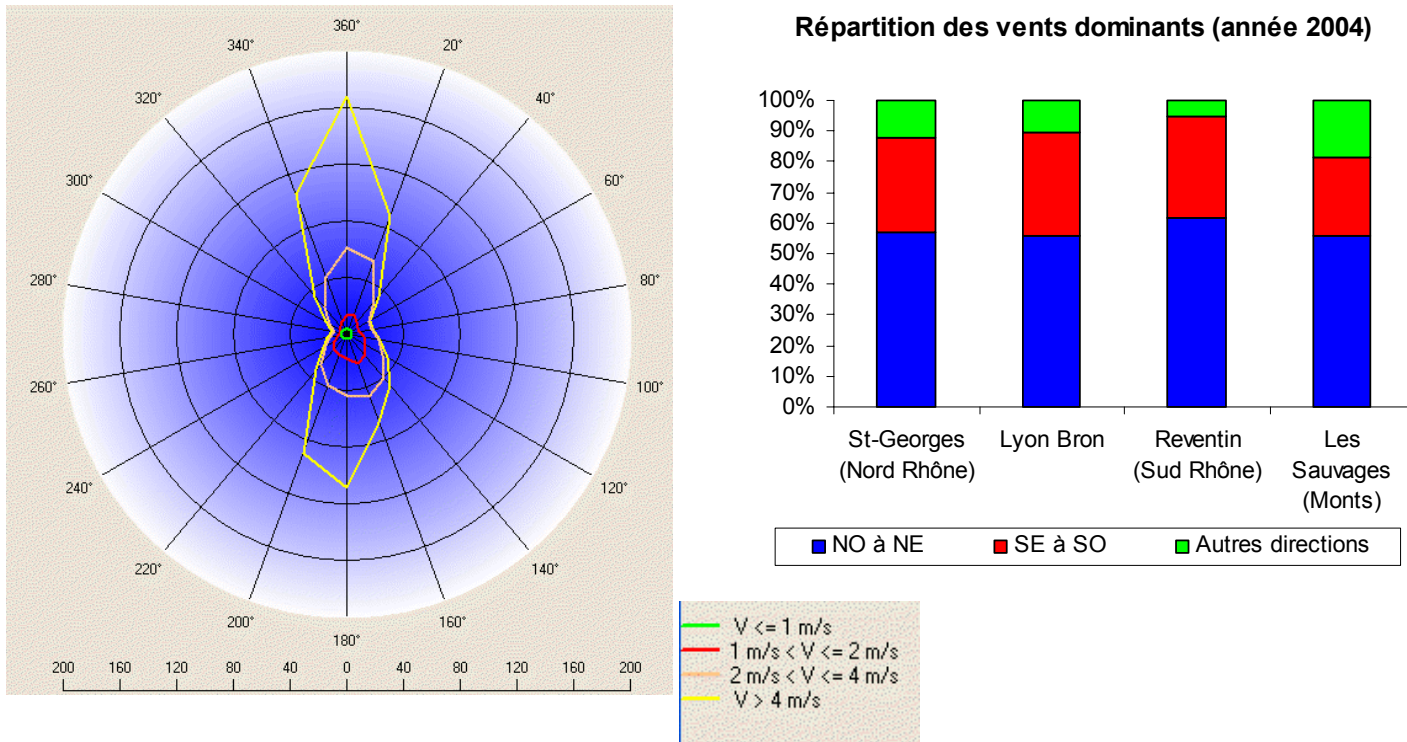
Contour Communes

-  Communes

3.4.1.2 Les données météorologiques

La station météorologique de Lyon-Bron (données Météo-France) fournit les données les plus représentatives du secteur étudié au regard de la direction des vents (Nord/Sud) et de sa proximité géographique. Ces données servent donc à étudier l'influence des vents (vitesse et direction) sur les concentrations mesurées sur les sites de « Vénissieux Village » et Etats-Unis et peuvent permettre d'identifier la provenance d'une source polluante.

Direction et vitesse du vent (station Météo-France Lyon/Bron)



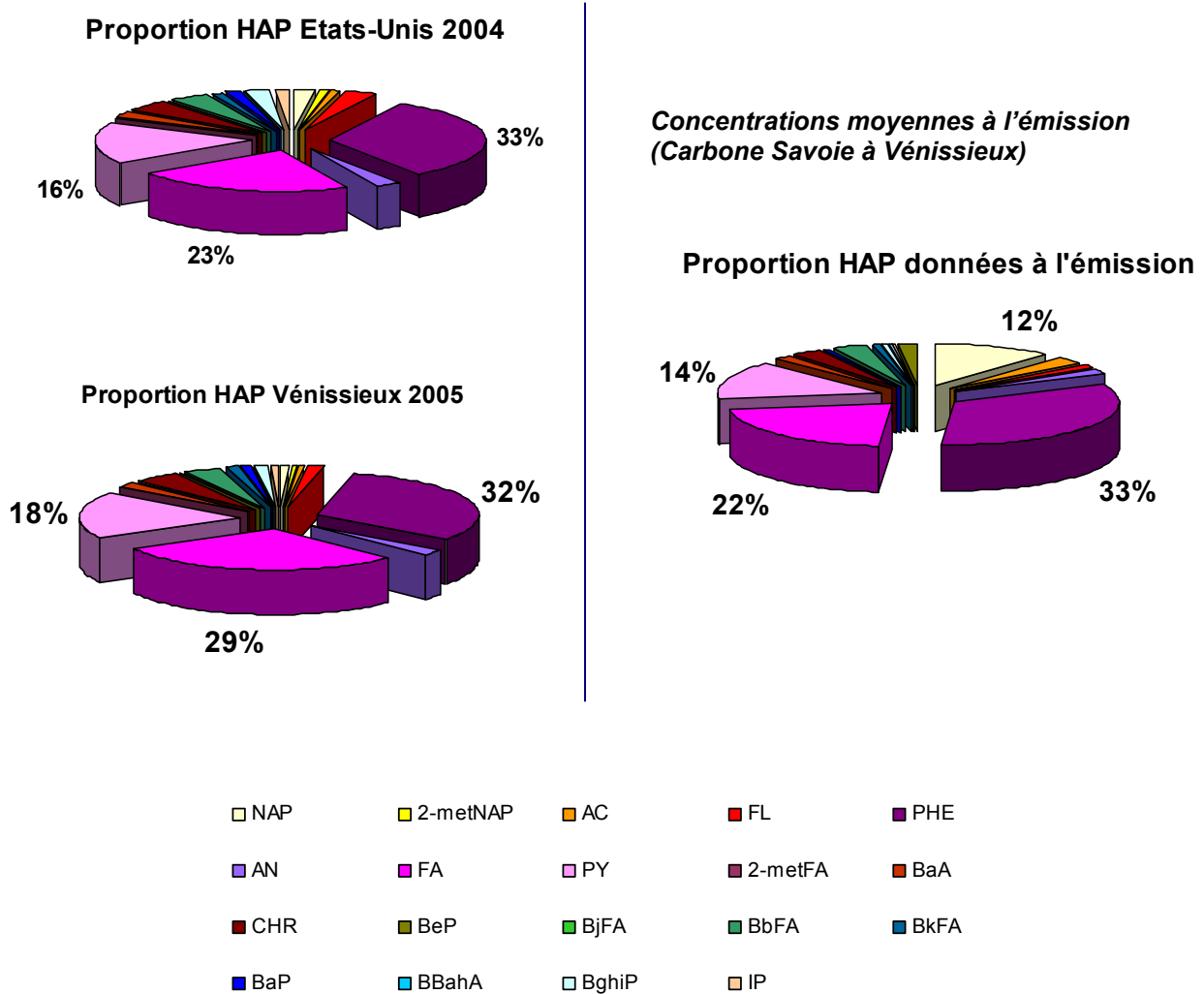
- La rose des vents de la station météo France Lyon Bron présente deux directions dominantes du vent.
 - Vent du Nord (direction 340° à 20°)
 - Vent du Sud (direction 160° à 200°)
 Les vents les plus fréquents sont les vents forts de vitesse supérieurs à 4 m/s (12 km/h).
- Le graphique présente la répartition des vents dominants sur plusieurs stations Météo-France du département du Rhône. Il met en évidence que les vents du Nord soufflent plus fréquemment que le vent du sud (50% contre 30%).

Avant d'étudier l'influence des vents sur les concentrations de HAP mesurées à « Vénissieux Village » et « Etats-Unis », une comparaison entre le site de « Vénissieux village » et de « Villeurbanne » (2 sites de typologie industrielle) a été réalisée.

Le site de Villeurbanne a été implanté en 2006-2007, dans le cadre du plan de surveillance de la qualité de l'air sur Rhône-Alpes, en proximité du plus gros émetteur de HAP jusqu'en 2004 répertorié dans la région Rhône-Alpes. Cependant, ce dernier ayant investi en 2005 dans un système de traitement des gaz de procédés, il ne devrait plus émettre ces composés. Quatre campagnes de mesures, sur des périodes de 2 semaines, réparties sur 4 saisons, ont été planifiées entre 2006 et 2007. A la rédaction du présent rapport, seuls les résultats de la première campagne de mesure en été 2006 ont pu être exploités.

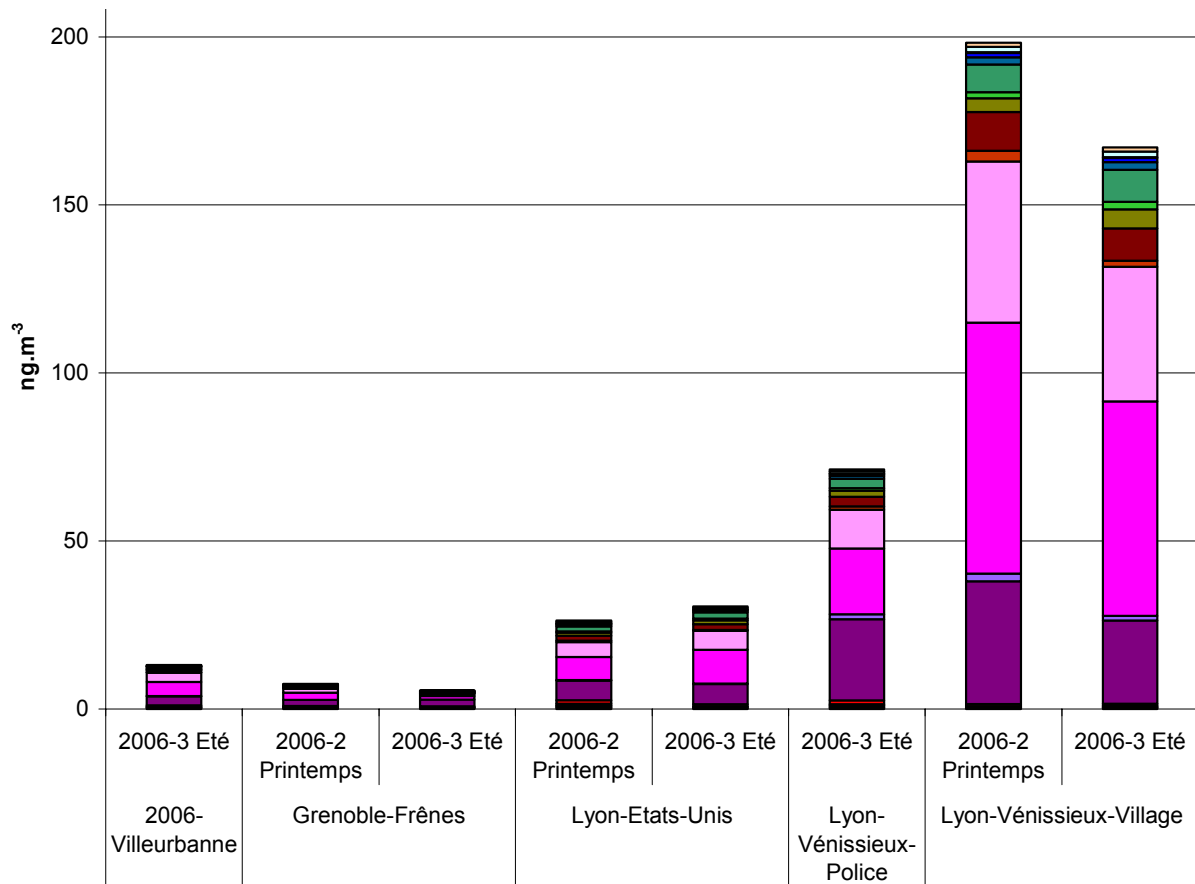
3.4.1.3 Comparaison des profils des HAP mesurés et des concentrations de HAP à l'émission

Le graphique à droite est réalisé à partir de concentrations moyennes de HAP à l'émission fournies par l'industriel UCAR situés à Vénissieux. Ces mesures ont été réalisées sur une heure lors de 4 périodes de l'année 2004 (février, avril, septembre et novembre) et proviennent de 3 jours différents. Ces résultats ont une valeur uniquement indicative. En effet, la représentativité dans le temps et pour l'ensemble de l'installation (3 jours) de ces données n'étant pas démontrée, il serait délicat d'en tirer des conclusions.



Le profil des concentrations moyennes à l'émission (mesures ponctuelles) issues de l'installation se rapproche de celui du site de Vénissieux et d'Etats-Unis à l'exception du naphtalène, polluant léger volatil dont la proportion est plus importante.

3.4.1.4 Comparaison des concentrations moyennes de HAP (campagne de printemps et d'été)*



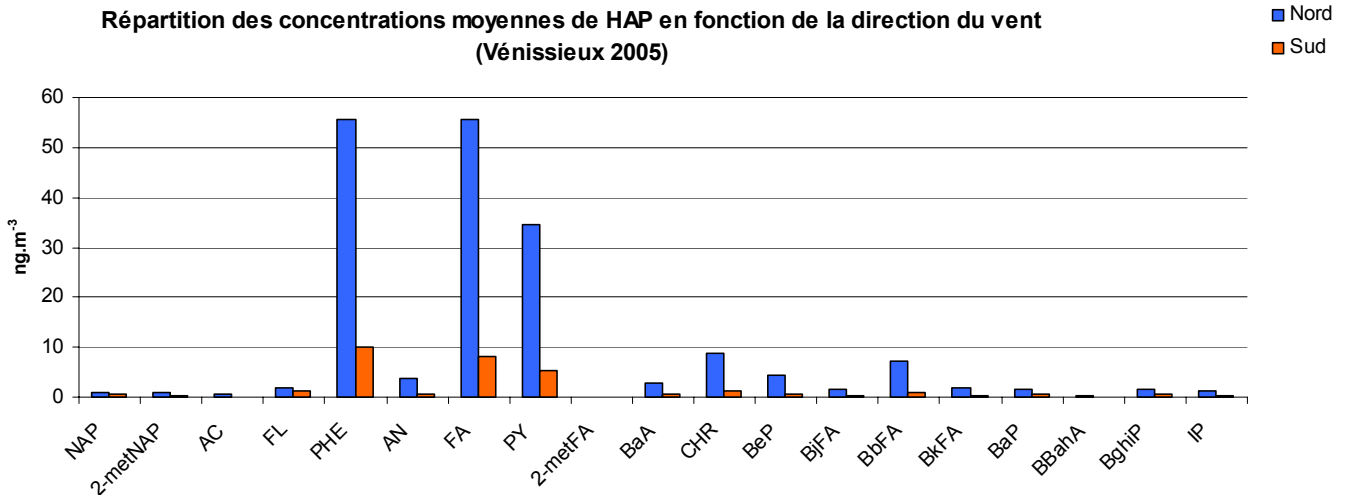
*Les données sont exprimées en volume normal

Le graphique montre que le site de Vénissieux Village présente les concentrations moyennes les plus élevées alors que les niveaux de concentrations de Villeurbanne sont proches du fond urbain. Même si la comparaison avec le site de Villeurbanne n'a pu être réalisée que sur la saison estivale, les analyses précédentes ont montré qu'il n'y avait pas de réelle variation saisonnière à proximité directe d'un émetteur industriel (cf. 3.3.5) et d'autre part, les émissions déclarées par l'industrie située sur Villeurbanne jusqu'en 2004 étaient nettement supérieures à celles de Vénissieux. Ces résultats mettent en évidence l'influence de la source industrielle localisée sur la commune de Vénissieux et semblent confirmer la baisse des émissions déclarées par l'émetteur industriel localisé sur la commune de Villeurbanne (ceci sera vérifié avec les mesures des prochaines campagnes).

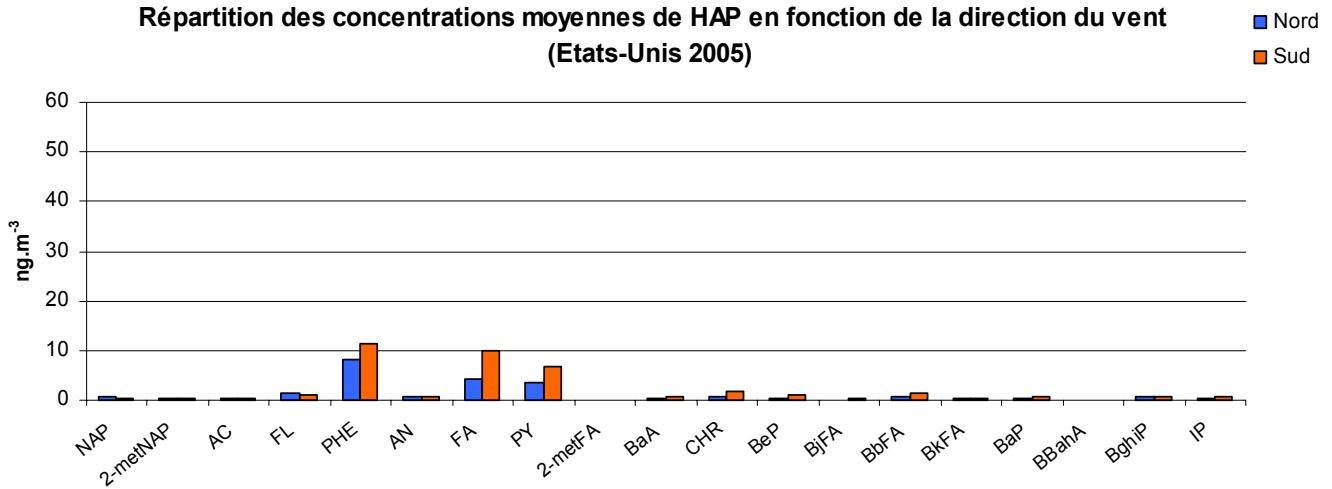
3.4.1.5 Comparaison des concentrations moyennes de HAP entre Etats-Unis et Vénissieux Village en fonction de la direction du vent

L'objectif est d'étudier l'influence des vents (en fonction de la vitesse et de la direction) sur les concentrations mesurées sur les sites de « Vénissieux Village » et « Etats-Unis » afin d'identifier la provenance des sources polluantes.

Répartition des concentrations moyennes de HAP en fonction de la direction du vent (Vénissieux 2005)

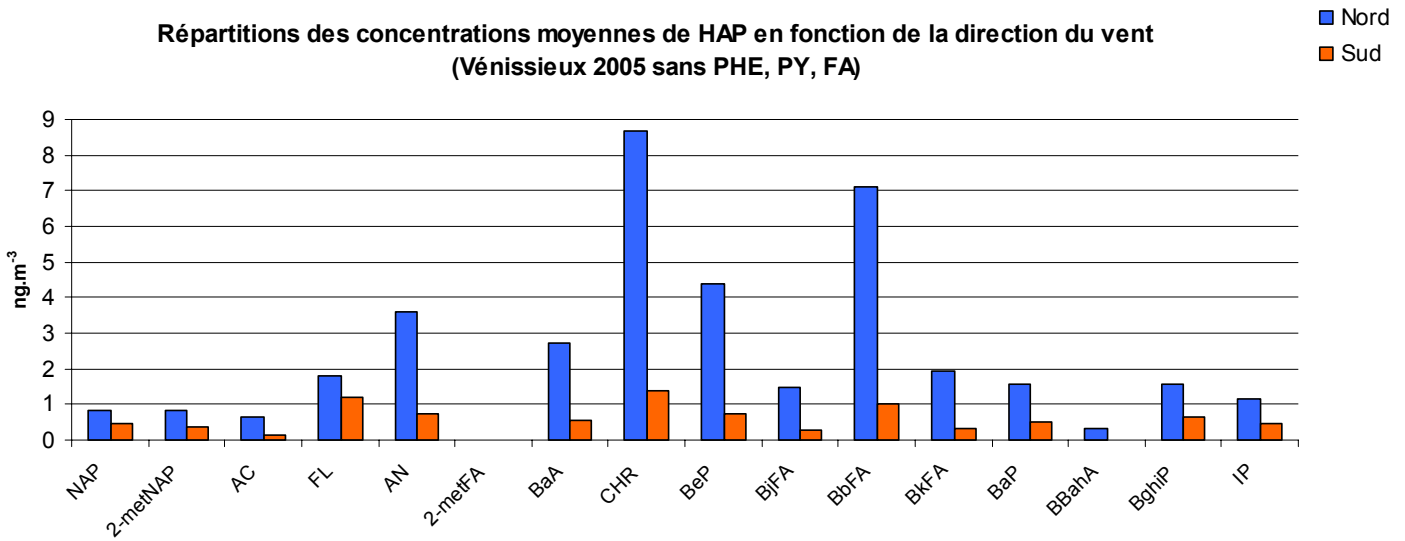


Répartition des concentrations moyennes de HAP en fonction de la direction du vent (Etats-Unis 2005)

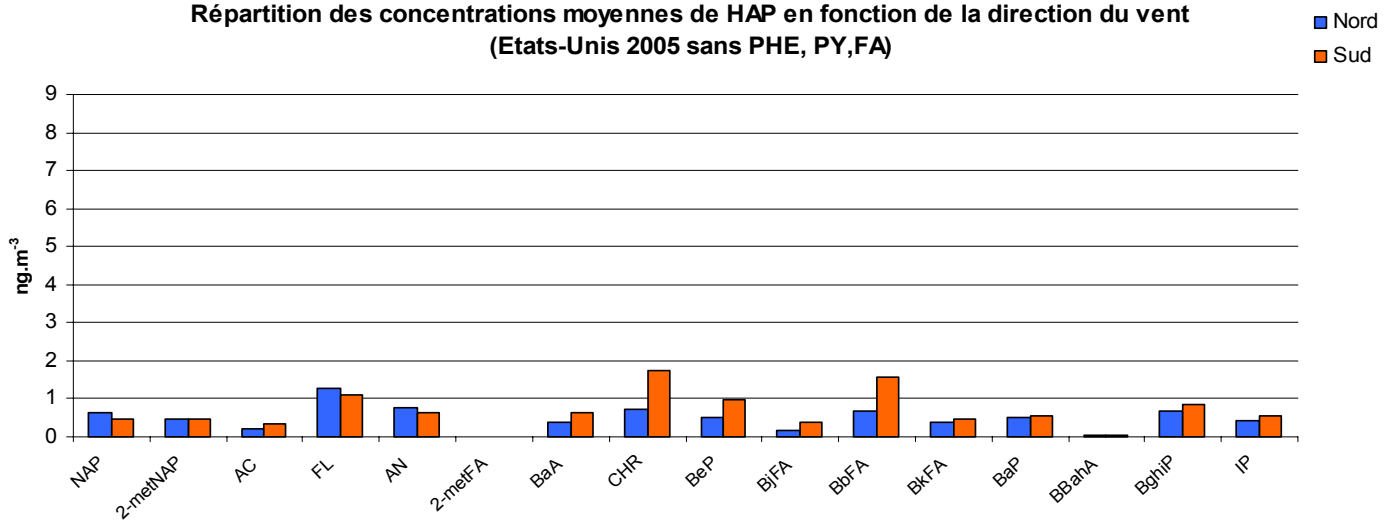


Les graphiques suivants reprennent la comparaison des concentrations moyennes de HAP en fonction de la direction du vent, sans les 3 principaux composés (PHE, FA, PY).

Répartitions des concentrations moyennes de HAP en fonction de la direction du vent
(Vénissieux 2005 sans PHE, PY, FA)

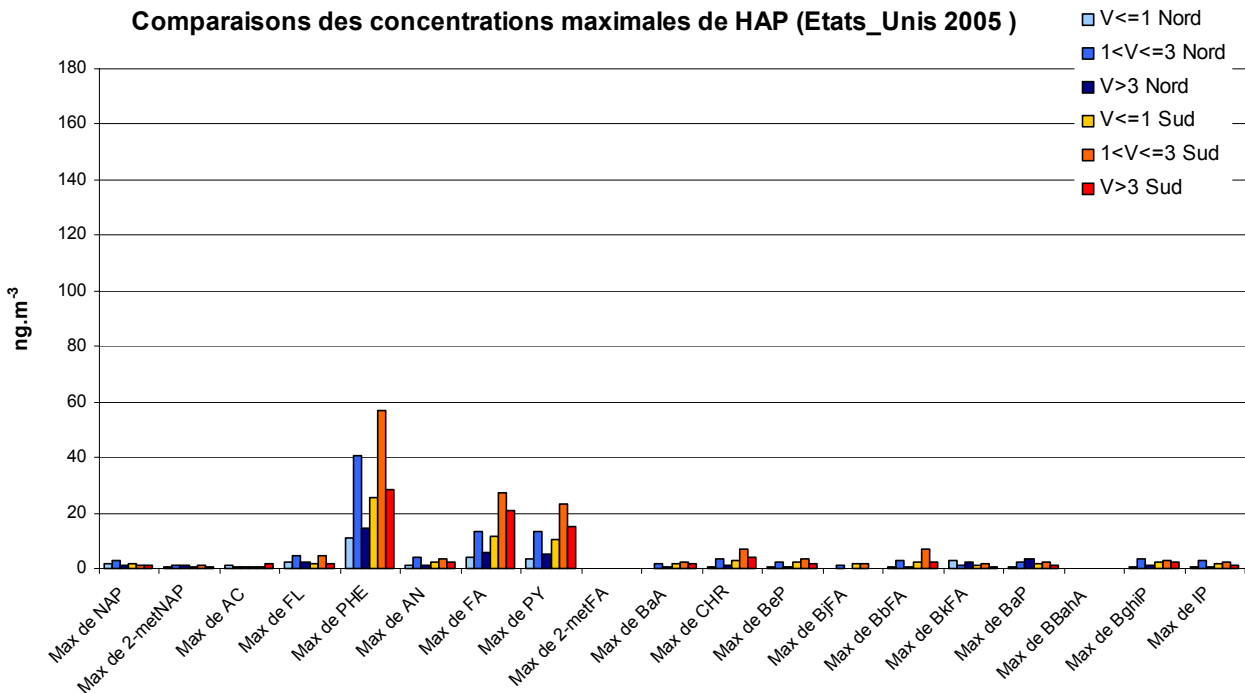
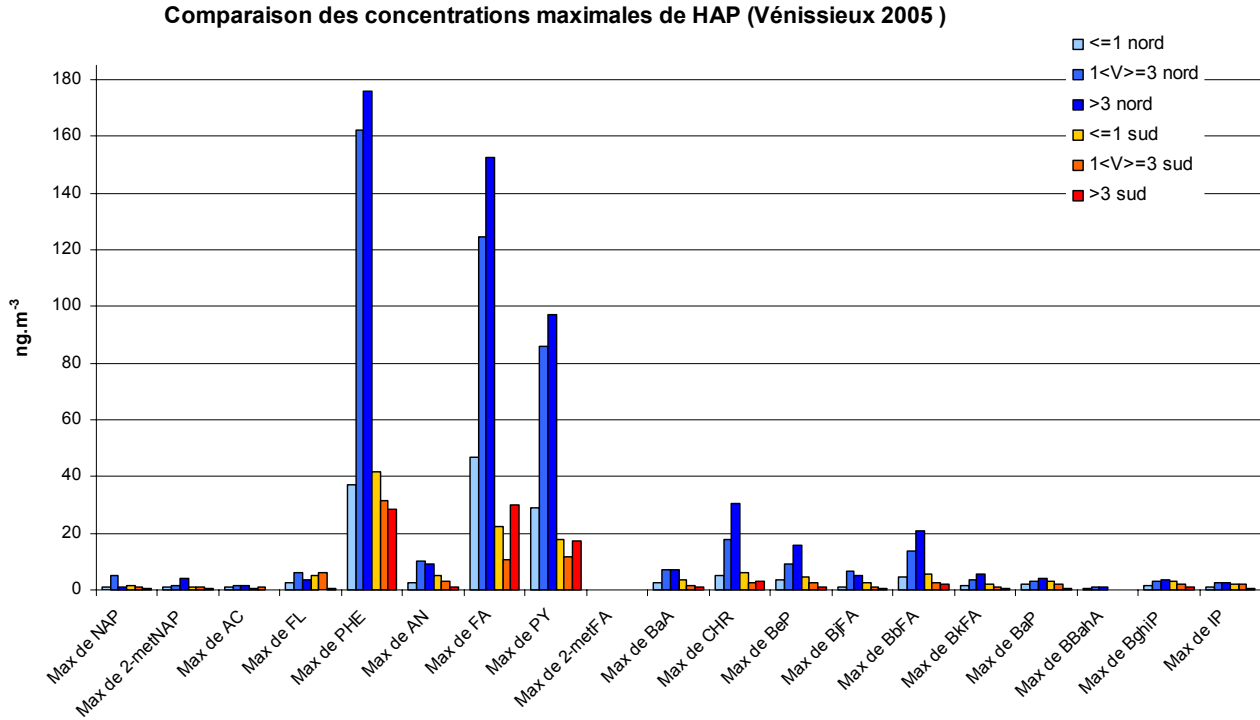


Répartition des concentrations moyennes de HAP en fonction de la direction du vent
(Etats-Unis 2005 sans PHE, PY,FA)



Sur le site de « Vénissieux Village » les concentrations sont nettement plus élevées par vent de nord que par vent de sud. Les résultats sur le site de Lyon « Etats-Unis » situé au Nord de l'émetteur sur la commune de Vénissieux présentent une tendance moins marquée par rapport aux directions du vent. Toutefois les concentrations de plusieurs composés semblent plus élevées par vent du Sud. Les graphiques suivants comparent les concentrations maximales de HAP en fonction de la vitesse et direction du vent. L'objectif est de visualiser à quelle(s) vitesse et direction(s) de vent correspondent les niveaux de polluants les plus élevés afin d'identifier les sources d'émissions.

3.4.1.6 Comparaison des concentrations moyennes de HAP entre Etats-Unis et Vénissieux Village en fonction de la direction et de la vitesse du vent du vent

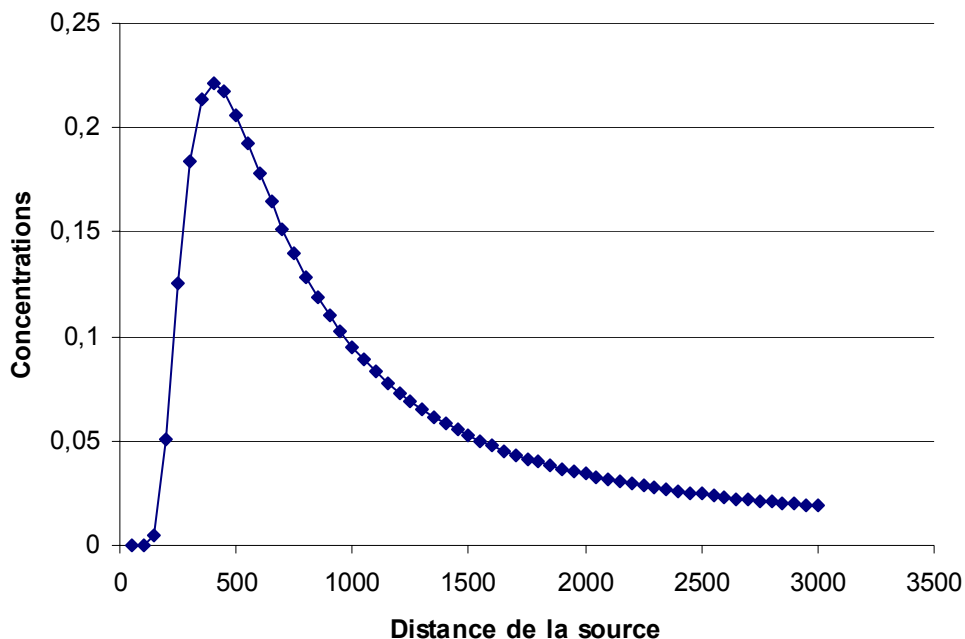


Les concentrations maximales de HAP s'observent principalement par fort vent du Nord sur le site de Vénissieux. Par conséquent l'influence de l'émetteur industriel situé au Nord est incontestable.

Sur le site d'Etats-Unis, les concentrations les plus élevées s'observent par vent moyen provenant du sud comme du nord. Ces résultats permettent de supposer que le site d'Etats-Unis est à la fois influencé par l'émetteur industriel situé au sud, sur la commune de Vénissieux, mais également dans une moindre mesure par une installation située au nord du site.

Afin de conforter les observations réalisées, il est apparu intéressant d'évaluer, à partir des caractéristiques des émissions de l'industriel (hauteur de cheminée, vitesse et débit nominal de rejet), à quelle distance de la source émettrice les concentrations maximales sont observées. Pour cela, les caractéristiques des émissions de l'émetteur industriel situé au nord du site de Vénissieux ont été intégrées dans un modèle simple qui permet d'évaluer la distance à laquelle les retombées maximales sont observées.

Observation des niveaux de concentrations en fonction de la distance de la source émettrice



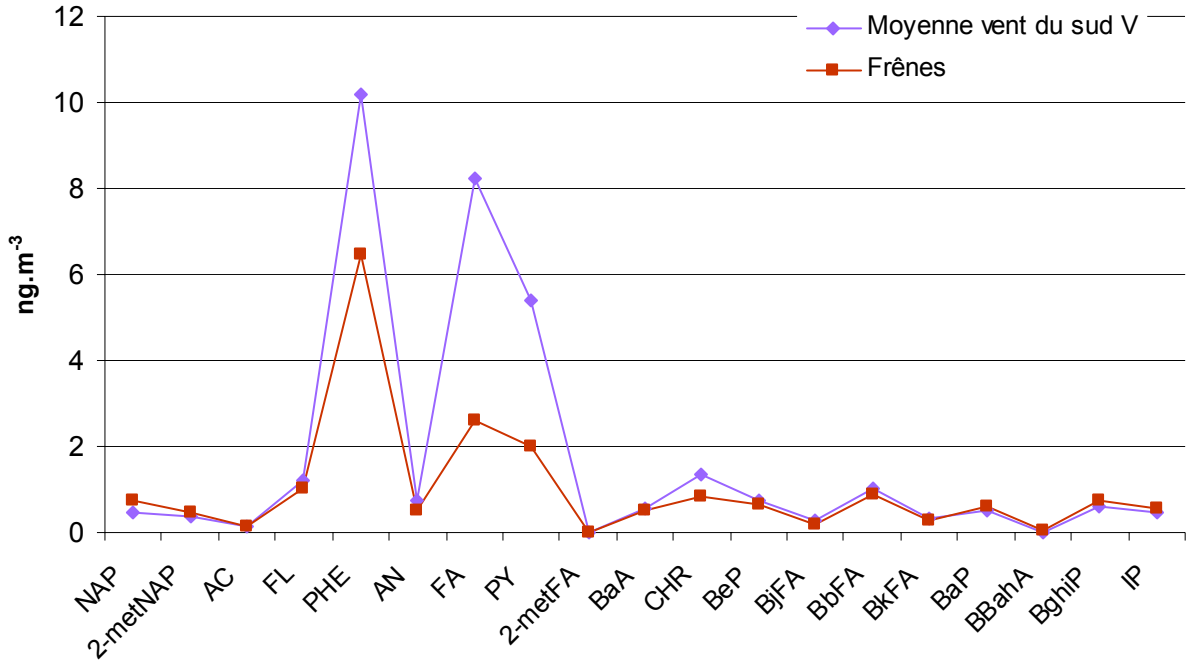
Les résultats du modèle montrent que les retombées maximales devraient se situer à une distance d'environ 400/500 mètres de la source émettrice ce qui correspond approximativement à la distance entre l'émetteur industriel et le site de Vénissieux. Ces résultats ont une valeur indicative car le modèle prend en compte uniquement certaines caractéristiques des émissions de l'industriel.

Dans un deuxième temps, les concentrations sur les sites Etats-Unis et Vénissieux Village ont été estimées en cherchant à supprimer l'influence de l'émetteur potentiel industriel situé sur la commune de Vénissieux.

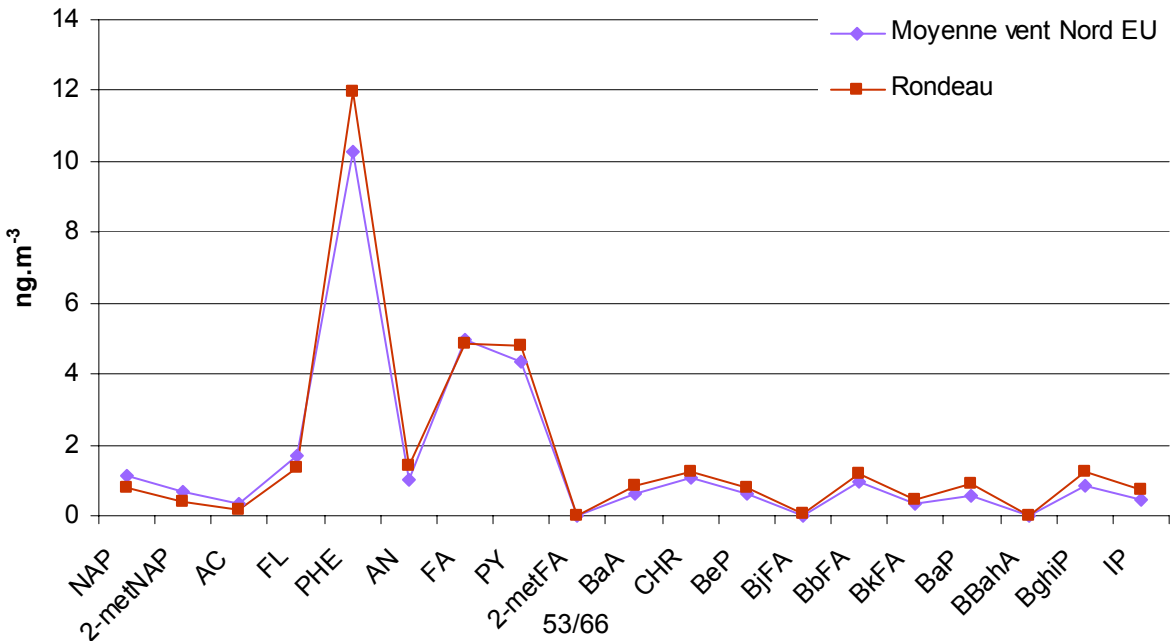
Deux comparaisons ont été réalisées :

- Comparaison des concentrations moyennes par vent du sud sur le site de Vénissieux avec les concentrations moyennes d'un site urbain (les Frênes à Grenoble) ;
- Comparaison des concentrations moyennes par vent du nord sur le site trafic Etats-Unis avec un site de même typologie (le Rondeau à Grenoble).

Comparaison des concentrations moyennes par vent du Sud sur le site de Vénissieux avec les moyennes sur le site des Frênes (2005)



Comparaison des moyennes par vent du Nord sur le site d'Etats-Unis et des concentrations moyennes sur le site du Rondeau (2004)



Les concentrations moyennes mesurées par vent du sud (sans l'influence de la source potentielle constituée par l'émetteur industriel) **sont équivalentes aux concentrations en site urbain de fond** à l'exception du PHE, FA, PY et CHR où les niveaux sont plus élevés.

Les concentrations moyennes mesurées par vent du Nord sur le site Etats-Unis (sans l'influence de la source potentielle industrielle au sud) **sont équivalentes aux concentrations mesurées en proximité du trafic**.

Sur le site de Vénissieux Village, ces résultats confirment l'influence de l'émetteur industriel situé au nord de Vénissieux et mettent également en évidence l'influence d'autres sources potentielles d'émissions par vent du sud sur les concentrations mesurées.

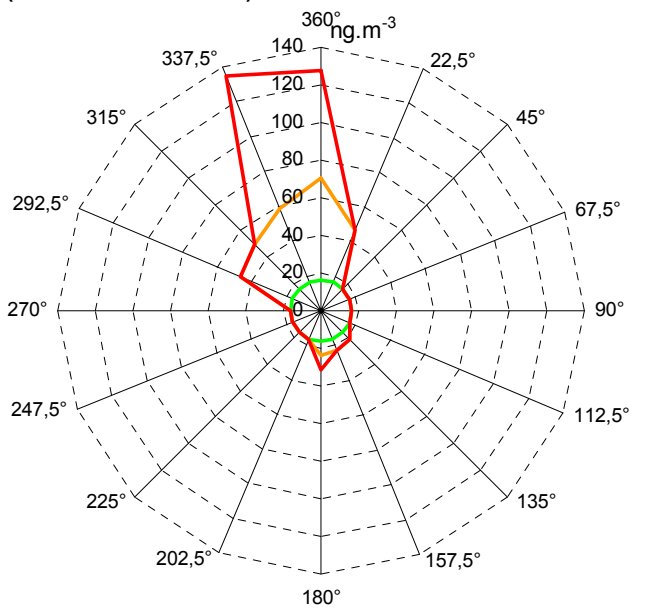
Par vent du sud, deux émetteurs potentiels « connus » pourraient avoir une influence sur les concentrations mesurées à Vénissieux : il s'agit d'une unité de production d'asphalte et d'une chaufferie bois.

Afin d'observer la provenance des apports de ces composés en fonction des directions de vent, il est utile d'observer les roses de pollution correspondantes.

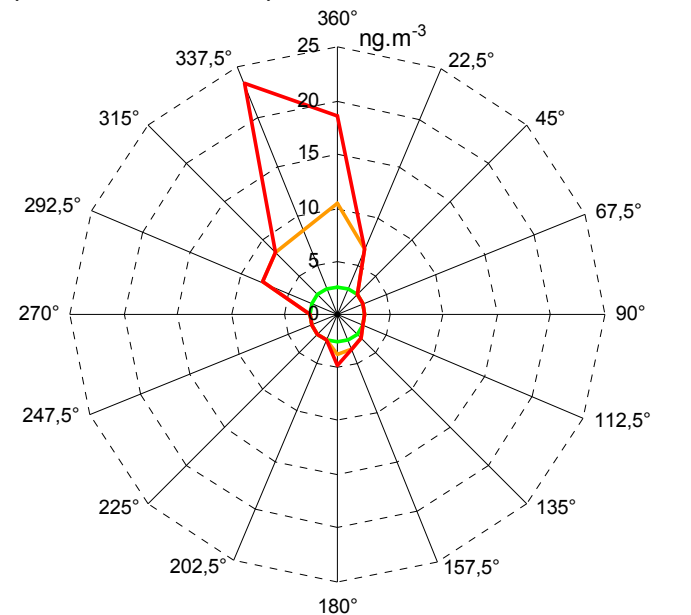
Les roses ci-dessous présentent les niveaux de concentrations de FA et de CHR en 2005 sur le site de Vénissieux. Il est à noter qu'en raison de leur similitude les profils du PHE et du PY ne sont pas représentés ci-dessous.

Ainsi, comme le montrent ces représentations, les concentrations de CHR et de FA provenant du nord sont sensiblement plus élevées que celles provenant du sud. Bien que certaines sources potentielles soient identifiées au sud du site de mesure, il est cependant difficile d'évaluer la position et l'importance des émissions. Il convient également de considérer que le site de Vénissieux est placé dans la zone de retombée des émissions de l'émetteur, au nord, et qu'il n'est probablement pas situé dans une zone de retombées favorable pour d'autres émetteurs potentiels au sud.

Rose de pollution moyennes cumulées (FA - Vénissieux 2005)



Rose de pollution moyennes cumulées (CHR Vénissieux 2005)



Source météo France

3.4.2 HAP en zone rurale de montagne

Les présents résultats sont issus d'une étude réalisée par le LCSQA (E.Leoz-Garziandia, INERIS, novembre 2005) en collaboration avec l'ASCOPARG. Dans le cadre du présent rapport, les données de cette étude ont été corrigées et mises en conformité par rapport à la réglementation européenne actuellement en vigueur. En effet cette dernière exige une expression des résultats de concentrations dans les conditions réelles de températures et de pression, contrairement à ce qui était préconisé à l'époque de l'étude (conditions normales de température et pression).

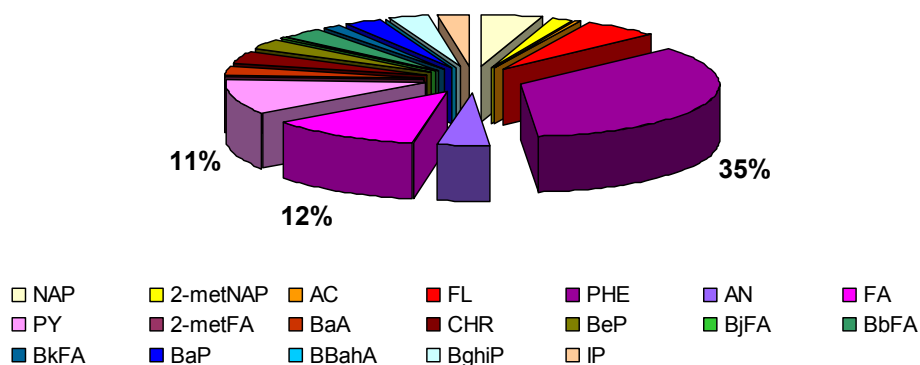
L'objectif de ce chapitre est de tenter d'identifier les principales sources d'émissions de HAP au niveau d'une commune rurale et leur apport respectif et, plus précisément, d'analyser l'influence du chauffage au bois sur les concentrations en HAP.

3.4.2.1 Domaine d'étude

Méaudre, village rural de moyenne montagne situé dans le massif du Vercors a été retenu pour étudier l'influence du chauffage domestique au bois sur les concentrations en HAP. Ce site a été proposé suite à l'examen des fichiers INSEE mettant en évidence une forte utilisation du chauffage domestique au bois par la population. Les mesures ont été faites du 18 novembre 2004 au 21 janvier 2005. Dans une première phase, l'INERIS a réalisé une campagne de 7 jours consécutifs suivie de prélèvements hebdomadaires de l'ASCOPARG.

3.4.2.2 Profil des concentrations moyennes

**Proportion de HAP Méaudre
(18 novembre 2004 au 21 janvier 2005)**

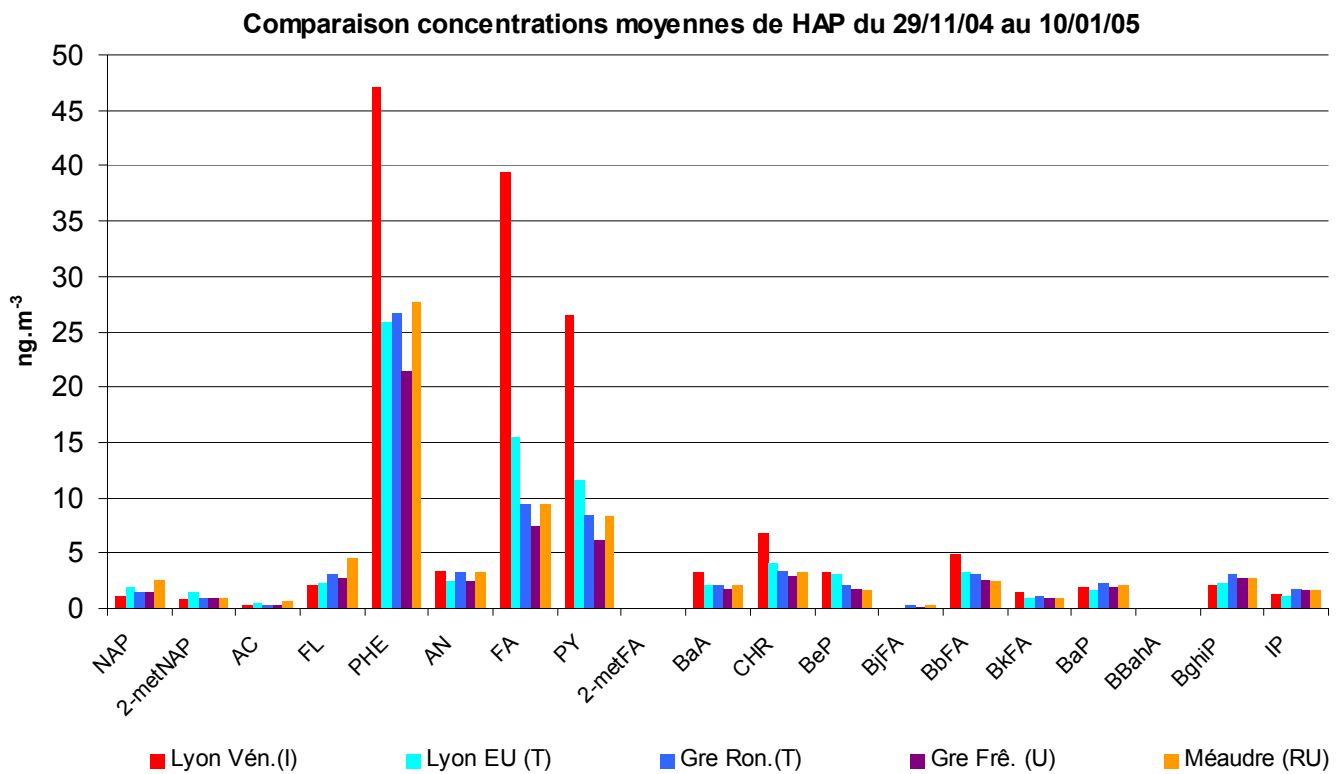


Comme sur les sites « trafic », industriels et urbains étudiés dans les précédents chapitres, les composés HAP les plus présents à Méaudre sont le PHE, FA et le PY. La répartition des concentrations de chaque HAP sur ce site rural se rapproche du site urbain de Grenoble « Les Frênes » (cf chapitre 3.1).

3.4.2.3 Concentrations moyennes de HAP par typologie de site

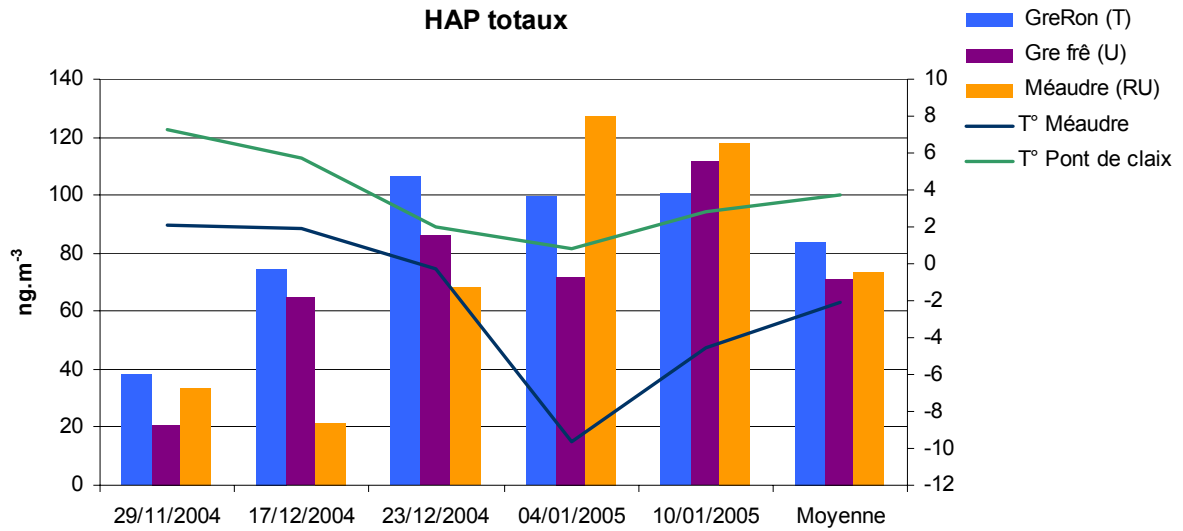
Le graphique suivant compare les concentrations moyennes de HAP par typologie de site du 29/11/04 au 10/01/05. Les moyennes ont été réalisées sur 8 prélèvements et 5 sites de mesures :

- Grenoble « Les Frênes » urbain = Gre Frê.(U)
- Lyon «Vénissieux Village » proximité Industrielle = Lyon Vén.(I)
- Grenoble « Le Rondeau » proximité trafic = Gre Ron.(T)
- Lyon « Etats-Unis » proximité trafic =Lyon EU (T)
- « Méaudre » rural = Méaudre (RU)

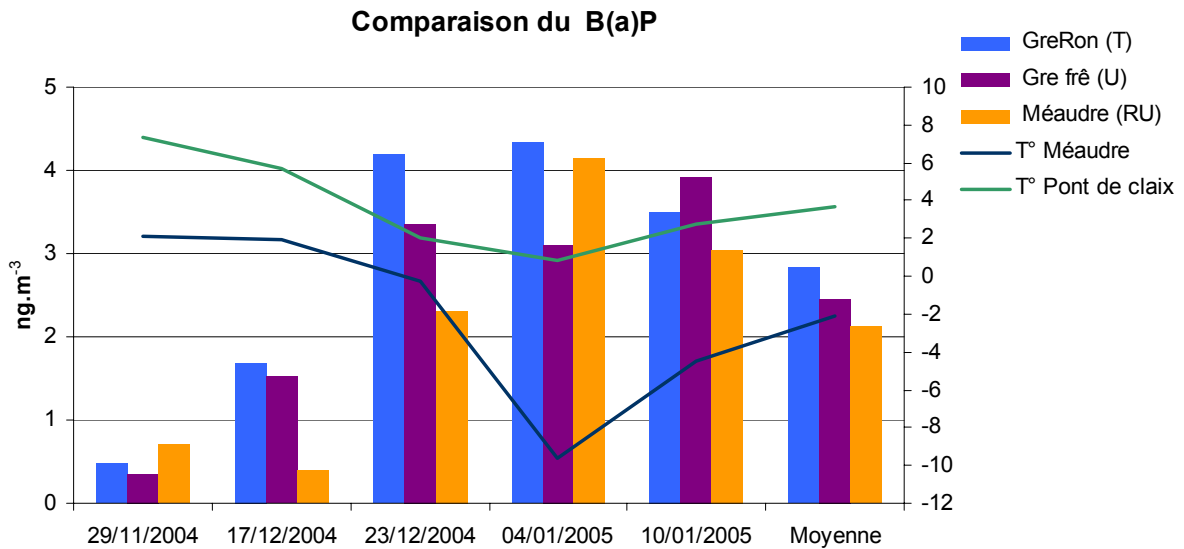


La comparaison des concentrations moyennes de HAP entre les différents sites met en évidence des teneurs en HAP relativement élevées sur le site de Méaudre pour pratiquement tous les composés. Les valeurs mesurées pendant la durée de cette étude sont proches des moyennes obtenues sur les sites « trafic » (Lyon « Etats-Unis », Grenoble « Le Rondeau ») et souvent plus élevées que sur le site urbain (Grenoble « Les Frênes »).

3.4.2.4 Comparaisons entre les sites de la région grenobloise



Les premiers prélèvements indiquent que les concentrations les plus élevées ont été mesurées sur le site trafic de Grenoble « Le Rondeau ». Les faibles valeurs le 29/11/06 semblent être imputées à la pluie. La tendance s'inverse ensuite en fin de période au cours de laquelle les concentrations les plus élevées sont observées sur le site de Méaudre.

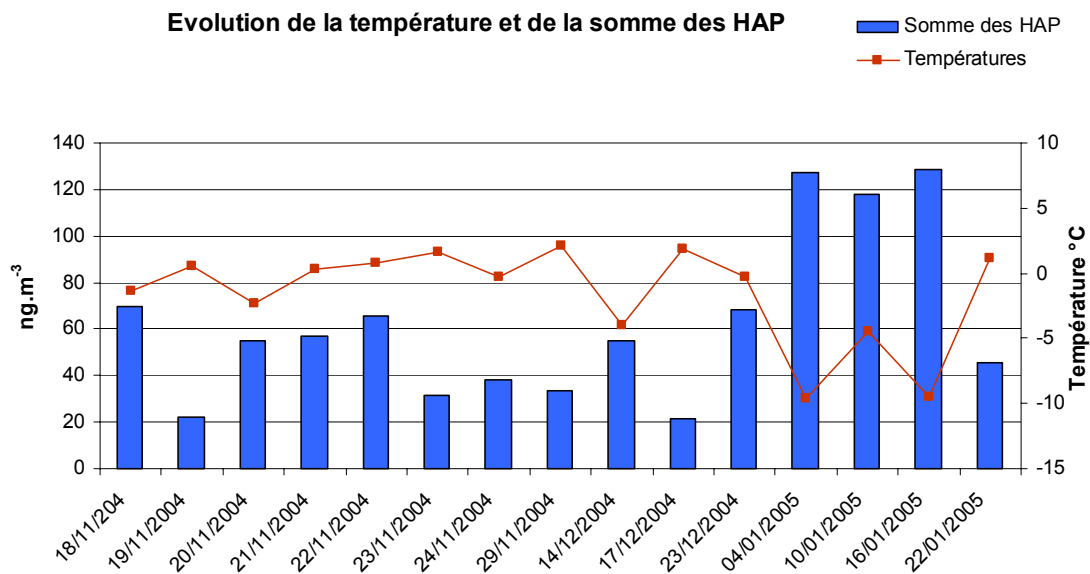


Les concentrations moyennes de BaP sur la période d'étude sur l'ensemble des sites sont supérieures à la valeur cible (moyenne annuelle de 1 ng.m⁻³) préconisée par la directive européenne. A noter que cette moyenne correspond à une période hivernale, plus propice à l'accumulation des

polluants et donc non caractéristique de la moyenne annuelle. La concentration moyenne en B(a)P sur le site de Méandre (2.1 ng.m^{-3}) est légèrement inférieure à la moyenne obtenue sur le site urbain de Grenoble (2.5 ng.m^{-3}). La moyenne mesurée sur le site « trafic » reste la plus élevée (2.8 ng.m^{-3}). Le nombre de jours de prélèvements communs est trop faible pour permettre de déceler une tendance.

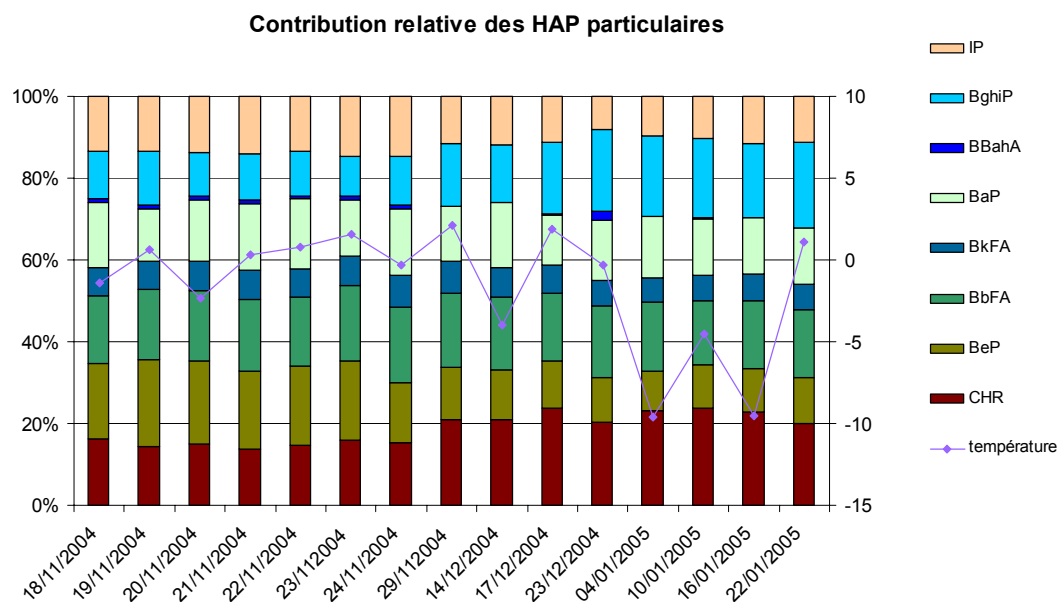
3.4.2.5 Etude de la contribution relative des HAP indicateurs de sources et influence de la température

Ce graphe montre une très bonne corrélation entre la chute des températures du 4 janvier au 16 janvier 2005 et la hausse observée des HAP totaux.

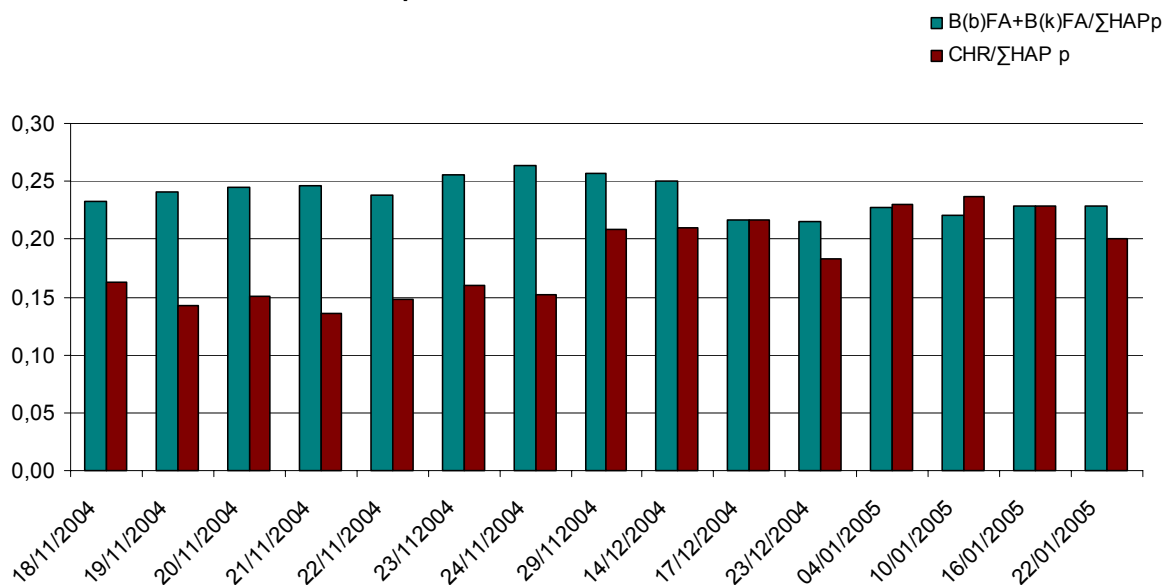


Le B(a)P, le B(k)F et le B(b)F sont en concentrations relativement homogènes sur l'ensemble de la période étudiée. Les autres composés évoluent par contre en fonction des températures : IP et B(e)P diminuent fortement quand les températures moyennes baissent alors que B(ghi)P et CHR augmentent.

Le CHR, composé considéré comme traceur de la combustion du bois tend à augmenter lors de la période la plus froide. Ces résultats montrent, qu'en première hypothèse, compte tenu de la localisation du site (commune rurale), l'augmentation des concentrations des HAP, corrélée à la baisse de la température ambiante, pourrait être attribuée à l'augmentation du chauffage domestique.



Contribution relative des HAP indicateurs de source par rapport à la somme des HAP particuliers



Selon l'étude de l'INERIS, l'analyse des rapports de concentrations suivants, permet d'émettre des hypothèses quant à l'origine des HAP mesurés lors de cette campagne.

- $\frac{B(b)FA+B(k)FA}{\Sigma HAPp}$
- $\frac{CHR}{\Sigma HAPp}$

En effet, les B(b)FA+B(k)FA sont considérés comme traceurs de la pollution automobile diesel (d'après Aceves, 1994 ; Rossell i Melé, 1989) et le CHR est plutôt un traceur du chauffage au bois.

Dans la première partie de l'étude (du 18 au 24 novembre 2004), la nette prépondérance du rapport $[B(b)F+B(k)F]/\sum HAPp$ semble mettre en évidence l'influence du trafic véhiculaire diesel. A partir du 29/11/2004, la stabilité du rapport $[B(b)FA+B(k)FA]/\sum HAPp$ et l'augmentation du rapport $CHR/\sum HAPp$ laissent supposer que le trafic véhiculaire diesel varie peu et que c'est le chauffage domestique au bois qui augmente.

D'après cette étude réalisée par l'INERIS, les caractéristiques du site de prélèvement ainsi que la nature des HAP observés et leur évolution en fonction des températures confirment l'influence non négligeable du chauffage domestique au bois dans les concentrations observées.

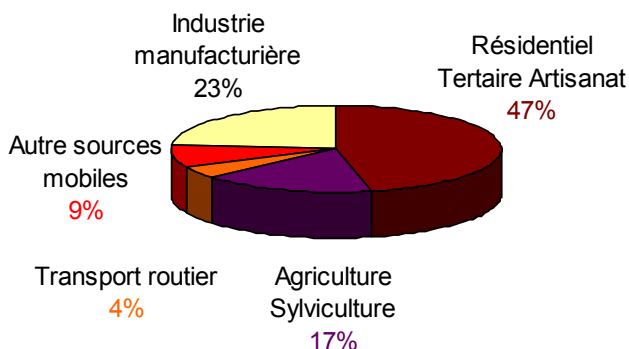
Commentaires

L'INERIS utilise dans l'exploitation des données de Méaudre, une méthode de comparaison différente de celle utilisée dans le présent rapport. En effet, les mesures de polluants traceurs tels que le NO, CO, PM₁₀, n'étant pas disponibles, des rapports de concentrations servent à caractériser l'apport des différentes sources potentielles.

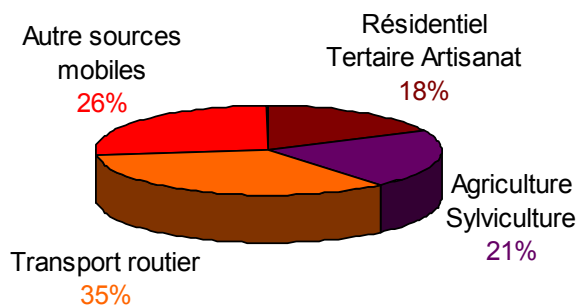
La répartition des émissions de NOx et de PM₁₀ sur la commune de Méaudre¹ met en évidence la part modérée du transport routier sur cette commune rurale en comparaison à la commune de Grenoble (graphiques ci-dessous). Il est donc fort probable que l'influence du trafic sur les concentrations de HAP soit peu marquée sur cette commune

Comparaison de la répartition des émissions de NOx et PM₁₀ sur les communes de Méaudre et Grenoble

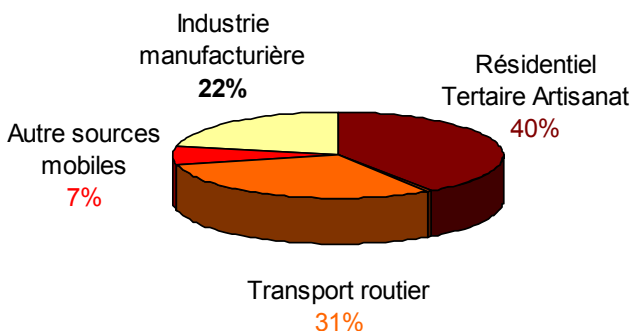
Emissions de PM10 à Méaudre en 2003



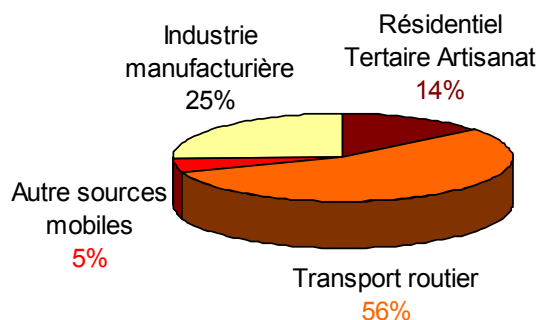
Emissions de NOx à Méaudre en 2003



Emissions de PM10 à Grenoble en 2003



Emissions de NOx à Grenoble en 2003



D'après la campagne de mesure réalisée par l'INERIS, les niveaux de concentrations de HAP sont proches des moyennes obtenues sur les sites « trafic » (Lyon « Etats-Unis », Grenoble « Le Rondeau ») et urbain (Grenoble « Les Frênes »). Ceci peut s'expliquer par la présence d'autres

¹ Source cadastre GIERSA

sources d'émissions influant sur les niveaux de concentrations en HAP mesurés à Méaudre. Afin de trancher sur l'influence du chauffage au bois sur les niveaux de concentrations de HAP, il serait nécessaire de réaliser une nouvelle campagne de mesures de HAP dans une commune rurale avec en parallèle des mesures d'autres polluants traceurs du trafic automobile.

Une étude MEDD/ADEME en collaboration avec le CITEPA, le CSTB et l'université de Savoie concernant l'évaluation de l'impact des appareils de chauffage domestique au bois sur la qualité de l'air intérieur et extérieur a commencé fin 2006. L'objectif de ce travail d'une durée d'environ 2 ans est de mieux cerner les émissions provenant du chauffage au bois grâce à la mesure de polluants traceurs de cette source notamment le levoglucosan.

Conclusion

L'inventaire français du CITEPA et l'inventaire européen réalisé dans le cadre du « position paper » montrent que bien que les émissions de HAP en France soient globalement en baisse sur la période de 1990 à 2004, elles semblent rester élevées, particulièrement en région Rhône-Alpes, en comparaison aux autres pays européens. Néanmoins, les méthodes d'inventaire n'étant pas homogène d'un pays à l'autre et au sein d'un même pays, il convient de rester vigilant vis-à-vis de ces conclusions.

Le BaP a été retenu comme traceur du risque cancérigène car il représenterait 40% de la toxicité globale des HAP. La valeur cible de 1 ng.m^{-3} fixée par la directive du 15 décembre 2004 ne concerne que ce polluant. Les sites de typologie « trafic » de Grenoble et de Lyon respectent cette valeur cible depuis le début des mesures (2002) sans réelle tendance, à l'exception de l'année 2003 pour la station de Grenoble « Le Rondeau ». En revanche le site lyonnais de proximité industrielle « Vénissieux » dépasse la valeur cible depuis le début des mesures en 2004 et l'évolution de ses concentrations montre même une augmentation de la moyenne annuelle pour le BaP. En revanche, les niveaux de fond urbain à Grenoble (Les Frênes) respectent la valeur cible mais augmentent également en 2006.

Les premières mesures dans l'air réalisées entre 2001 et 2003, dans le Rhône et l'Isère, dans le cadre du programme pilote, avaient déjà montré des niveaux de HAP élevés par rapport à la moyenne nationale.

La comparaison des moyennes de BaP des sites grenoblois et lyonnais avec les sites parisiens, entre les années 2002 et 2005, confirment les résultats du programme pilote. Ces deux agglomérations rhônalpines apparaissent comme particulièrement sensibles à la pollution par les HAP. En comparaison des niveaux parisiens, les concentrations moyennes sont plus élevées en proximité automobile et en site urbain de fond.

Différentes sources telles que les émissions industrielles et le chauffage résidentiel semblent être à l'origine de ces niveaux de concentrations élevés. Cependant, la présente étude montre qu'il est difficile d'identifier précisément l'apport respectif de chacune des sources d'émissions sur les niveaux de concentrations de HAP dans l'air ambiant, principalement pour deux raisons :

- Les mesures de HAP ne permettent pas de déterminer un « traceur spécifique » d'une source d'émission,
- il n'existe pas, à ce jour, d'inventaire détaillé des sources d'émissions de HAP au niveau de la région Rhône-Alpes.

Bien que le lien entre composés mesurés et sources soit difficile à établir, l'analyse détaillée des niveaux de HAP sur un site sous l'influence d'un émetteur industriel répertorié peut être confirmée grâce au croisement de plusieurs informations. Par exemple, sur le site de « Vénissieux Village », l'influence de la source industrielle localisée au nord peut être mise en évidence grâce à la comparaison des niveaux de concentrations par rapport à des sites de typologie différentes ou aux apports de HAP en fonction de différentes directions de vent.

En revanche, en zone rurale de montagne, il est délicat de tirer des conclusions à partir des mesures disponibles en raison de la faible représentativité de l'échantillon (Etude LCSQA sur la commune de Méaudre). Bien que la source d'émission de HAP dans ce secteur soit très probablement le chauffage résidentiel, il serait souhaitable de réaliser une série complète de mesures afin de les comparer aux autres sites de surveillance de la région.

Afin d'améliorer la connaissance de ces polluants (localisation des sources, quantification des émissions, mesures de concentrations dans l'air ambiant) au niveau de la région Rhône-Alpes plusieurs actions sont en cours dans le cadre du Plan de surveillance de la qualité de l'air en Rhône-Alpes :

- Au niveau de la surveillance continue : renforcement du dispositif avec des mesures en milieu urbain sur l'agglomération stéphanoise depuis janvier 2006 et janvier 2007 sur Lyon.
- Au niveau de la surveillance temporaire,

- Evaluation des niveaux de HAP pour les agglomérations de plus de 100 000 habitants qui répertorient un ou plusieurs établissements émettant plus de 50 kilogramme de HAP par an.
 - des campagnes de mesures de polluants émergents (HAP, COV, métaux lourds) sont en cours sur 3 grandes zones industrielles de la région Rhône-Alpes en partenariat avec la DRASS ;
 - Des participations à des programmes d'améliorations de connaissance (INERIS, laboratoires de recherche) sont en cours concernant la recherche de traceurs des émissions dues au chauffage au bois et à la pollution d'origine automobile.
- Enfin, un inventaire détaillé et un cadastre des émissions est en cours de réalisation pour les HAP.

Directive 96/62/CE du Conseil du 27 septembre 1996 concernant l'évaluation et la gestion de la qualité de l'air ambiant - Journal officiel n° L 296 du 21/11/1996 p. 0055 - 0063

Essai interlaboratoires sur les Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques – LCSQA - Convention 04000087 Financée par la Direction des Préventions des Pollutions et des Risques (DPPR) - ETUDE N°7 : RAPPORT 1/4 - JUIN 2004 - S. FABLE, M.P. STRUB

Hydrocarbures aromatiques dans l'air ambiant - Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air - Eva LEOZ-GARZIANDIA - Direction des Risques Chroniques - Loi sur l'Air – Convention 18/99 - Décembre 2000

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 - Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie - ADEME Editions, Paris, 2002.

Fiche de données toxicologiques et environnementales : HAP et benzo(a)pyène, Rapport INERIS-DRC-03-47026-ETSC-BDo-N°03DR177.doc, B.DOORNAERT&A.PICHARD, décembre 2003.

SAX'S, Dangerous properties of industrial materials. Ninth edition, Richard J., Lewis, SR, 1996

Le chauffage au bois, ADEME, septembre 2005

Identification des sources d'HAP particulières 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

Etude n°7 - Surveillance des HAP – Programme pilote de surveillance des HAP : rapport final - Novembre 2004 - Convention 04000087 - LCSQA/INERIS - Eva Leoz-Garziandia

Etude : Surveillance des HAP –Etudes en vue de la surveillance des HAP, rapport 2/2 – Novembre 2005 – Convention : 05000051- LCSQA/INERIS - Eva Leoz-Garziandia

Etude : Participation au programme pilote de surveillance des HAP, AIRFOBEP, septembre 2004

HAP – Décembre 2001 - Convention 41/2000 - LCSQA/INERIS - Eva Leoz-Garziandia, N. Bocquet, N.Guillaumet

Etude : Surveillance des HAP : caractérisation des zones non couvertes par le programme pilote HAP : campagne hivernale en Isère – Novembre 2005 –Convention 05000051, Eva Leoz-Garziandia <http://www.lcsqa.org/rapport/prog/prog2005.htm>

Etude de la dispersion atmosphérique des polluants rejetés par une usine de fabrications d'électrodes en carbone graphite à Vénissieux et Evaluation des risques sanitaires –CAREPS – Rapport ARIA/2001.028c, Mai 2001.

Combustion domestique au bois –INERIS-DRC/AIRE-06-70792-Ele-n°557, INERIS/CITEPA

Ambient Air Pollution by Polycyclic Aromatic Hydrocarbons - European Commission - Position Paper - 27/07/2001 - Working Group on PAH

Air Quality Guidelines for Europe - WHO Regional Publications, European Series, No. 91 - Second Edition – 2000

HAP dans l'air ambiant - INERIS - LAURE/Convention n°13/98 - Décembre 1999

ADEME, Dossier de Presse Dioxines et Polluants Organiques Persistants, Journées techniques nationales, 10 et 11 mars 2004

Expression des résultats HAP en région Rhône-Alpes

1 CONTEXTE

La parution de la directive 2004/107/CE concernant la surveillance dans l'air ambiant des HAP et Métaux lourds demande en annexe IV,

« Pour les substances devant être mesurées dans la fraction PM₁₀, les volumes d'échantillonnage se réfèrent aux conditions ambiantes ».

Cette exigence est en désaccord avec le programme pilote HAP (convention 41/2000 page 14/57) dont les préconisations étaient de se référer aux conditions normales de température (273,15 K et de pression (1013,25 HPa).

Le document LCSQ INERIS Etude n°7 (3/4) de novembre 2004 « recommandations pour le prélèvement et l'analyse des HAP préconisé par la 4^{ème} directive fille » évoque le problème page 22 : **« les AASQA devront donner les résultats en ng/m³ avec l'incertitude associée, avec le volume d'air calculé dans des conditions ambiantes ».**

Selon les AASQA et leurs interprétations des recommandations et textes réglementaires, il apparaît une disparité dans la méthode de calcul des résultats en conditions ambiantes.

2 METHODE DE REMISE EN CONFORMITE DES RESULTATS

Afin d'être homogène, l'ensemble des données de COPARLY et ASCOPARG ont été corrigées jusqu'en 2006 avec un volume réel de température et de pression à partir de données météo-France.

Formule de calcul du volume à partir de données météo

Soit V_{recalculé} = volume recalculé en utilisant des données météo extérieures à l'appareil.

D'après la loi des gaz parfait PV=nRT

$$V_{\text{recalculé}} = \frac{1013,25}{273,15} \times \frac{V_{\text{Normal}} \times T_{\text{Météo}}}{P_{\text{Météo}}}$$

3 IMPACT DES CORRECTIONS DE VOLUME SUR LES STATISTIQUES ANNUELLES EN HAP

Les résultats varient d'environ 5% par rapport aux résultats exprimés en volume normal. Les valeurs ne sont donc pas comparables aux autres réseaux (à l'exception D'AIRPARIF) dont la plupart calculent leur données avec un volume normal.

Résultats avant et après correction en BaP :

<i>Stations</i>	<i>Conditions normales (ng.m⁻³)</i>	<i>Conditions réelles (ng.m⁻³)</i>	<i>Ecart en %</i>
<i>Grenoble Trafic (Rondeau) Année 2003 – Station fixe</i>	<i>1,37</i>	<i>1,32</i>	<i>- 5 %</i>
<i>Grenoble Trafic (Rondeau) Année 2004 – Station fixe</i>	<i>0,94</i>	<i>0,90</i>	<i>- 4 %</i>
<i>Grenoble Urbain (Les Frênes) Année 2005 – Station fixe</i>	<i>0,61</i>	<i>0,59</i>	<i>- 2 %</i>
<i>Grenoble Urbain (Les Frênes) 2006 – Station fixe</i>	<i>0.83</i>	<i>0.83</i>	<i>0%</i>
<i>Lyon Industriel Vénissieux Année 2005 – Station fixe</i>	<i>1,34</i>	<i>1,28</i>	<i>- 4 %</i>
<i>Lyon Industriel Vénissieux Année 2006 – Station fixe</i>	<i>1.89</i>	<i>1.81</i>	<i>- 8%</i>
<i>Lyon Industriel Etats-Unis Année 2005 – Station fixe</i>	<i>0.75</i>	<i>0.73</i>	<i>- 2 %</i>
<i>Lyon Industriel Etats-Unis Année 2006 – Station fixe</i>	<i>0.87</i>	<i>0.83</i>	<i>- 4%</i>