



Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP)

Laboratoire Central de Surveillance
de la Qualité de l'Air

Convention 115/2003

Eva LEOZ-GARZIANDIA

*Unité Qualité de l'Air
Direction des Risques Chroniques*

DECEMBRE 2003

Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP)

Laboratoire Central de Surveillance
de la Qualité de l'Air

Convention 115/2003
Financée par la Direction des Préventions des Pollutions et des
Risques (DPPR)

DECEMBRE 2003

**N. BOCQUET, C. DENIZE, S. FABLE, A. FIEVET, N. GUILLAUMET,
K. MOIREZ, M. ROUEZ, M.P. STRUB,
E. LEOZ-GARZIANDIA**

Ce document comporte 25 pages (hors couverture et annexes).

	Rédaction	Vérification	Approbation
NOM	Eva LEOZ-GARZIANDIA	Rémi PERRET	Martine RAMEL
Qualité	Unité Qualité de l'Air Direction des Risques Chroniques	Responsable de l'Unité Qualité de l'Air Direction des Risques Chroniques	Responsable LCSQA/INERIS Direction des Risques Chroniques
Visa			

TABLE DES MATIERES

1. RÉSUMÉ	3
2. INTRODUCTION	4
3. CARACTERISATION DES ZONES NON COUVERTES PAR LE PROGRAMME PILOTE HAP	5
3.1 Campagne ATMO Champagne Ardenne	5
3.2 Bilan des campagnes effectuées	16
4. TRAVAUX D’ASSISTANCE AUX AASQA	17
4.1 Journée utilisateurs ASE	17
4.2 Campagne d’intercomparaison laboratoire des HAP	17
5. TRAVAUX EUROPÉENS.....	19
5.1 La directive fille européenne relative aux HAP	19
5.2 Le groupe CEN TC 264 WG 21	21
6. LISTE DES ABRÉVIATIONS	23
7. LISTE DES ANNEXES.....	25

1. RESUME

Depuis deux ans l'INERIS réalise des campagnes de prélèvement des HAP dans des zones non couvertes par le programme pilote HAP afin de caractériser les concentrations de ces composés sur différents sites.

Cette année une campagne a été réalisée autour d'une fonderie de fonte en collaboration avec ATMO Champagne Ardenne. Bien qu'une étude plus approfondie des résultats obtenus soit prévue courant 2004 avec le réseau, les résultats des HAP montrent que les concentrations observées durant cette campagne restent relativement faibles et comparables aux concentrations observées dans certaines zones urbaines ou péri-urbaines. En ce qui concerne le B(a)P, les concentrations observées sont très en dessous de la valeur cible préconisée par la future directive fille.

Compte tenu des faibles vitesses de vent observées durant la campagne ($v < 2$ m/s), la différence des concentrations observée pendant certains jours ne peut pas être expliquée par la seule influence de la fonderie, puisque les vents relativement faibles ne facilitent pas la dispersion des polluants émis par la fonderie.

En ce qui concerne l'assistance aux AASQA, l'INERIS a organisé courant 2003 une journée thématique sur l'extraction par ASE des filtres et des mousses en polyuréthane pour l'analyse des HAP. Cette expérience pourrait être renouvelée sur d'autres thèmes précis.

Une campagne d'intercomparaison entre 11 laboratoires a également été organisée par l'INERIS fin 2003. Les résultats seront traités en janvier 2004.

En ce qui concerne les travaux de normalisation du groupe de travail européen, ils prennent du retard, à cause de la demande de la commission européenne de prise en compte de la réactivité du B(a)P pendant le prélèvement. Un nouveau protocole de travail a donc été adressé à la commission pour acceptation.

2. INTRODUCTION

Dans le souci d'anticiper la future directive européenne, nous avons poursuivi en 2003 nos campagnes de prélèvement visant à caractériser les concentrations des HAP et HAP oxygénés sur des sites suspectés d'être émetteurs de ces composés.

Cette année seulement une campagne de prélèvement a été effectuée. Nous nous sommes rapprochés d'ATMO Champagne Ardenne pour effectuer une semaine de prélèvement autour d'une fonderie.

Dans le cadre de l'assistance aux AASQA qui voudront démarrer la mesure des HAP, nous avons également réalisé cette année une campagne de comparaison inter-laboratoire à laquelle 11 laboratoires ont participé.

Nous avons de plus organisé une journée d'échange entre le laboratoire d'analyse de l'INERIS et les participants à la campagne d'inter comparaison, sur l'utilisation de la technique ASE (accelerated solvent extraction) pour l'extraction des HAP. Le fabricant a participé à cette journée qui a eu lieu à l'INERIS le 21 octobre 2003.

En parallèle aux travaux français, les travaux européens prendront un peu de retard comme conséquence à la récente prise en compte (à la demande de la commission) de la réactivité du B(a)P vis à vis de l'ozone pendant la durée du prélèvement. Des travaux récents semblent mettre en évidence des pertes non négligeables du B(a)P en présence d'ozone qui pourraient avoir comme conséquence une sous estimation de la concentration moyenne annuelle.

Suite à ces changements, les campagnes de prélèvements prévues par le GT européen en janvier 2004 risquent de prendre du retard et ne pas démarrer avant le deuxième semestre 2004.

3. CARACTERISATION DES ZONES NON COUVERTES PAR LE PROGRAMME PILOTE HAP

Depuis 2002 nous nous sommes proposés de caractériser des zones non couvertes par le programme pilote HAP. En effet, très peu de données existent d'une part, sur les sites de fond alors que ce type de site pourrait être utilisé comme référence, et d'autre part, pour les sites suspectés d'avoir des fortes concentrations en HAP (hot spots) pouvant de ce fait donner lieu à des expositions importantes de la population environnante (sites industriels, sites urbains à fort trafic...).

En 2003, nous avons été sollicités par ATMO Champagne Ardenne pour une étude HAP dans leur région. L'association souhaitait obtenir des données sur une zone industrielle localisée en Haute-Marne. Cette année, une seule campagne d'une semaine a donc été réalisée, à proximité d'un site industriel, en collaboration avec ATMO Champagne Ardenne.

Durant cette campagne les HAP ainsi que les HAP oxygénés ont été étudiés. Nous tenons à remercier ATMO Champagne Ardenne pour son accueil et sa collaboration, avant, durant, et après la campagne de prélèvement.

3.1 CAMPAGNE ATMO CHAMPAGNE ARDENNE

La campagne a été réalisée à Saint-Dizier (Haute Marne) et concernait la mesure de HAP (gérée par l'INERIS) et la mesure des polluants suivants (gérée par ATMO Champagne Ardenne) : oxydes d'azote, ozone, dioxyde de soufre, poussières de taille inférieure à 10 micromètres, métaux (aluminium, arsenic, cadmium, chrome, cuivre, plomb, manganèse, zinc, mercure), aldéhydes, et 30 composés organiques volatils précurseurs de l'ozone.

Le site de Saint-Dizier a été retenu parce qu'il comporte une zone industrielle au sein de laquelle se trouve notamment une fonderie de fonte de seconde fusion et à proximité d'habitations et d'un collège.

Des données issues d'analyses réalisées en 2000 et fournies par la DRIRE de Champagne-Ardenne montrent effectivement des émissions de HAP en sortie de cubilots de la source industrielle la plus importante. Elles s'élèvent à $3,39 \mu\text{g}/\text{Nm}^3$ (soit 64,5 mg/h) avant lavage, et à $1,94 \mu\text{g}/\text{Nm}^3$ (soit 36,9 mg/h) après lavage.

L'exploitation de l'ensemble des résultats figurera dans le rapport de l'association ATMO Champagne Ardenne.

3.1.1 Sites de prélèvement

Compte tenu de la taille du site, et afin de mieux le caractériser, deux appareils ont été mis en place sur deux sites différents, placés sous les vents dominants et à proximité du site industriel. Ils ont tous les deux fonctionné pendant 24 heures avec un changement de filtre et des mousses en fin de chaque prélèvement.

Les deux points de mesure qui ont été retenus sont les suivants (voir figure 1):

Un premier point, chez un particulier situé au Nord-Est de l'entreprise. Ce particulier s'est plaint à plusieurs reprises de nuisances olfactives ainsi que de particules noirâtres retombées sur son mobilier de jardin.

Un second point, au collège La Noue situé au Sud-Est de l'entreprise. Seulement un terrain de sport et un canal séparent le collège de la fonderie

Nous avons installé chez le particulier un DA 80 pour le prélèvement des HAP, et des tubes passifs pour le prélèvement des aldéhydes ont été installés par ATMO Champagne Ardenne.

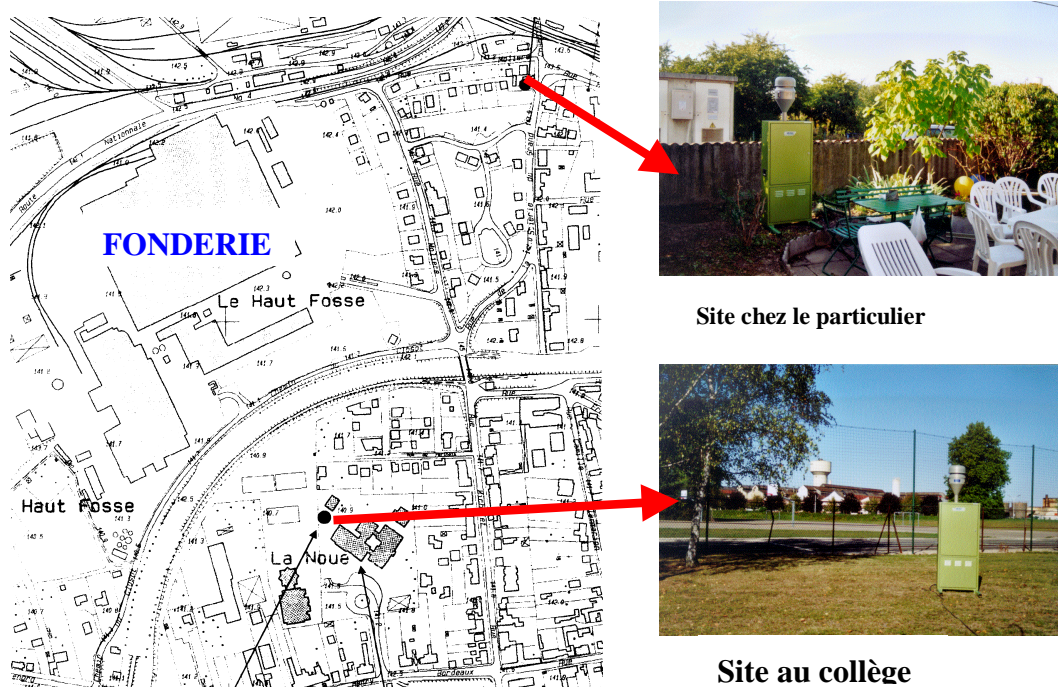


Figure 1. Points de prélèvement autour de la fonderie à Saint Dizier

Dans le collège nous avons installé un DA 80, et ATMO Champagne Ardenne a mis en place son camion laboratoire qui a mesuré les paramètres suivants :

- les oxydes d'azote (AC31M de Environnement SA)
- l'ozone (O341M de Environnement SA)
- le dioxyde de soufre (AF21M de Environnement SA)
- les particules (TEOM PM10)
- les composés organiques volatils précurseurs de l'ozone (Canisters en prélèvement 24h)
- les métaux (Partisol Plus)
- la météo (vitesse et direction du vent ainsi que température)

Sur ce site ont également été mesurés par ATMO Champagne Ardenne les aldéhydes au moyen de tubes à diffusion passive (de type Radiello).

Le DA-80, appareil grand débit de MEGATEC nous a permis de prélever les phases gazeuses et particulaire simultanément.

Nous avons utilisé le modèle transformé par le constructeur de façon à pouvoir utiliser la même taille de mousses que l'appareil ANDERSEN. Des filtres en fibre de quartz (150 mm) et des mousses en polyuréthane (diamètre 64 mm, hauteurs 52 et 25 mm) ont été utilisés.

L'appareil a fonctionné avec un débit de 30 m³/h et était équipé d'une tête PM 10.

3.1.2 Déroulement de la campagne

La durée de la campagne a été de 7 jours: du 24 septembre au 1^{er} octobre 2003. Le temps a été ensoleillé sur la presque totalité de la période, avec deux épisodes pluvieux: le premier, durant la nuit du 27 au 28 septembre et le second, dans la nuit du 30 septembre au 1^{er} octobre.

Les prélèvements de HAP, de métaux et de COV se sont déroulés sur 24 heures durant la période de mesure.

Les prélèvements d'aldéhydes étaient hebdomadaires (installés le 30/09, retirés le 01/10).

Les mesures d'oxydes d'azote, d'ozone, de dioxyde de soufre, de poussières de taille inférieures à 10 micromètres ont été réalisées en continu.

3.1.3 Méthode analytique HAP

La totalité des analyses des HAP ont été réalisées à l'INERIS.

Tous les filtres et les mousses (PUF) ont été extraits par ASE (Accelerated Solvent Extraction) avec du dichlorométhane.

La concentration de l'extrait a été effectuée sous flux d'azote, avec reprise par un volume connu d'acétonitrile.

- Les HAP :

Les échantillons ont été analysés par HPLC en phase inverse avec une détection fluorimétrique avec neuf changements de longueur d'onde, de façon à optimiser la résolution et la quantification des pics.

La limite de quantification préconisée dans les conditions d'analyse pour cette campagne, est de l'ordre de 0.002 à 0.02 ng/m³, soit entre 1 et 15 ng/ml.

18 HAP ont été analysés : *naphthalène (NAP)*, *acénaphthylène (ACE)*, *acénaphène (AC)*, *fluorène (FLN)*, *phénanthrène (PHE)*, *anthracène (ANT)*, *fluoranthène (FL)*, *pyrène (PY)*, *benzo(a)anthracène (B(a)A)*, *chrysène (CHR)*, *benzo(e)pyrène (B(e)P)*, *benzo(b)fluoranthène (B(b)F)*, *benzo(k)fluoranthène (B(k)F)*, *benzo(a)pyrène (B(a)P)*, *dibenzo(a,h)anthracène (DB(ah)A)*, *benzo(g,h,i)perylène (B(ghi)P)* et *indeno(1,2,3-cd)pyrène (IP)* et *Coronène (COR)*.

- Les HAP oxygénés :

Les échantillons ont été analysés par HPLC en phase inverse avec détection par UV.

La limite de quantification préconisée dans les conditions d'analyse pour ces campagnes, est de l'ordre de 2.5 à 8 ng/ml, soit entre 0.008 à 0.025 ng/m³.

Quatre HAP oxygénés ont été analysés : 1-naphtaldéhyde (NAPal), 9-fluorenone (FLone), anthraquinone (ANTqnone) et phénanthrène-9-carboxaldéhyde (PHEcaral).

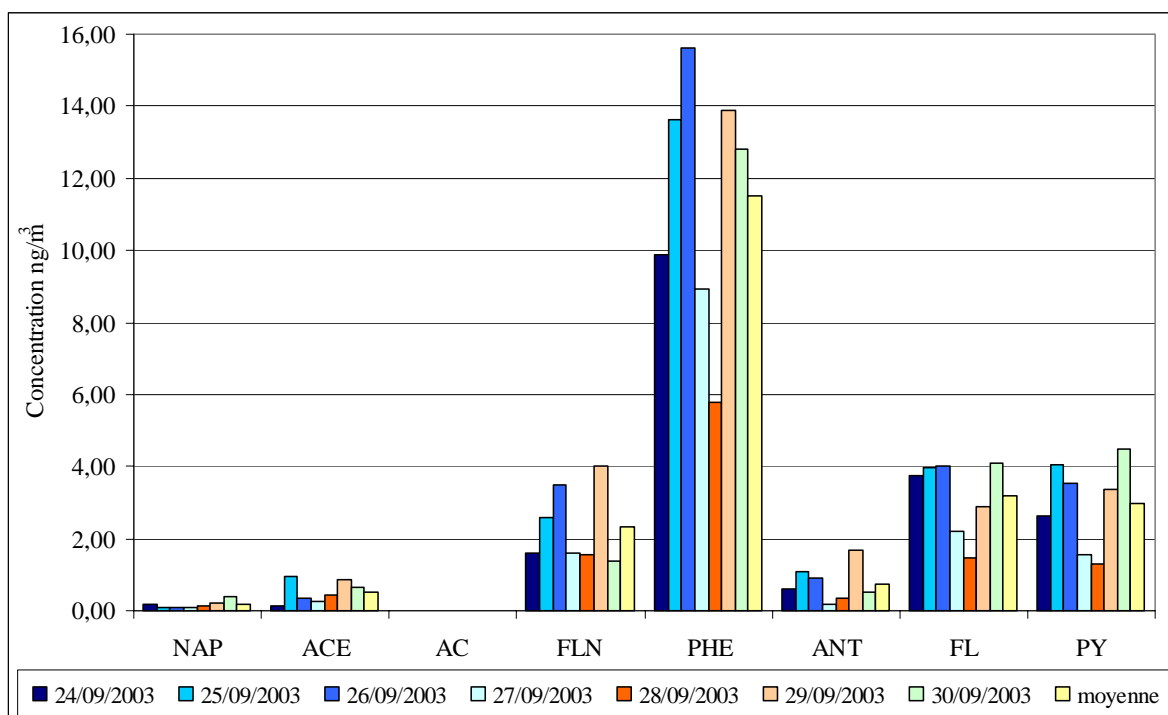
Des blancs de laboratoire et des blancs de terrain ont été effectués. Tous les résultats ont été corrigés de la valeur des blancs mais ils n'ont pas été corrigés par rapport aux taux de récupération.

3.1.4 Résultats des HAP

Tous les résultats obtenus sont présentés en annexe 1.

3.1.4.1 Site du collège

Dans les graphiques suivants sont présentés les résultats obtenus pour les HAP totaux (phase gazeuse et particulaire) par jour ainsi que la moyenne (en jaune sur les graphiques) obtenue pour toute la semaine de prélèvement (graphique 1 : les HAP les plus légers, graphique 2 : les HAP les plus lourds).

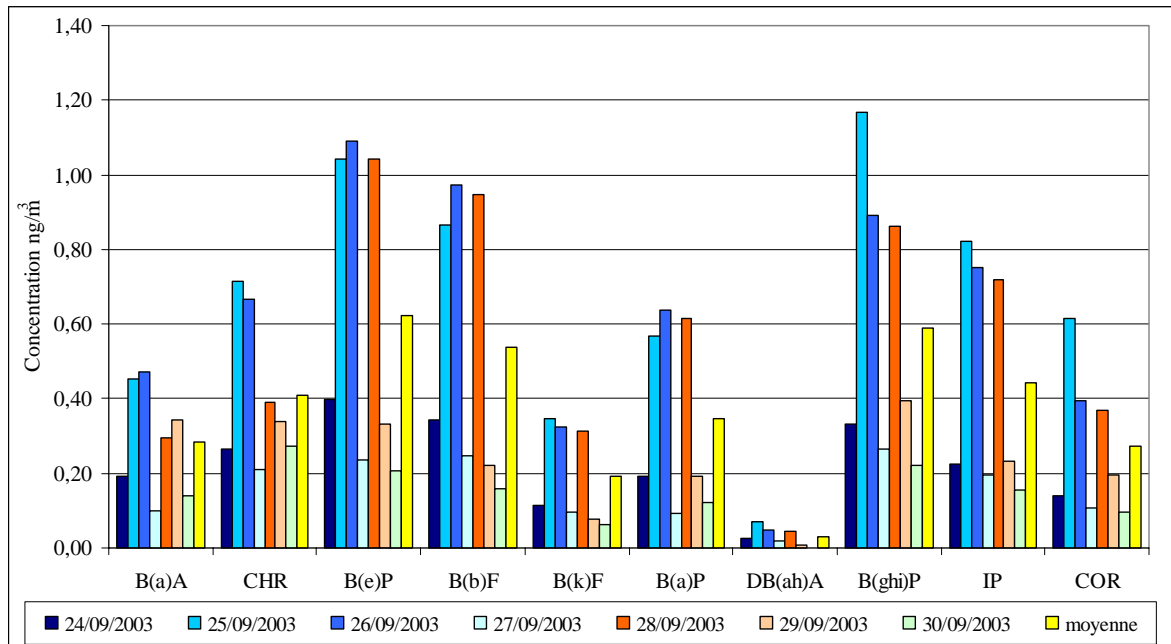


Graphique 1. Concentration des HAP totaux (I) au collège

On constate que pour les composés les plus légers (graphique 1), les concentrations les plus faibles sont observées les 27 et le 28 septembre, ce qui correspond à samedi et dimanche.

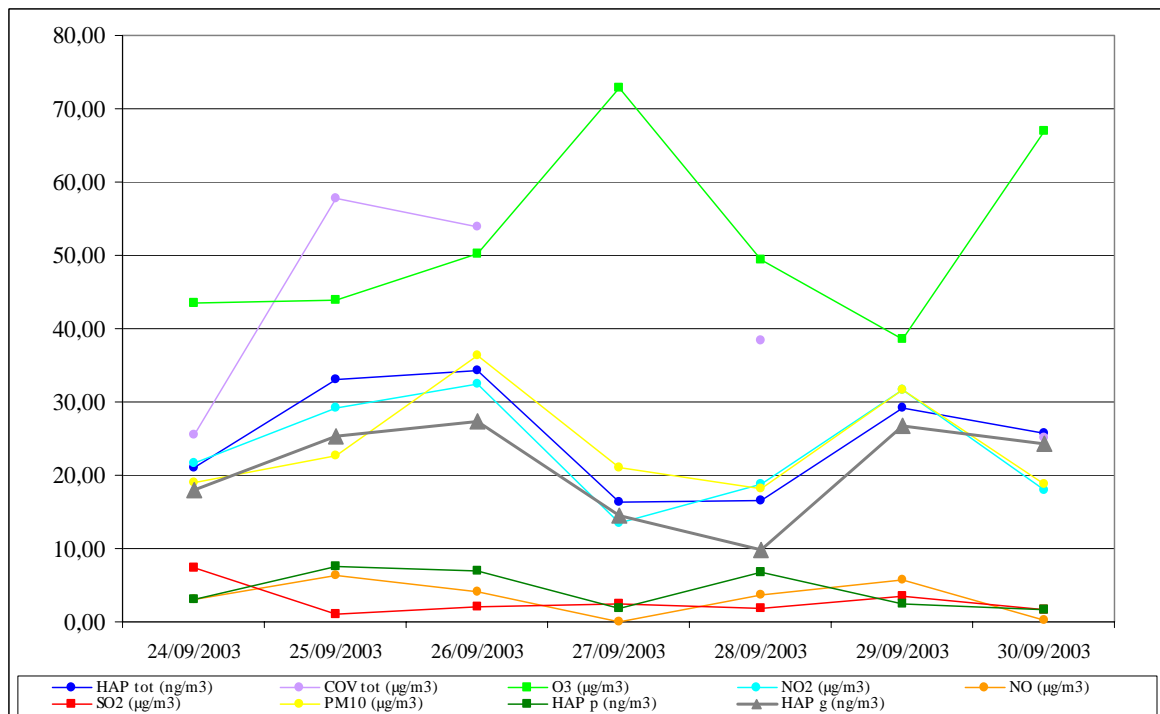
Le composé majoritaire en phase gazeuse est le PHE, ce qui a déjà été observé dans nos précédentes campagnes, suivi du FL et du PY, qui sont des composés marqueurs des émissions des véhicules diesels.

Pour les composés les plus lourds (graphique 2) les concentrations les plus faibles sont au contraire observées les 24, 27, 29 et 30 septembre, le mercredi, samedi, lundi et mardi respectivement.



Graphique 2. Concentration des HAP totaux (II) au collège

ATMO Champagne Ardenne avait placé son camion laboratoire sur ce même site. Dans le graphique suivant sont présentés les données mesurées par le camion laboratoire, les COV totaux prélevés par canister ainsi que les données obtenues pour les HAP particuliers, gazeux et totaux.



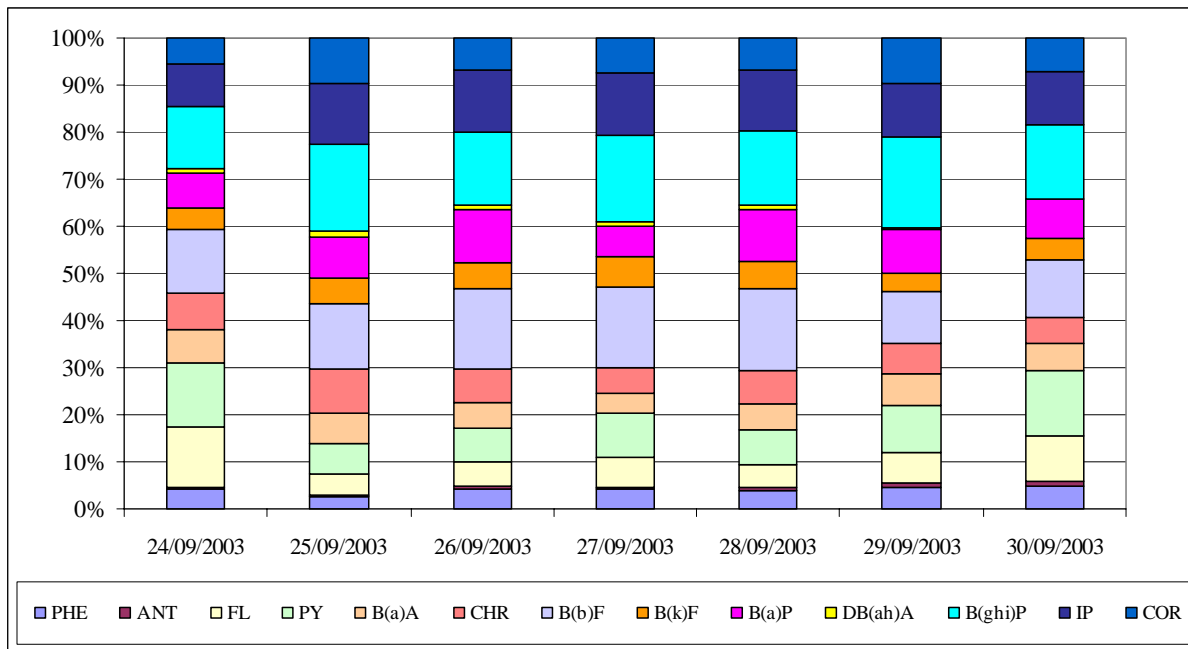
Graphique 3. Données complémentaires et HAP au collège

On n’observe pas de corrélations importantes entre les HAP et les autres composés mesurés, si ce n’est un coefficient de corrélation de 0.710 entre les HAP totaux et les PM10 et de 0.706 entre les HAP et les COV totaux.

Le 27 septembre est observé la plus forte concentration en O₃ (72,8 µg/m³) avec la plus faible concentration pour les HAP, ce qui est en accord avec la réactivité atmosphérique bien connue de ces composés. D’ailleurs, c’est aussi le 27 qu’on observe la plus faible concentration pour le B(a)P, HAP reconnu comme étant le plus réactif.

Si on tient compte des profils journaliers des HAP particuliers obtenus lors de cette campagne (voir graphique 4) on n’observe pas de différence significative entre les différents jours et les niveaux de concentration restent faibles.

La contribution des HAP les plus lourds est très importante durant toute la semaine, de l’ordre de 30 à 40 % du total, ce qui laisse supposer une contribution importante des émissions des véhicules, puisque ces composés sont considérés comme traceurs des véhicules à essence.



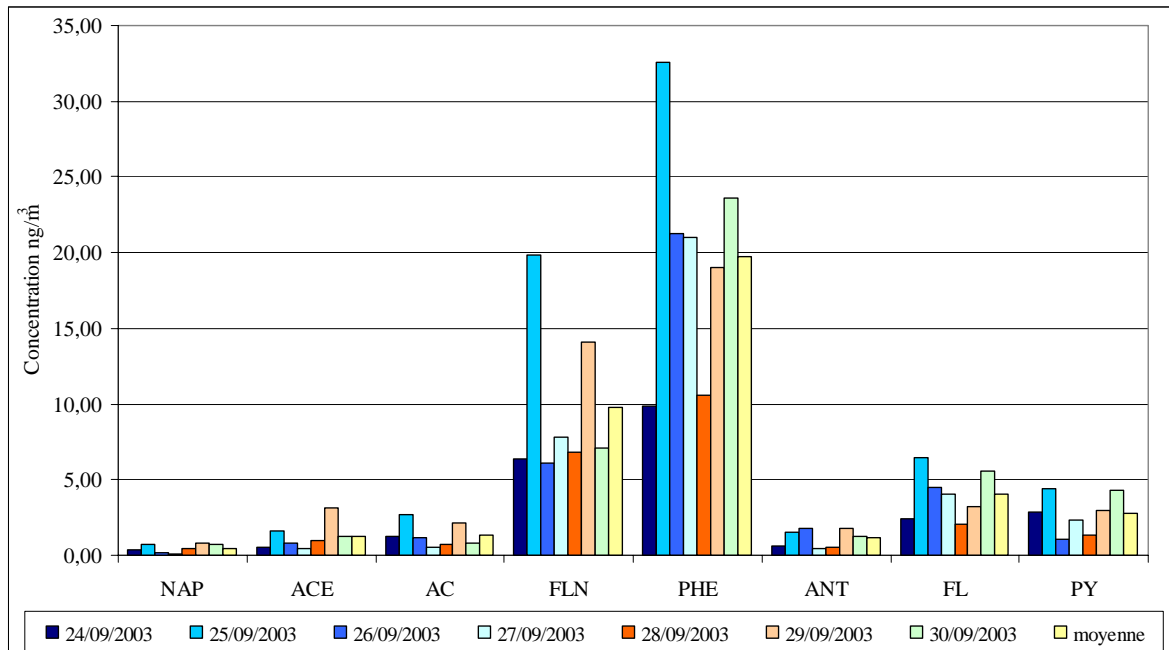
Graphique 4. Profils journaliers des HAP particuliers sur le collège

La contribution des HAP marqueurs des émissions des fonderies (FL, B(a)A et B(b)F) est faible en comparaison avec la contribution des sources mobiles (vent dominant Nord Est la plupart du temps alors que les vents favorables à une mesure de HAP d’origine industrielle aurait dû être : Nord Ouest pour le collège).

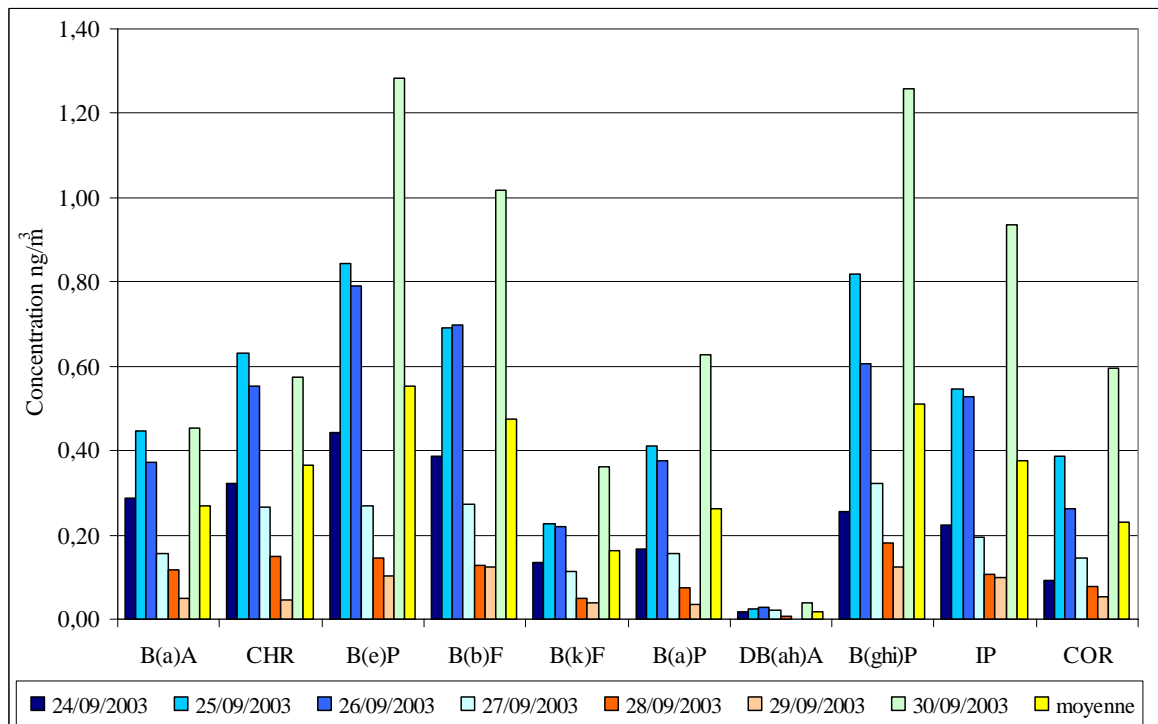
En ce qui concerne la répartition gaz/particule, 83 % des HAP se trouvent, en moyenne, en phase gazeuse, pour une température moyenne pendant la période de prélèvement de 16 °C.

3.1.4.2 Site chez un particulier

Dans les graphiques suivants sont présentés les résultats obtenus pour les HAP totaux (phase gazeuse et particulaire) par jour ainsi que la moyenne (en jaune sur les graphiques) obtenue pour toute la semaine de prélèvement, sur le site instrumenté chez un particulier.



Graphique 5. Concentration des HAP totaux (I) chez le particulier

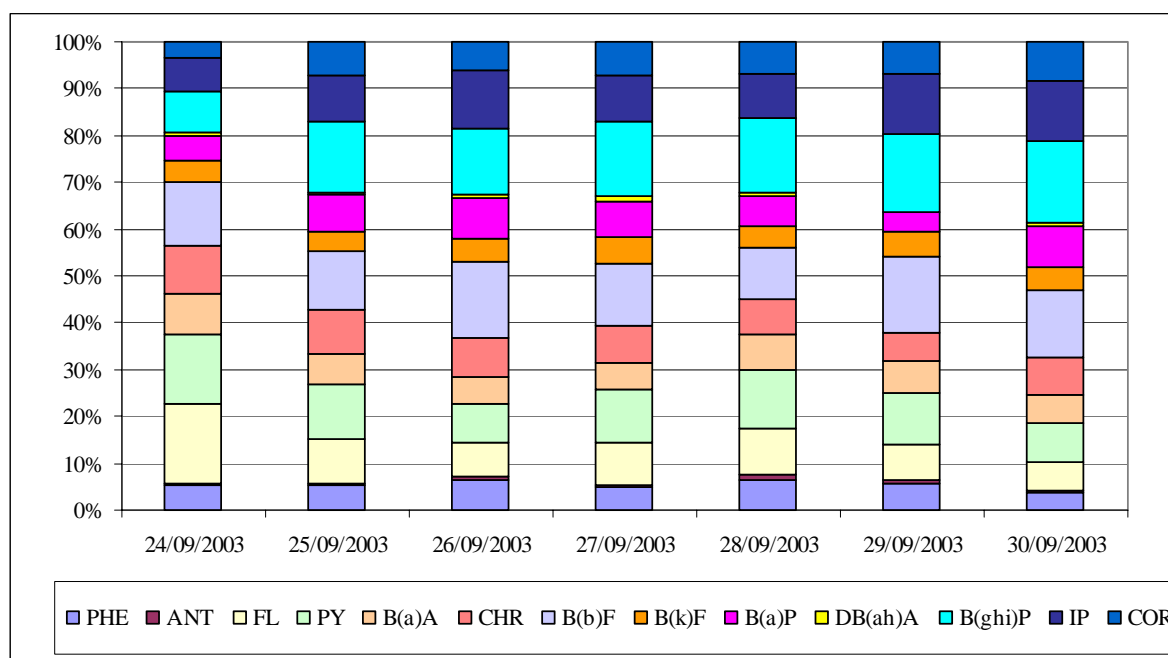


Graphique 6. Concentration des HAP totaux (II) chez le particulier

Pour les composés les plus légers on observe les concentrations les plus élevées pour le PHE et le FLN, avec des maximums le jeudi 25 septembre.

En ce qui concerne les HAP les plus lourds, les plus fortes concentrations sont observées le 30 septembre alors que les plus faibles sont observées pendant le week-end, les 27 et 28 septembre.

En ce qui concerne le profil des HAP particuliers, dans le graphique 7 on peut constater que les profils ne varient pas énormément d'un jour à l'autre, et qu'aucune différence est à remarquer pour la journée du 30 septembre pour laquelle des plus fortes concentrations en HAP ont été observées, si ce n'est une plus importante contribution des HAP les plus lourds (40 %) alors qu'en moyenne sur ce site ils ne représentent que 32 % en moyenne.

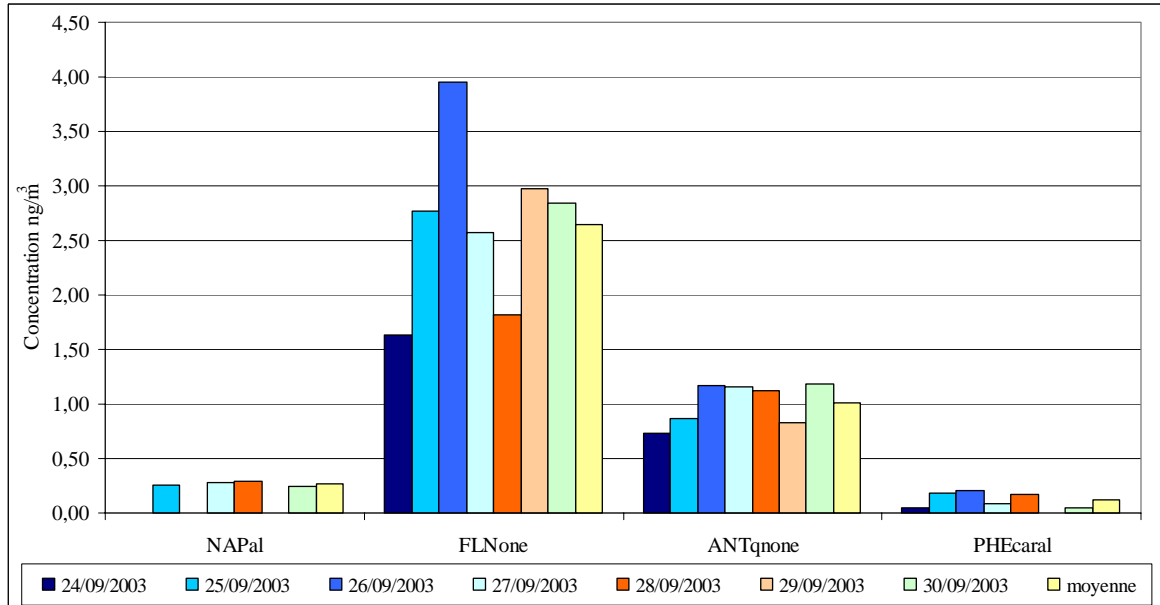


Graphique 7. Profils journaliers des HAP particuliers chez le particulier

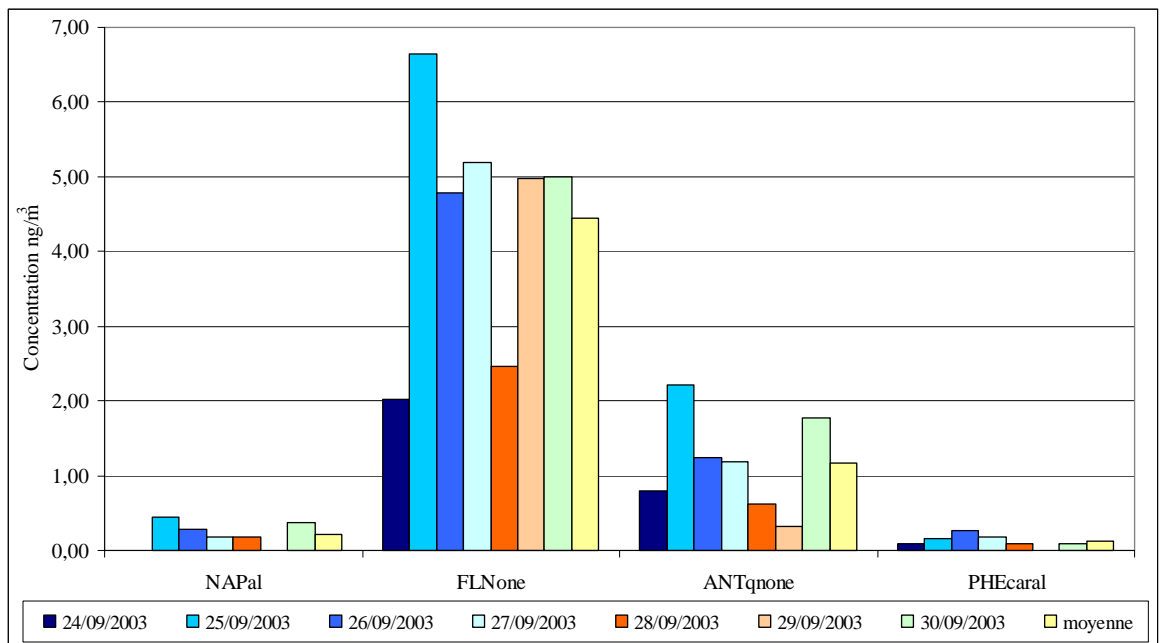
En ce qui concerne la répartition gaz/particule, 90 % des HAP se trouvent, en moyenne, en phase gazeuse, pour une température moyenne pendant la période de prélèvement de 16.6 °C.

3.1.5 Résultats des HAP oxygénés

En ce qui concerne les HAP oxygénés, les graphiques suivants présentent les résultats obtenus sur les deux sites.



Graphique 8. Concentrations des HAP oxygénés totaux au collège



Graphique 9. Concentrations des HAP oxygénés totaux chez le particulier

On observe que sur les deux sites le composé majoritaire est la 9-fluorenone suivi de l'antraquinone.

Sur les deux sites on observe les plus faibles concentrations en 9-fluorenone les 24 et 28 septembre alors que les plus fortes concentrations ne sont pas mesurées la même journée sur les deux sites.

Les HAP oxygénés se trouvent à 75 % et 77 % en phase gazeuse, sur le site du collège et chez l'habitant respectivement.

3.1.6 Comparaison entre les deux sites

Sur le tableau suivant sont présentés les moyennes obtenues pour les HAP et les HAP oxygénés totaux (en ng/m³) obtenues sur les deux sites.

	Collège	Chez hab
NAP	0,16	0,48
ACE	0,52	1,26
AC	0,00	1,33
FLN	2,32	9,74
PHE	11,49	19,71
ANT	0,75	1,13
FL	3,20	4,04
PY	2,99	2,75
B(a)A	0,28	0,27
CHR	0,41	0,36
B(e)P	0,62	0,55
B(b)F	0,54	0,47
B(k)F	0,19	0,16
B(a)P	0,35	0,26
DB(ah)A	0,03	0,02
B(ghi)P	0,59	0,51
IP	0,44	0,38
COR	0,27	0,23
NAPal	0,95	0,21
FLNone	2,65	4,44
ANTqnone	1,01	1,17
PHEcaral	0,12	0,13

Tableau 1. Comparaison entre les concentrations totales moyennes (ng/m³) sur les deux sites

On observe que si les HAP les plus légers sont majoritaires sur le site chez l'habitant, les HAP lourds se trouvent à des concentrations un peu plus élevées sur le site du collège.

En ce qui concerne les HAP oxygénés, les concentrations obtenues sont très semblables sur les deux sites à l'exception de la 9-fluorenone qui se trouve à une concentration deux fois plus élevée sur le site chez le particulier.

Dans la figure suivante est présentée la rose des vents pour la période de prélèvements, obtenue par le camion laboratoire d'ATMO Champagne Ardenne, sur le site du collège.

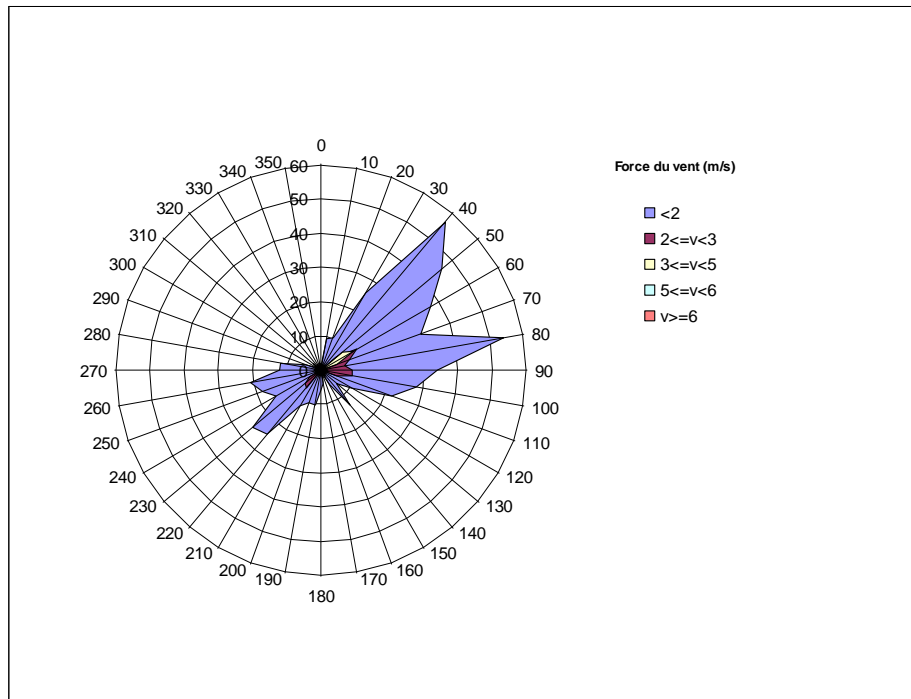


Figure 2. Rose de vents sur toute la période (données ATMO Champagne Ardenne)

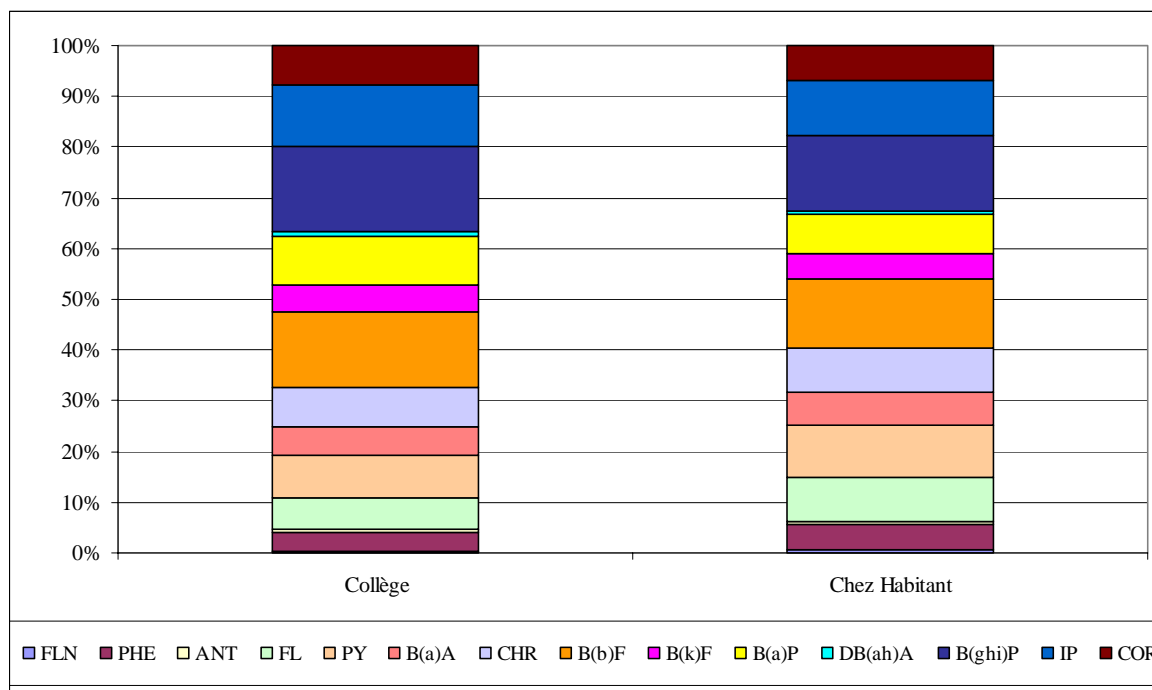
Les vents dominants durant cette période de l'année proviennent du Sud-Ouest (vents les plus forts) ainsi que de l'Est- Sud-Est (vitesse <5m/s).

On observe que durant la campagne les sites de prélèvement n'étaient pas situés sous le vent de la fonderie, puisque les vents étaient majoritairement du Nord-Est. Toutefois, durant les quelques épisodes de vent Sud-Ouest, le site chez l'habitant se trouverait sous l'influence de la fonderie.

Compte tenu des faibles vitesses de vent observées durant la campagne ($v < 2$ m/s), qui n'étaient pas favorables par rapport à la source industrielle, nous n'avons pas observé d'effet panache. Les concentrations mesurées sont donc des concentrations de fond, compte tenu de la dispersion autour des sources dans toutes les directions. Les faibles différences observées entre les deux sites ne sont pas révélatrices d'une influence spécifique marquée

Les concentrations observées durant cette campagne restent relativement faibles et comparables aux concentrations observées dans certaines zones urbaines ou péri-urbaines. En ce qui concerne le B(a)P, les concentrations observées sont très en dessous de la valeur cible préconisée par la future directive fille (1 ng/m³ de B(a)P en moyenne annuelle).

En ce qui concerne les profils des HAP particulières, dans le graphique 10, on observe que les profils sont très similaires sur les deux sites, avec une contribution légèrement plus importante des composés lourds (COR, IP et B(ghi)P), marqueurs des émissions des véhicules à essence.



Graphique 10. Profils moyens pour les HAP particulières sur les deux sites

Sur le site chez l’habitant la contribution des HAP marqueurs des émissions des fonderies semble présenter une contribution un peu plus élevée que sur le site du collège (30 % contre 27 %), mais il faut rester prudent compte tenu des faibles vitesses de vent constatées durant la campagne et de la différence si faible observée.

3.2 BILAN DES CAMPAGNES EFFECTUEES

Durant 2002 et 2003 nous avons effectué plusieurs campagnes de prélèvement visant à caractériser les HAP sur différentes zones qui n’étaient pas concernées par le programme pilote national de surveillance des HAP.

Quatre campagnes d’une semaine ont été réalisées en collaboration avec quatre AASQA sur quatre sites différents : deux sites industriels (LIG’AIR et ATMO Auvergne), un site de fond (ORAMIP) et un site trafic (Air APS). Cette année nous avons réalisé une seule campagne mais nous tenons à continuer l’année prochaine avec au moins deux campagnes.

Le bilan des résultats obtenus ainsi que son intégration dans le programme pilote HAP sera effectué dans le premier semestre 2004 et sera présenté dans le rapport final du programme pilote.

4. TRAVAUX D'ASSISTANCE AUX AASQA

Dans le cadre de l'assistance aux AASQA qui voudront démarrer la mesure des HAP, nous avons réalisé cette année une campagne d'intercomparaison laboratoire dans laquelle en plus des sept laboratoires partenaires du programme pilote HAP, quatre nouveaux laboratoires ont participé.

Nous avons également proposé une journée d'échanges entre le laboratoire d'analyse de l'INERIS et les participants à la campagne d'inter comparaison, sur l'utilisation de la technique ASE (accelerated solvent extraction) pour l'extraction des HAP. Le fabricant a également participé à cette journée qui a eu lieu à l'INERIS le 21 octobre 2003.

4.1 JOURNEE UTILISATEURS ASE

Une réunion concernant l'utilisation de la technique ASE (Accelerated solvent extraction) pour l'extraction des filtres et mousses en polyuréthane a eu lieu à l'INERIS le 21 octobre 2003. Cette réunion a été organisée suite aux nombreux appels des laboratoires participants au programme pilote HAP, concernant ce sujet. Il a donc été décidé, avec la participation de DIONEX, d'organiser une journée d'échanges entre les utilisateurs et le fournisseur. Cette journée a également été proposée aux laboratoires ne faisant pas partie du programme pilote mais participant à la campagne d'inter comparaison du mois de novembre 2003.

Tous les participants se sont déclarés satisfaits de la journée. Nous étudierons la possibilité d'organiser d'autres journées de ce type, sur le même ou sur d'autres sujets qui pourraient intéresser les laboratoires ainsi que les AASQA.

Le compte rendu de la réunion se trouve en annexe 2.

4.2 CAMPAGNE D'INTERCOMPARAISON LABORATOIRE DES HAP

Une deuxième campagne d'inter comparaison a été organisée par l'INERIS en novembre 2003.

Onze laboratoires ont participé à cette campagne, les sept laboratoires participant au programme pilote :

CARSO

Institut Pasteur de Lille

Laboratoire chimie et environnement (LCE)

Laboratoire d'hygiène de la ville de Paris (LHVP)

Laboratoire de Rouen-ETSA

Laboratoire départemental d'analyse de la Charente Maritime (LDA 17)

Laboratoire départemental Frank Duncombe

Et quatre autres :

ATMO Picardie

IANESCO chimie

Laboratoire de chimie moléculaire et environnement (LCME)

Micropolluants technologie

Un courrier avait été adressé courant octobre à plusieurs AASQA (19 au total) les informant de cette campagne afin de faire passer le message à leur laboratoire habituel. La liste avait été élaborée avec l'ADEME en tenant compte des AASQA qui étaient équipées en DA-80 ou qui avait exprimé le souhait de s'en équiper pour le prélèvement des HAP.

4.2.1 Déroulement de l'inter comparaison

Un premier appel a été réalisé par mail le 28 août 2003, ensuite le 19 septembre un courrier a été adressé avec un document décrivant le déroulement de la campagne d'inter comparaison HAP ainsi qu'un bulletin d'inscription.

Tous les documents et imprimés qui ont été envoyés pour cette intercomparaison se trouvent en annexe 3.

Onze laboratoires ont répondu à notre demande avant le 8 octobre 2003.

Comme il était indiqué sur le document d'information, le formulaire des consignes ainsi que le formulaire d'analyses ont été envoyés par mail pour information la semaine 42.

Les échantillons : deux solutions étalons, un matériau solide et un extrait d'un prélèvement réel ont été envoyés par courrier la semaine 45 avec tous les documents envoyés précédemment mais sous format papier.

Les résultats sont arrivés à l'INERIS début décembre et le dépouillement ainsi que l'exploitation statistique sont en cours.

Les résultats seront disponibles fin janvier et seront intégrés dans le rapport final du programme pilote.

5. TRAVAUX EUROPEENS

Cette partie est intégrée dans le programme normalisation du LCSQA et présentée dans ce document pour mémoire.

5.1 LA DIRECTIVE FILLE EUROPEENNE RELATIVE AUX HAP

Il s'agit de la directive relative à l'arsenic, au cadmium, au mercure, au nickel, et aux hydrocarbures aromatiques polycycliques (Benzo(a)pyrène) dans l'air ambiant.

Les préconisations de la dernière version de la quatrième directive fille, concernant les HAP dans l'air ambiant sont présentées dans le rapport 2003 concernant le programme pilote, afin d'exploiter et d'interpréter les résultats obtenus vis à vis de ces recommandations.

A la demande du MEDD (lettre de Philippe Vesseron du 22 juillet 2003), l'INERIS a adressé ses principaux commentaires concernant la partie HAP de la Directive :

Note envoyée au MEDD le 11 septembre 2003 concernant les réactions de l'INERIS à la dernière version de la quatrième directive fille (INERIS-DRC-03-45562-AIRE n°584/Ele).

Objet : réactions de l'INERIS à la dernière version de la quatrième directive fille

Outre les difficultés en terme de transposition du nouveau concept « seuil d'évaluation », le texte actuel semble préconiser une valeur cible pour le B(a)P et des seuils d'évaluation pour les métaux (excepté le Hg, pour lequel aucune valeur chiffrée n'est précisée).

Pour ce qui concerne plus précisément les HAP, vous trouverez ci après les commentaires suivants :

1. Problèmes d'interprétation concernant les valeurs cible et les seuil d'évaluation

Dans le chapitre introductif d'état des lieux (draft explanation memorandum), il existe une très grande confusion dans l'utilisation des termes seuil d'évaluation « assessment threshold » et valeur cible « target value » pour le B(a)P.

Alors que la valeur cible pour le B(a)P (1 ng/m^3) est bien définie dans le paragraphe 11.1 (page 20), la même valeur apparaît en tant que seuil d'évaluation dans la page suivante (page 21, paragraphe 11.2). On dit alors que lorsque les concentrations se trouveront en dessous de ces valeurs, des mesures indicatives pourraient être utilisées.

Dans la partie Directive proprement dite, dans l'article 1, la valeur cible est définie pour le B(a)P. Pour les métaux, des mesures sont précisées sans faire référence aux seuils d'évaluation.

Dans le paragraphe 2 de l'article 4 les seuils d'évaluation sont évoqués en incluant le B(a)P. On rappelle alors que lorsque les valeurs seront en dessous de ce seuil d'évaluation, des mesures indicatives pourront être utilisées, mais cette fois on exclu le B(a)P pour lequel les mesures fixes seraient obligatoires.

Dans le tableau de l'annexe 1, la valeur de 1 ng/m^3 pour le B(a)P est à nouveau présentée en tant que seuil d'évaluation. On explique alors que des mesures devront être réalisées pendant 5 ans afin de décider si l'on se trouve en dessous ou au dessus des seuils d'évaluation,. Cette fois ci on ne précise pas que la mesure du B(a)P est obligatoire ...

A notre avis l'utilisation des termes « seuils d'évaluation » et « valeur cible » pour le B(a)P n'est pas claire et se contredisent tout au long du texte. (A noter que pour les métaux le texte ne prévoit que des seuils d'évaluation).

Dans l'état actuel du texte, il peut rester des ambiguïtés d'interprétation sur l'obligation de la surveillance généralisée du B(a)P et la possibilité de mettre en œuvre des mesures indicatives (sans savoir ce que peut être une « mesure indicative » du B(a)P, excepté pour la périodicité).

L'ensemble du texte serait plus lisible avec des chapitres distincts « HAP », mercure et autre métaux.

2. Mesure du B(a)P dans les dépôts

Nous sommes étonnés de l'intégration de la mesure des dépôts pour les HAP dans cette dernière version, alors qu'il n'en avait pas du tout été question dans les versions précédentes.

Ayant participé au groupe de travail qui a rédigé le « position paper », je peux confirmer que les dépôts n'ont pas été abordés parce que jugés hors sujet vis à vis du groupe de travail, et qu'ils ont été seulement cités à titre indicatif dans l'annexe 4 du « position paper ».

C'est ainsi que dans le « position paper », l'inhalation a été retenue, comme étant la principale voie d'exposition pour les HAP, de ce fait seulement la surveillance dans l'air ambiant a été retenue.

Les questions suivantes doivent maintenant se poser :

Est-ce que la mesure des dépôts sans valeur de référence est pertinente ?

Est-ce qu'on sait et comment faire ?

Quelle exploitation des données pourrons nous faire de ces mesures, est-ce qu'on ne fait pas de la mesure pour faire de la mesure ?

Est-ce que les sites proposés (sites pour la surveillance des sols) seront représentatifs d'une éventuelle pollution par les HAP ?

3. Mesure du B(a)P et des autres HAP dans l'air ambiant

Nous avons bien pris note, que pour le B(a)P, la valeur cible est de 1 ng/m^3 en moyenne annuelle, à mesurer dans les PM10, avec des prélèvements de 24 heures, en essayant de couvrir tous les jours de la semaine et ceci avec un taux de couverture de 33 % pour les mesures fixes et de 14 % pour les mesures indicatives (autres HAP) et le dépôt.

Une couverture de 14 % représente un prélèvement tous les trois jours pour les mesures fixes. Les prélèvements de la phase pilote étaient effectués tous les 6 jours (couverture de 33 %). A notre avis tous les trois jours est excessif et trop coûteux. Il en va de même pour les mesures indicatives, tous les 6 jours nous paraît excessif pour des mesures « indicatives ».

En ce qui concerne le nombre de sites minimum requis par nombre d'habitants qui sont présentés dans l'annexe 2 paragraphe IV, sont également excessifs, outre les difficultés de définition du quadrillage communes à tous les polluants.

Enfin, à notre avis cette directive est très souple en ce qui concerne les émissions industriels et laisse aux états membres la responsabilité d'établir des règles pour réduire les émissions liées au trafic et au chauffage domestique.

En conclusion, la version précédente dans laquelle des valeurs cibles étaient retenues pour tous les composés nous paraissait plus claire.

5.2 LE GROUPE CEN TC 264 WG 21

Le groupe d'experts est dirigé par l'Allemagne, laquelle assure également son secrétariat. Les pays représentés sont : Allemagne, Autriche, Espagne, France, Italie, Norvège, Royaume Unie, Pays Bas et Suède. La représentation française est assurée par l'INERIS.

L'objectif de ce groupe de travail est de proposer une méthode de prélèvement et d'analyse pour le B(a)P afin de répondre aux exigences de la future directive fille relative à As, Cd, Hg, Ni et aux HAP.

Trois réunions ont eu lieu en 2003, la première au JRC à Ispra le 13 janvier, la deuxième au NPL à Teddington les 10 et 11 avril, et la dernière au VDI à Berlin. Les comptes rendus de ces réunions sont présentés en annexe 4.

La réunion d'Ispra en janvier ne s'est pas avérée très productive, puisque beaucoup des membres du groupe ne s'étaient pas déplacés pour plusieurs raisons, des tempêtes de neige dans leurs pays d'origine et en Italie, ou une mauvaise impression de la dernière réunion.

Les résolutions prises au cours de cette réunion ont donc été revues et corrigées dans la deuxième.

Entre les deux réunions, l'animateur du WG 21 a changé suite au changement de fonction du Prof Niessner dans son institut à Munich. Le Dr Dieter Gladtko a été désigné comme nouvel animateur du groupe de travail.

5.2.1 Dégradation du B(a)P par l'ozone

Suite à la demande des Allemands qui avaient présenté des publications mettant en évidence une dégradation du B(a)P sur le filtre pendant la durée de prélèvement, une longue discussion s'est engagée à ce sujet :

- des questions ont été posées sur la pertinence de s'intéresser seulement à l'ozone et non à d'autres composés tel que les oxydes d'azote,
- il a été également rappelé que la valeur cible préconisée par la directive fille, de 1 ng/m³ a été choisie sur la base des données qui ne prenaient pas en compte la possible dégradation du B(a)P
- il a aussi été dit que cette réaction du B(a)P peut avoir lieu dans l'atmosphère et que de ce fait la dégradation sur le filtre pourrait être négligeable
- que les problèmes de dégradation du B(a)P ont généralement lieu pendant l'été, où les plus fortes concentrations en O₃ sont observées, et que compte tenu des faibles concentrations du B(a)P durant cette période, les pertes seraient négligeables et ne joueraient pas un rôle très important dans le calcul de la moyenne annuelle
- que ce type d'étude relève de la recherche et non d'un groupe de normalisation...

Après débats et compte tenu des publications scientifiques, qui parfois peuvent être contradictoires, et de l'ampleur de la tâche, le groupe à l'unanimité a décidé de ne pas prendre en compte dans ce cadre concret de normalisation, les éventuelles pertes de B(a)P par réaction avec O₃ et NO₂.

Dans la réunion de Teddington il a été décidé d'adresser une note à la Commission européenne, avec cette décision.

Dans la réunion de Berlin cette décision a été remise en cause, suite à une demande contraire de la commission européenne.

Un nouveau protocole pour les campagnes de prélèvement sur le terrain a été de ce fait élaboré. Celui-ci inclut l'utilisation de l'appareil spéciation de R&P, puisque c'est le seul fournisseur qui commercialise un appareil qui propose un scrubber à ozone. Les calculs budgétaires ont été revus (nombre d'analyses à effectuer revus à la hausse) et envoyés à la commission qui devra décider si elle accepte ce nouveau projet.

Si ce nouveau projet est accepté les campagnes terrain ne commenceront pas avant juillet 2004. Ce qui décalerait le planning de travail du groupe CEN WG 21.

6. LISTE DES ABREVIATIONS

AASQA : Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l’Air

AC : Acénaphthène

ACE : Acénaphthylène

ADEME : Agence de l’Environnement et de la Maîtrise de l’Energie

AFNOR : Association Française de Normalisation

AIR COM : Association pour l’Etude, la surveillance et la prévention de la pollution atmosphérique sur le département du Calvados

AIR NORMAND : Observatoire de la qualité de l’air en Normandie

AIRFOBEP : Association pour la surveillance de la qualité de l’air de la région de l’Etang de Berre et de l’ouest des Bouches du Rhône

AIRMARAIX : Association pour la gestion du réseau automatique de surveillance de la pollution atmosphérique dans l’est des Bouches du Rhône

AIRPARIF : Surveillance de la qualité de l’air en Ile de France

ANT : Anthracène

AREMA LM : Association pour la mise en œuvre du réseau d’étude , de mesure et d’alerte pour la prévention de la pollution atmosphérique dans la zone de Lille métropole

ASCOPARG : Association pour le contrôle et la prévention de l’air dans la région Grenobloise

ASE : Extraction accélérée par solvant

ATMO Poitou-Charentes : Association Régionale pour la mesure de la qualité de l’air en Poitou-Charentes

B(a)A : Benzo(a)anthracène

B(a)P : Benzo(a)pyrène

B(b)F : Benzo(b)fluoranthène

B(e)P : Benzo(e)pyrène

B(ghi)P : Benzo(g,h,i)perylène

B(k)F : Benzo(k)fluoranthène

CG/GC : Chromatographie en phase gazeuse

CHR : Chrysène

COPARLY : Comité pour le contrôle de la pollution atmosphérique dans le Rhone

COR : Coronène

DB(ah)A : Dibenzo (a,h)anthracène

EPA : Environmental Protection Agency

FID : Détecteur à Ionisation de Flamme

FL : Fluoranthène

FLN : Fluorène

FLUO : détecteur fluorescence

HAP : Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques

HPLC : Chromatographie en phase liquide à haute performance

HVS : High Volume Sampler (préleveur grand volume)

IARC : Centre International de Recherche sur le Cancer

INERIS : Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques

IP : Indeno(1,2,3-cd)pyrène

ISO : the International Organization for Standardization

JRC : Joint Research Centre. European Commission

LIG'AIR : Surveillance de la qualité de l'air en région centre

LVS : Low Volume Sampler (préleveur bas volume)

MEDD : Ministère de l'Ecologie et du Développement Durable

MS/SM : spectrométrie de masse

NAP : Naphtalène

NIST : National Institute of Standards and technology

PE : Perylène

PHE : Phénanthrène

PM10 : matière particulaire de taille inférieure à 10 µm

PUF : Mousses en Polyuréthane

PY : Pyrène

UV : Ultra Violet

7. LISTE DES ANNEXES

Repère	Désignation précise	NB pages
1	Résultats obtenus pour tous les HAP (filtre + mousses) dans la campagne ATMO Champagne Ardenne	2
2	Compte rendu de la journée utilisateurs ASE du 21 octobre 2003 à l'INERIS INERIS-DRC-03-45568-AIRE n°745/Ele	5
3	Documents envoyés par l'INERIS pour la campagne d'inter comparaison HAP de novembre 2003	15
4	Comptes rendus des réunions du groupe CEN TC/WG 21 Ambient air – Measurement method for B(a)P	7