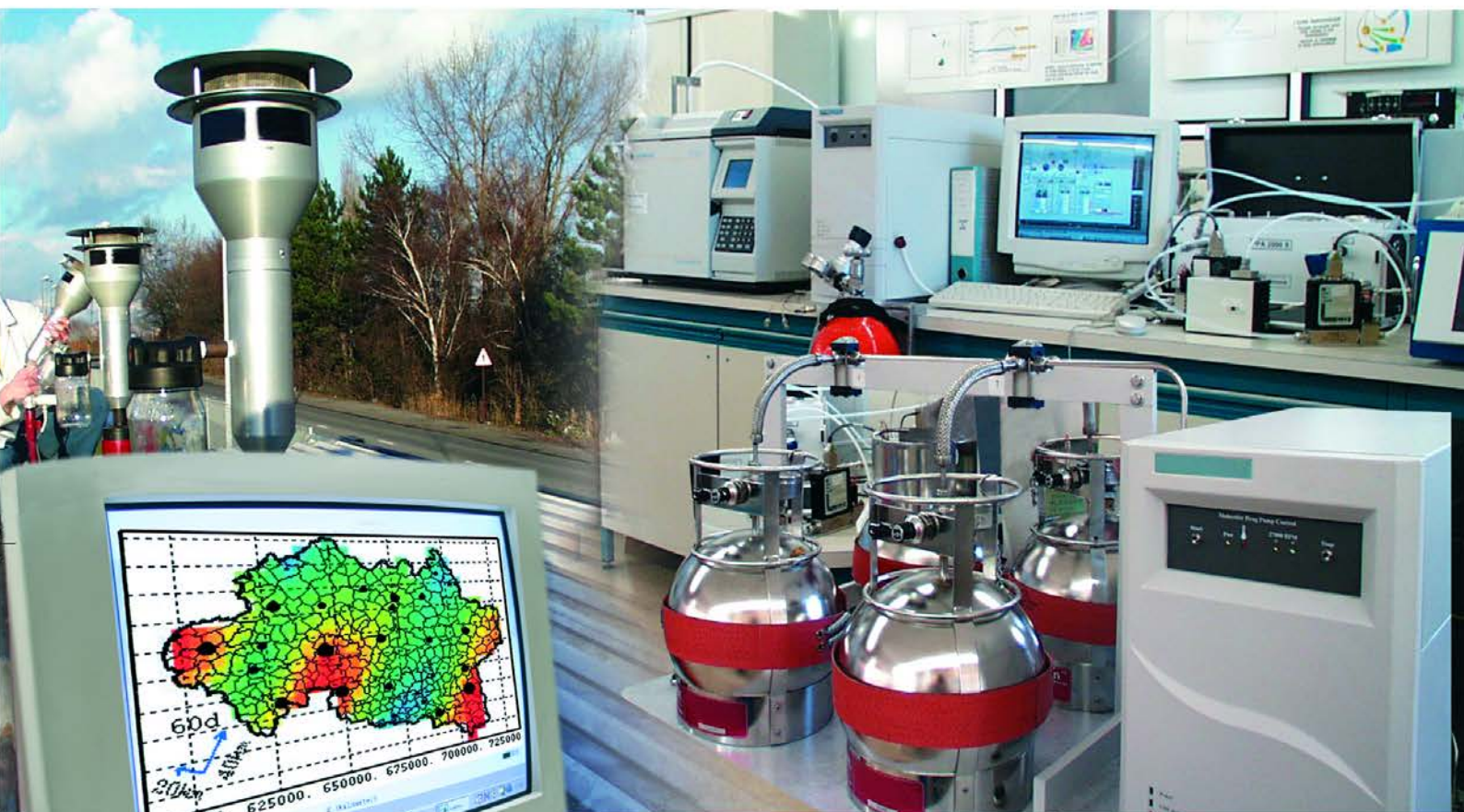




## Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air



### Surveillance des HAP

Concentrations atmosphériques des HAP au niveau national (France) : cartographie et tendances sur le long terme.

Janvier 2012

Programme 2011

Alexandre Albinet - Maxime Beauchamp - Guillaume Harel --Laure Malherbe





## **PREAMBULE**

### **Le Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air**

**Le Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air est constitué de laboratoires de l'École des Mines de Douai, de l'INERIS et du LNE. Il mène depuis 1991 des études et des recherches finalisées à la demande du Ministère chargé de l'environnement, et en concertation avec les Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA). Ces travaux en matière de pollution atmosphérique ont été financés par la Direction Générale de l'Énergie et du Climat (bureau de la qualité de l'air) du Ministère de l'Écologie, du Développement durable, des Transports et du Logement. Ils sont réalisés avec le souci constant d'améliorer le dispositif de surveillance de la qualité de l'air en France en apportant un appui scientifique et technique au MEDDE et aux AASQA.**

**L'objectif principal du LCSQA est de participer à l'amélioration de la qualité des mesures effectuées dans l'air ambiant, depuis le prélèvement des échantillons jusqu'au traitement des données issues des mesures. Cette action est menée dans le cadre des réglementations nationales et européennes mais aussi dans un cadre plus prospectif destiné à fournir aux AASQA de nouveaux outils permettant d'anticiper les évolutions futures.**



## Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air

### Surveillance des HAP

2011

Alexandre Albinet - Maxime Beauchamp - Guillaume Harel --Laure Malherbe

Ce document comporte 50 pages (hors couverture et annexes)

	<b>Rédaction</b>	<b>Vérification</b>	<b>Approbation</b>
<b>NOM</b>	A. Albinet M. Beauchamp G. Harel L. Malherbe	E. Leoz  B. Bessagnet	N. Alsac
<b>Qualité</b>	Ingénieurs Direction des Risques Chroniques	Responsables des unités CIME et MOCA Direction des Risques Chroniques	Responsable du pôle CARA Direction des Risques Chroniques
<b>Visa</b>			

## **TABLE DES MATIÈRES**

<b>RESULTATS CLES ET QUESTIONS EN SUSPENS.....</b>	<b>6</b>
<b>RESUME.....</b>	<b>7</b>
<b>REMERCIEMENTS.....</b>	<b>9</b>
<b>1. ABREVIATIONS.....</b>	<b>10</b>
<b>2. CONTEXTE ET OBJECTIFS.....</b>	<b>11</b>
2.1 Données exploitées.....	12
2.2 Données collectées.....	13
2.2.1 Jeux de données disponibles .....	13
2.2.2 Fréquence des mesures et résolution temporelle des données brutes transmises .....	15
2.2.3 Traitement et agrégation des données .....	16
2.2.4 Variables numériques considérées.....	16
2.3 Assurance qualité.....	19
2.3.1 Attribution de codes qualité aux données brutes fournies .....	19
2.3.2 Contrôle qualité du traitement préliminaire des données.....	22
<b>3. CARTOGRAPHIE NATIONALE DE 2008 A 2010.....</b>	<b>22</b>
3.1 B[a]P .....	22
3.1.1 Ratio B[a]P / $\Sigma_7$ HAP .....	31
<b>4. TENDANCES TEMPORELLES SUR LE LONG TERME.....</b>	<b>38</b>
4.1 Airparif.....	39
4.1.1 B[a]P .....	39
4.1.2 B[a]P / $\Sigma_7$ HAP .....	42
4.2 ATMO Rhône-Alpes .....	45
4.2.1 B[a]P.....	45
4.2.2 B[a]P / $\Sigma_7$ HAP .....	47
4.3 ATMO Nord-Pas-de-Calais .....	50
4.3.1 B[a]P .....	50
4.4 Comparaison des résultats avec la littérature .....	52
<b>5. CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES.....</b>	<b>53</b>
<b>6. REFERENCES .....</b>	<b>55</b>
<b>7. LISTE DES ANNEXES .....</b>	<b>57</b>

## **RESULTATS CLES ET QUESTIONS EN SUSPENS**

- Globalement, les concentrations moyennes annuelles de B[a]P observées au niveau national sont inférieures à la valeur cible de  $1 \text{ ng.m}^{-3}$ .
- Régions problématiques : Nord-Pas-de-Calais, Lorraine et Rhône-Alpes (sites urbains et industriels)
- Concentrations importantes sur les sites périurbains (impact du chauffage au bois ?). Sites à inclure dans une stratégie de surveillance nationale car très peu instrumentés et aucune conclusion certaine ne peut être faite.
- Variabilité saisonnière significative en termes de concentrations et de contribution du B[a]P au mélange des HAP (hiver > été).
- Décroissance significative des concentrations sur le long terme en certains sites ( $- 1 \text{ ng.m}^{-3}$  en 10 ans, cohérent avec la bibliographie) mais pas de tendance significative sur la majorité des sites étudiés.
- Disparité géographique entre l'Île de France et Rhône-Alpes de l'évolution sur le long terme de la contribution du B[a]P au mélange des 7 HAP de la directive. Différences de sources, de climatologie ?
- Le choix du B[a]P en tant que HAP représentatif unique d'une contamination chronique est probablement discutable. La surveillance des 7 HAP de la directive est essentielle et pourrait par exemple être étendue aux 16 HAP de l'US-EPA (Révision de la Directive ?).

## **RESUME**

Cette étude dresse un premier bilan national des concentrations de HAP mesurées par les Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA) en application de la IV<sup>ème</sup> directive fille (2004/107/CE). La collecte et le traitement statistique d'un ensemble très important de données relatif aux concentrations de ces polluants ont été réalisés à l'échelle nationale. Ils ont permis d'établir des cartographies nationales des niveaux de concentrations en B[a]P et de la contribution du B[a]P au mélange des 7 HAP de la directive 2004/107/CE (ratio B[a]P /  $\Sigma_7$  HAP). Une analyse des tendances d'évolution sur le long terme a été également réalisée pour les sites de mesures disposant de séries temporelles suffisamment longues (> 5 ans).

De façon générale, les concentrations moyennes annuelles de B[a]P observées au niveau national sont inférieures à la valeur cible de 1 ng.m<sup>-3</sup>. Seuls les sites industriels et certains sites (urbains en majorité) situés dans des zones spécifiques (régions Nord-Pas-de-Calais, Lorraine et Rhône-Alpes) présentent des concentrations moyennes annuelles supérieures à cette valeur cible. Toutefois, la surveillance sur des sites de type périurbain se révèle également importante compte tenu des niveaux de concentrations observés, en lien peut être avec une utilisation du chauffage au bois plus importante dans ces zones (hypothèse à vérifier car très peu de sites instrumentés). La contribution du B[a]P aux 7 HAP semble stable en moyenne annuelle mais est grandement variable entre la saison chaude et la saison froide en liaison, comme pour les niveaux de concentrations en B[a]P, avec l'activité photochimique et le nombre de sources potentielles de HAP (chauffage en hiver).

L'analyse des tendances sur le long terme met en évidence la décroissance des concentrations en B[a]P (- 1 ng.m<sup>-3</sup> en 10 ans) sur certains sites comme il a été également observé dans d'autres pays européens. Toutefois, cette tendance n'est pas générale et la majorité des sites étudiés ne présentent pas de tendance significative à la hausse ou à la baisse des concentrations. De plus, cette analyse a permis de montrer que le choix du B[a]P en tant que HAP représentatif unique d'une contamination chronique était probablement discutable. Des différences de tendance sont évidentes entre l'Île de France, où la contribution du B[a]P au mélange des HAP est constante ou croissante sur le long terme, et la région Rhône-Alpes, où elle est significativement décroissante (plus de -50% en 10 ans). Les résultats obtenus dans cette étude devront être pris en considération lors de la révision de la directive et notamment dans les discussions relatives au choix du B[a]P comme espèce représentative de la contamination chronique en HAP. L'ensemble des résultats obtenus ici conforte le fait que l'analyse des 7 HAP de la directive est essentielle en termes de surveillance et d'évaluation de la qualité de l'air. Elle pourrait même s'étendre à l'analyse des 16 HAP réglementés par l'US-EPA afin de permettre, dans un futur proche, une évaluation des sources des HAP (notamment sur les sites problématiques vis à vis de la valeur cible) en appliquant un modèle récepteur statistique du type positive mass factorisation (PMF) sur les

séries de données suffisamment longues (quelques années). La validité et la faisabilité de ce type d'approche reste toutefois à évaluer.

## **REMERCIEMENTS**

Le LCSQA tient à remercier l'ensemble des AASQA pour leur participation, notamment pour le transfert de leurs données de mesures de HAP qui a permis de constituer la base de données essentielle à cette étude.



## 1. ABREVIATIONS

B[a]P : benzo[a]pyrène

B[a]A : benzo[a]anthracène

B[b]F : benzo[b]fluoranthène

B[j]F : benzo[j]fluoranthène,

B[k]F : benzo[k]fluoranthène

In[1,2,3-cd]P : indéno[1,2,3-cd]pyrène

D[a,h]A : dibenz[a, h]anthracène

## 2. CONTEXTE ET OBJECTIFS

Les HAP (hydrocarbures aromatiques polycycliques) sont des composés émis par toutes les sources de combustions et sont particulièrement étudiés et surveillés dans l'air ambiant en raison de leur caractère cancérigène et/ou mutagène avéré (IARC, 2010). Au niveau européen, la surveillance des HAP et des métaux lourds dans l'air ambiant a été rendue obligatoire par la mise en place de la IV<sup>ème</sup> directive fille (2004/107/CE) (European Official Journal, 2005) promulguée le 15 décembre 2004. Les Etats membres avaient alors jusqu'au 15 février 2007, au plus tard, pour mettre en vigueur les dispositions législatives, réglementaires et administratives relatives à cette surveillance.

En France, au début de l'année 2011 (mise en place de cette étude), trois années complètes de données de surveillance des HAP étaient en théorie disponibles pour chacune des AASQA (associations agréées de surveillance de la qualité de l'air).

Dans l'objectif de caractériser les variations spatiales et temporelles des concentrations en HAP à l'échelle nationale (France métropolitaine et DOM-TOM), les AASQA ont été sollicitées en février 2011 par le LCSQA (Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air) afin de transmettre l'ensemble de leurs données de surveillance des HAP<sup>1</sup>. La demande concernait non seulement les concentrations journalières en HAP (particulaires et gazeuses) (en priorité le B[a]P et les 6 autres HAP de la directive) mais également d'autres paramètres susceptibles de présenter des corrélations pertinentes avec ces composés: particules (PM<sub>10</sub> et PM<sub>2,5</sub>), NO<sub>x</sub>, benzène et température ambiante. Au-delà de cette première caractérisation des variations spatio-temporelles, il a également été prévu d'étudier, à plus long terme, l'influence de la topographie du site, éventuellement de la démographie (principalement la densité de population), et des émissions (inventaire national spatialisé) sur les concentrations en HAP.

En 2011, les travaux du LCSQA ont été principalement concentrés sur la collecte et le traitement statistique des données mises à disposition par les AASQA. Dans le présent rapport, seule la caractérisation des variations spatiales et temporelles des niveaux de concentrations en B[a]P et de la contribution du B[a]P au mélange des 7 HAP de la directive (ratio B[a]P /  $\Sigma_7$  HAP) sera donc présentée. Enfin, pour les jeux de données les plus riches (nombre d'années de surveillance disponibles supérieur à 5), une étude de tendance a été réalisée afin d'évaluer les évolutions sur le long terme des concentrations en HAP (B[a]P) et de leurs profils (ratio B[a]P /  $\Sigma_7$  HAP).

---

<sup>1</sup> Les données n'étant pas disponibles sur la BDQA, cette procédure a été adoptée.

## 2.1 DONNEES EXPLOITEES

La collecte de l'ensemble des données a été réalisée en contactant directement chaque AASQA. Afin de faciliter le traitement des données et d'uniformiser le format et le contenu des fichiers à transmettre, un fichier type de report de données (fichier Excel, Annexe 1) a été envoyé par email à l'ensemble des AASQA au début du mois de février 2011. Le fichier de report des données était composé pour chaque site de surveillance de deux volets principaux :

- Le premier volet était destiné au report des **concentrations atmosphériques particulières journalières en HAP**. Les HAP concernés étaient, en priorité, le B[a]P et les 6 autres HAP de directive (B[a]A, B[b]F, B[k]F, B[j]F, In[1,2,3-cd]P et D[a,h]A). Les données de concentrations pour l'ensemble des autres HAP mesurés en parallèle (phase gazeuse et phase particulaire) étaient également souhaitées. Le report des données a été demandé pour l'ensemble des années de surveillance des HAP disponibles.
- Le second volet était destiné au report des autres paramètres mesurés sur le même site ou sur un site à proximité de typologie équivalente. Ces paramètres comprenaient les concentrations atmosphériques en PM<sub>10</sub>, PM<sub>2,5</sub>, NO<sub>x</sub>, benzène et la température ambiante. Les données étaient à fournir sur le même pas de temps que pour les HAP (moyennes journalières).

Chacun des volets était également surmonté d'un « chapeau » informatif comprenant le nom de l'AASQA, le nom du site, le code BDQA, les coordonnées géographiques, la typologie du site. Un texte explicatif détaillant la marche à suivre pour le report des données accompagnait le fichier à remplir (Annexe 1).

Le retour des fichiers complétés par chacune des AASQA s'est échelonné de février à mai 2011. Les données de 26 AASQA<sup>2</sup> ont pu être finalement récupérées, permettant l'analyse de 1 à 12 ans de données suivant les sites considérés. Le nombre de sites, variable selon les années, s'élève au maximum à 84 (année 2010) et comprend cinq typologies : fond rural, fond périurbain, fond urbain, proximité industrielle et trafic (Tableau 1).

---

<sup>2</sup> Selon le découpage du territoire en vigueur début 2011. Les données recueillies couvrent l'ensemble de la France métropolitaine et la Martinique. Au début de l'année 2011, les AASQA des autres DOM ne disposaient pas encore de données exploitables.

## **2.2 DONNEES COLLECTEES**

### **2.2.1 JEUX DE DONNEES DISPONIBLES**

Dans cette partie on désigne par « jeu de données » l'ensemble des données de HAP transmises par une AASQA. Le détail de tous les jeux obtenus est présenté dans le Tableau 1.

Ceux-ci ne contiennent que les données recueillies pour les besoins de la surveillance réglementaire. Ils n'incluent pas les données issues de campagnes ponctuelles. Pour la majorité d'entre eux, les mesures commencent à partir de 2008. Seuls six jeux comprennent des données antérieures à 2008, dont quatre avec des données antérieures à 2003 (Air Normand, AIRPARIF, Atmo Nord-Pas-de-Calais et Atmo Rhône-Alpes). Les résultats relatifs aux concentrations atmosphériques des 7 HAP de la directive ne sont simultanément disponibles que pour 16 jeux. En moyenne, le nombre de sites ayant fait l'objet d'une surveillance des HAP est de 4 par AASQA. En proportion, les sites de typologie urbaine sont les plus représentés (51 % des sites), puis les sites trafic (16 %), les sites industriels (14 %), les sites ruraux (11 %) et les sites périurbains (8 %).

Dans une première approche, seules les cartographies pour les années 2008, 2009 et 2010 seront présentées car elles sont les plus complètes (de 48 à 84 sites instrumentés) (Figure 1) (voir section 3.1 et Annexes 2 et 3). En complément, une étude plus spécifique est conduite sur les sites pour lesquels des résultats sont disponibles sur une longue période continue (> 5 ans) afin d'évaluer les tendances sur le long terme. Compte tenu de la grande variabilité du nombre et de la nature des données de HAP reportées par chacune des AASQA, il a été décidé, dans un souci d'uniformité, de se limiter aux 7 HAP dont la surveillance est préconisée par la directive.

Tableau 1 : Informations relatives aux données HAP transmises par les AASQA

AASQA	Région	Nombre de sites instrumentés en 2010					Somme	Début du report des données	Analyse des 7 HAP de la directive
		Urbain	Périurbain	Rural	Trafic	Industriel			
AIR Breizh	Bretagne	1	-	1	-	-	2	2010	X
AIR C.O.M	Basse-Normandie	2	-	-	-	-	2	2010	X
Air Languedoc-Roussillon	Languedoc-Roussillon	1	-	-	-	-	1	2008	X
AIRLOR (Air Lorraine)	Lorraine	-	-	1	2	-	3	2009	X
Air Normand	Haute-Normandie	3	-	1	-	-	4	2001	-
Air Pays-de-la-Loire	Pays-de-la-Loire	2	-	-	-	-	2	2008	X
AIR APS (Air Rhône-Alpes)	Rhône-Alpes	5	-	-	-	3	8	2006	X
AIRAQ	Aquitaine	2	-	-	1	-	3	2008	-
AIRFOBEP (Air PACA)	Paca	1	-	-	-	1	2	2008	X
AIRPARIF	Ile-de-France	5	-	-	1	-	6	1998	X
ASPA	Alsace	3	1	-	-	-	4	2008	X
Atmo Auvergne	Auvergne	-	2	1	-	-	3	2008	-
Atmo Champagne Ardennes	Champagne - Ardennes	-	1	2	-	-	3	2008	X
Atmo Franche-Comté	Franche-Comté	1	1	-	-	-	2	2005	X
Atmo Lorraine Nord (Air Lorraine)	Lorraine	2	-	-	-	2	4	2008	X
Atmo Nord-Pas-de-Calais	Nord-Pas-de-Calais	3	-	-	2	1	6	2002	X
Atmo PACA (Air PACA)	Paca	4	-	-	1	-	5	2009	X
Atmo Picardie	Picardie	2	-	-	-	-	2	2008	-
Atmo Poitou-Charentes	Poitou-Charentes	-	-	-	1	-	1	2008	-
Atmo Rhône-Alpes (Air Rhône-Alpes)	Rhône-Alpes	5	-	1	-	1	6	2002	X
ATMOSF'Air Bourgogne	Bourgogne	2	-	1	-	-	3	2009	-
LIGAIR	Centre	3	-	1	-	-	4	2008	X
LIMAIR	Limousin	-	-	-	1	1	2	2008	-
Madininair	Martinique	1	-	-	-	1	2	2010	-
ORAMIP	Midi-Pyrénées	1	-	-	1	-	2	2008	-
Qualitair Corse	Corse	-	-	-	-	2	2	2010	-

Remarque : Atmo Reunion, Gwad'Air, Ora de Guyane et Scal'Air ont déclaré ne pas avoir commencé la surveillance des HAP ou ne pas être en possession d'un nombre de données significatif. Aucune donnée n'a donc été transmise par ces quatre AASQA des DOM-TOM

Entre parenthèses : nom des AASQA depuis 2012.

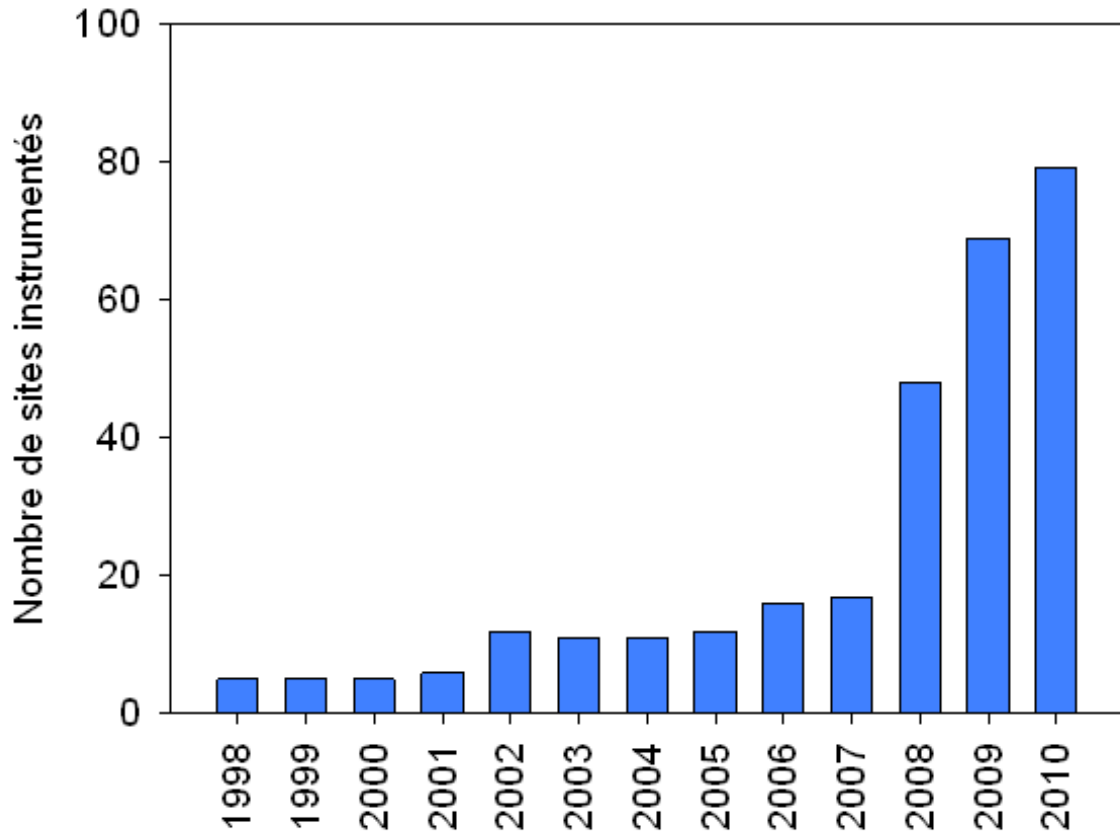


Figure 1 : Evolution temporelle du nombre de sites instrumentés pour la mesure des HAP (B[a]P) en France.

### 2.2.2 FREQUENCE DES MESURES ET RESOLUTION TEMPORELLE DES DONNEES BRUTES TRANSMISES

Le nombre de données disponibles par site de mesure dépend de la couverture temporelle et de la manière dont les filtres sont analysés au laboratoire.

La couverture temporelle varie d'un site à l'autre selon le mode de surveillance. Rappelons que la couverture temporelle minimale fixée par la IV<sup>e</sup> directive fille est de 33 % pour la mesure fixe - qui est obligatoire dans les zones où la concentration de B[a]P est supérieure au seuil d'évaluation minimum,- et de 14% pour la mesure indicative. Afin de satisfaire à ces objectifs de qualité, le LCSQA recommande la réalisation d'un prélèvement de 24 h tous les 3 jours (mesure fixe) et d'un prélèvement de 24 h tous les 6 jours (mesure indicative) (Albinet, 2011). Cette stratégie d'échantillonnage a été adoptée assez largement par les AASQA. Pour une minorité de sites/d'AASQA, les prélèvements ont été groupés sur des périodes distinctes.

La directive (Annexe IV de la directive) impose un échantillonnage de 24 h pour le B[a]P (également vrai pour les autres HAP). La majorité des AASQA (21 sur 26) procèdent ensuite à l'analyse de chaque échantillon collecté (pas de regroupement

de filtres). Pour des raisons financières ou lorsque les niveaux de concentration en HAP sont particulièrement faibles (période estivale ou prélèvement bas-débit), il est néanmoins permis de regrouper sur une période maximale d'un mois l'ensemble des filtres collectés et de réaliser une "analyse groupée" (Albinet, 2011). Le résultat de l'analyse est alors une concentration moyenne par lot de filtres. Cinq AASQA travaillent ainsi, soit pour une partie, soit pour la totalité de leurs sites de surveillance des HAP.

En conséquence, la résolution temporelle des données brutes transmises par les AASQA est au maximum d'un jour sur trois et au minimum d'un mois. Traitement préliminaire des données

### 2.2.3 TRAITEMENT ET AGREGATION DES DONNEES

Le traitement statistique des données « brutes » transmises par les AASQA est explicité sur la Figure 2.

Les traitements informatiques des données brutes ont été réalisés avec le logiciel de statistiques R (<http://www.r-project.org>) permettant et assurant un traitement automatique et uniforme de l'ensemble des données. Afin de ne pas minimiser les concentrations mesurées, les valeurs de concentrations en HAP indiquées comme étant inférieures à la limite de quantification ont été remplacées par les valeurs des limites de quantification correspondantes.

A partir des données brutes recueillies auprès des AASQA, pour chaque site de mesure, cinq fichiers de sorties ont été générés à différentes résolutions temporelles : annuelle, mensuelle et saisonnière. Dans ce dernier cas, la saison froide est définie comme la moyenne des concentrations des mois de janvier, février, novembre et décembre ; la saison chaude pour les mois de mai, juin, juillet et août ; et l'intersaison pour les mois de mars, avril, septembre et octobre. Les moyennes saisonnières obtenues pour chaque variable, chaque site et chaque AASQA permettent d'une part, d'étudier les variations saisonnières de chaque paramètre et d'autre part, de mieux apprécier l'influence de la typologie du site sur les concentrations en HAP selon la période de l'année.

### 2.2.4 VARIABLES NUMERIQUES CONSIDEREES

Dans cette étude et en première approche, les variables numériques considérées pour le traitement statistique des données sont les suivantes :

- Concentration atmosphérique particulaire en **B[a]P (ng.m<sup>-3</sup>)** ;
- Contribution du B[a]P au mélange des 7 HAP de la directive :  $\frac{[B[a]P]}{\Sigma_7 HAP}$   
 $\Sigma_7 HAP$  (ng.m<sup>-3</sup>) : somme des concentrations atmosphériques particulières des 7 HAP de la directive =  $[B[a]P] + [B[a]A] + [B[b]F] + [B[k]F] + [B[j]F] + [In[1,2,3-cd]P] + [D[a,h]A]$ .

Le choix des variables repose sur les dispositions de la directive 2004/107/CE. Le B[a]P est le seul HAP réglementé au niveau européen avec une valeur cible de concentration sur les PM<sub>10</sub> fixée à 1 ng.m<sup>-3</sup> en moyenne annuelle (Annexe I de la directive). De plus, le B[a]P a été choisit comme traceur de l'activité cancérogène totale des HAP impliquant que sa représentativité doit être vérifiée en s'assurant que sa contribution au mélange des 7 HAP de la directive est sensiblement constante au cours du temps (European commission, 2001; European Official Journal, 2005).



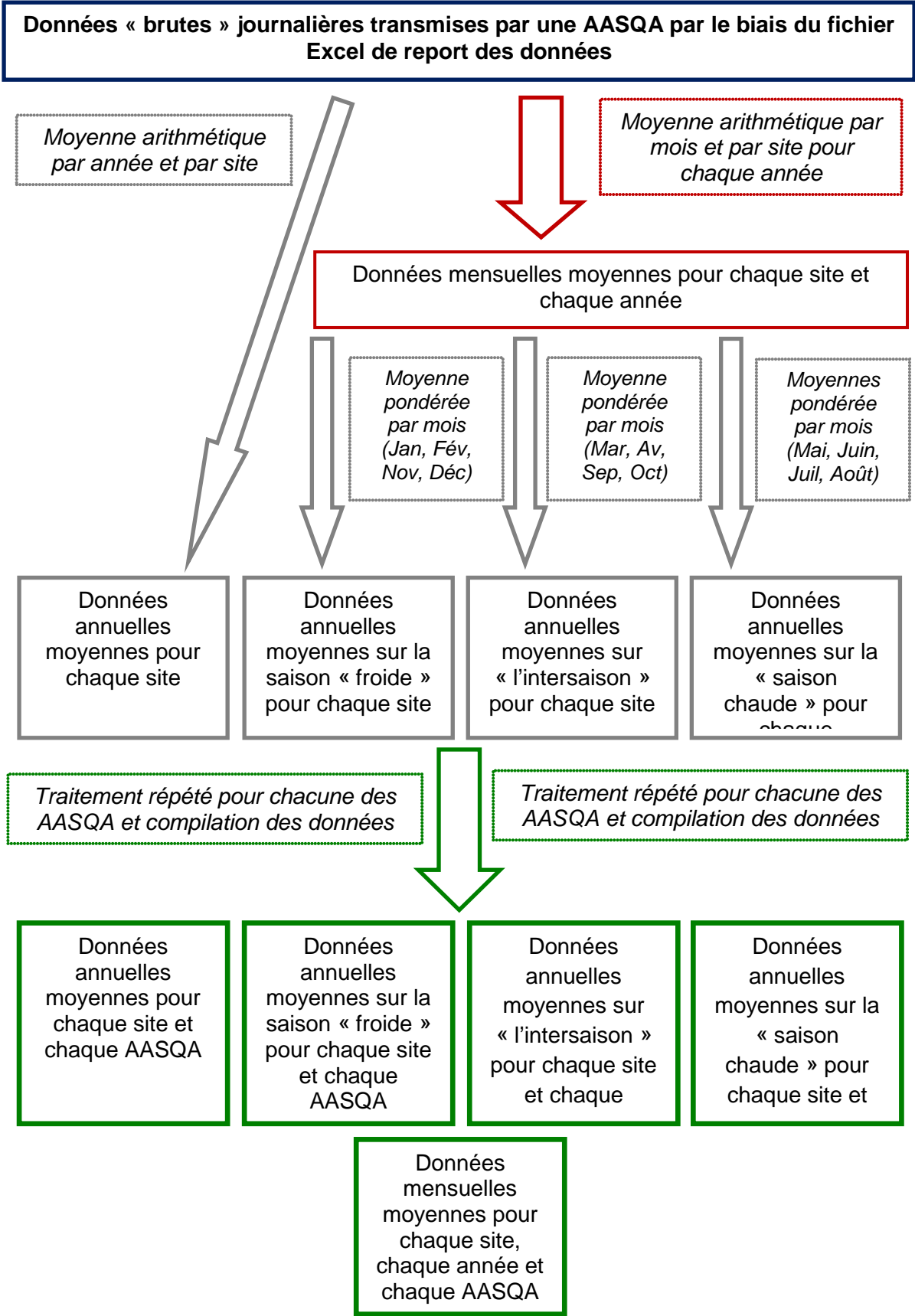


Figure 2 : Schéma de la stratégie adoptée pour le traitement préliminaire des données.

## 2.3 ASSURANCE QUALITE

### 2.3.1 ATTRIBUTION DE CODES QUALITE AUX DONNEES BRUTES FOURNIES

Un code qualité a été créé pour caractériser la représentativité temporelle de la moyenne annuelle vis-à-vis de l'exigence de la directive (annexe IV)<sup>3</sup> en fonction du nombre de données disponibles. Ce code est divisé en quatre sous-catégories :

- a : moyenne annuelle complète avec les 12 mois de l'année représentés ;
- b : moyenne annuelle représentative avec 11 mois de l'année représentés ;
- c : moyenne annuelle considérée comme peu représentative avec entre 8 et 11 mois de l'année représentés ;
- d : moyenne annuelle considérée comme non représentative avec seulement 8 mois de l'année représentés.

Les cartes annuelles amputées des sites présentant les codes qualités c et d sont présentées en Annexe 3. En revanche, tous les sites sont conservés dans le corps de ce rapport afin que la représentation cartographique rende compte du travail de remontée de données réalisé par les AASQA.

Tableau 2 : Répartition du nombre de sites par catégorie de codes qualité selon l'année.

Code qualité	2008	2009	2010
a	31	48	53
b	4	12	13
c	5	3	11
d	7	5	7

A titre d'information, les Figures 3 et 4 présentent pour 2011 les taux de couverture temporelle effectifs (nombre de jours de mesures validées et reportés / nombre de jours dans l'année) pour la mesure des HAP suivant le site de mesure et la déclaration faite par les AASQA lors du reporting des données sur la nature de la mesure : fixe ou indicative. Les données n'étant pas disponibles pour la période 1998 à 2010, seules les cartographies pour 2011 sont présentées. Néanmoins, ces cartes permettent de mettre en évidence les disparités existantes, entre la nature déclarée des sites de mesures et le taux de couverture temporelle (CT) effectif. En suivant strictement les recommandations de la directive, seuls 8 sites sur 22 déclarés comme sites de mesure fixe affichent en 2011 un taux de couverture temporelle supérieur à 33 % (10 sites avec un  $CT \geq 29\%$ ). A l'inverse, de nombreux sites déclarés comme sites de mesure indicative présentent des taux de couverture temporelle largement supérieurs à 33 % (le minimum requis étant de 14 %). Ces incohérences pourraient s'expliquer par une confusion de la part des AASQA entre le caractère permanent ou non du site et la nature de la mesure, fixe ou indicative. La directive fait référence à de la mesure qui peut être déclarée comme fixe ( $CT \geq$

<sup>3</sup> « Les mesures fixes et indicatives doivent être également réparties sur l'année, de manière à éviter de fausser les résultats »

33%) ou indicative (33 % > CT ≥ 14 %). Il conviendra dans un futur très proche de clarifier les choses auprès des AASQA pour le reporting européen des données HAP.

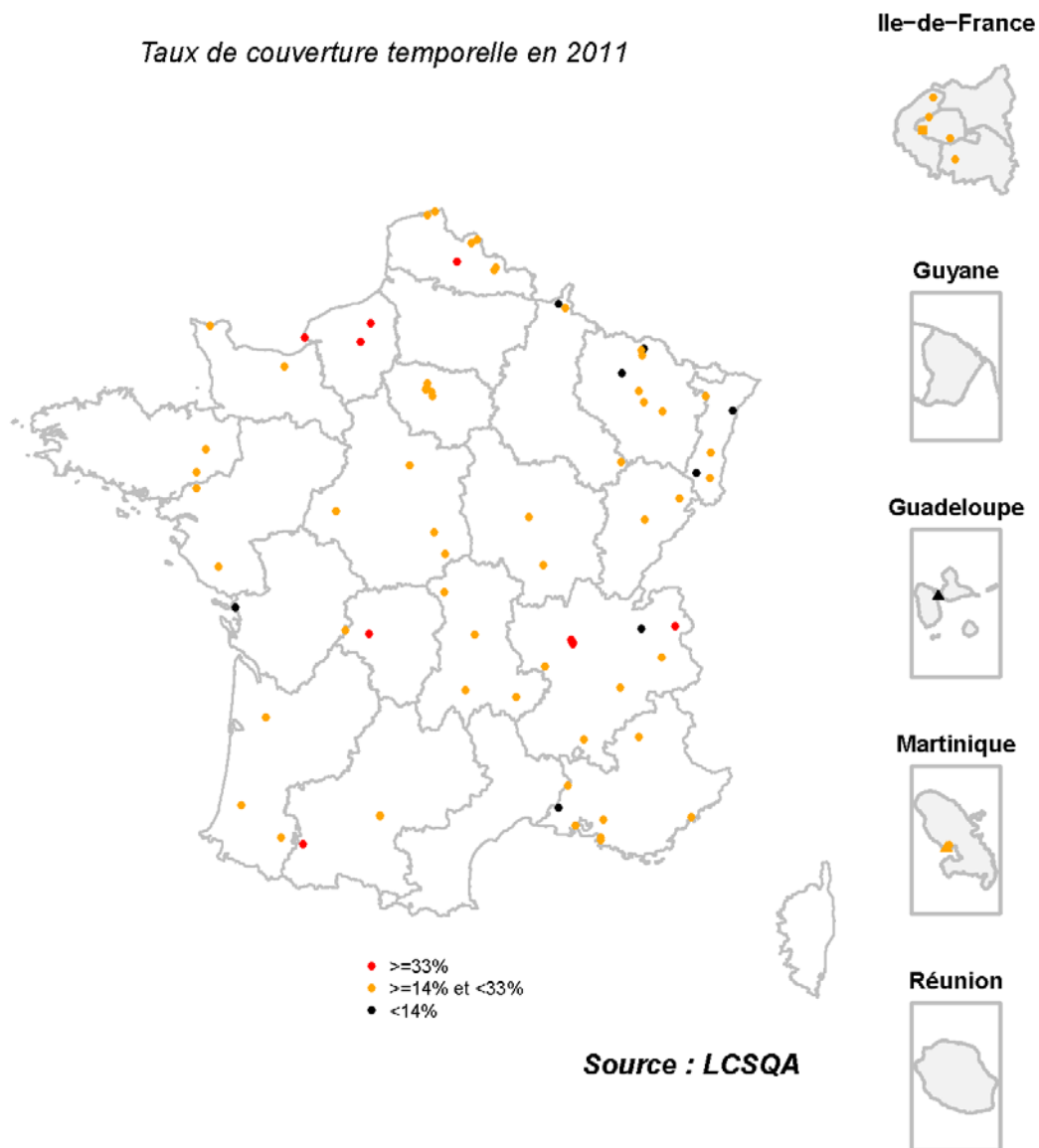


Figure 3 : Cartographie du taux de couverture temporelle effectif de la mesure du B[a]P (2011).

*Sites de mesure fixe et indicative en 2011*

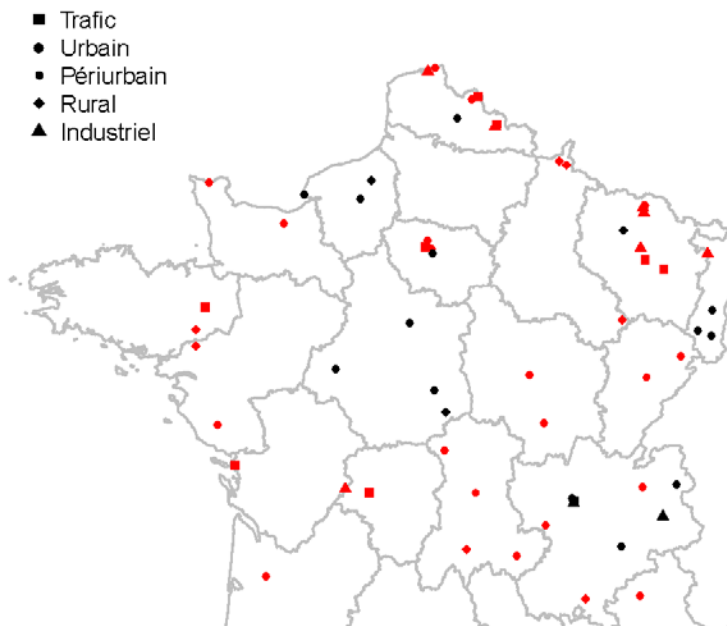


Figure 4 : Cartographie des sites déclarés par les AASQA comme étant destinés à de la mesure fixe ou indicative (2011).

### **2.3.2 CONTROLE QUALITE DU TRAITEMENT PRELIMINAIRE DES DONNEES**

La quantité de données recueillie et donc à traiter était très importante. Afin de vérifier l'exactitude des valeurs moyennes calculées automatiquement à partir des données « brutes » et reportées dans les cinq fichiers de sorties, un contrôle qualité manuel a été mis en œuvre. Cinq personnes ont choisi indépendamment et aléatoirement les données relatives à un site de surveillance des HAP pour deux AASQA différentes. Pour les sites sélectionnés, les moyennes des concentrations atmosphériques en HAP ont été manuellement calculées pour chaque résolution temporelle (année, mois, saison « chaude », saison « froide » et « intersaison ») à partir des données « brutes » et ont été comparées à celles reportées dans les fichiers de sortie automatique. Ainsi, au minimum, les données ont été contrôlées pour 5 AASQA, 5 sites, 10 années, 10 mois et 30 « saisons ».

Les contrôles qualité n'ont pas révélé d'erreur en ce qui concerne les données moyennes contenues dans les cinq fichiers de sortie. Du fait que le traitement préliminaire des données a été fait de manière automatique et qu'il s'agit de calculs relativement simples (moyennes), il est raisonnable de penser que le contrôle qualité d'une sélection restreinte de données suffit à s'assurer de l'exactitude de l'ensemble des données produites.

## **3. CARTOGRAPHIE NATIONALE DE 2008 A 2010**

A partir des données récoltées et ensuite traitées comme indiqué précédemment (voir section 2.3), les cartographies nationales des concentrations en B[a]P et du ratio  $B[a]P / \Sigma_7HAP$  ont été réalisées. Ces cartes ont été établies pour les moyennes annuelles et pour les moyennes saisonnières (saison froide, chaude et intermédiaire). Elles sont accompagnées de statistiques descriptives qui représentent le nombre de moyennes observées par gamme de valeurs (histogrammes) et la distribution de ces valeurs pour chaque type de site (industriel, trafic, urbain, périurbain et rural) (boîtes à moustaches).

Dans un souci de lisibilité seules les cartes de l'année 2010, qui offrent une meilleure couverture spatiale des concentrations, sont présentées dans le corps du rapport. Les cartes des années précédentes sont en ligne sur le site du LCSQA (<http://www.lcsqa.org>).

### **3.1 B[A]P**

La cartographie nationale et les statistiques descriptives associées (fréquence d'observation et boîtes à moustaches) des concentrations moyennes annuelles en B[a]P pour 2010 sont présentées sur les Figures 5 et 6.

La couverture spatiale du territoire est assez homogène. On observe toutefois des zones encore « blanches » non instrumentées correspondant aux régions Champagne-Ardenne et Bourgogne mais également au grand Sud-Ouest.

De façon générale, la majorité des sites ( $n = 76$ , toutes typologies confondues) présente des concentrations moyennes annuelles inférieures à la valeur cible de  $1 \text{ ng.m}^{-3}$ . Celles-ci sont de l'ordre de  $0,2$  à  $0,5 \text{ ng.m}^{-3}$  en valeur médiane selon la typologie de site considérée (Figure 4). Les concentrations observées autour des sites industriels sont plus importantes et surtout sont les plus dispersées (de  $0,1$  à  $1,7 \text{ ng.m}^{-3}$  pour les 1<sup>er</sup> et 3<sup>ème</sup> quartiles). Cinq sites industriels présentent des concentrations moyennes annuelles supérieures à la valeur cible. Pour quatre sites urbains situés en Savoie et Haute-Savoie, les concentrations moyennes annuelles sont supérieures à  $2,5$  voire à  $3 \text{ ng.m}^{-3}$ , s'écartant fortement de la valeur médiane observée ( $= 0,3 \text{ ng.m}^{-3}$ ). Enfin, un site rural d'Auvergne présente des concentrations moyennes annuelles supérieures à la valeur cible (Cantal, entre  $1$  et  $1,5 \text{ ng.m}^{-3}$ ) et s'écarte donc de la valeur médiane de  $0,15 \text{ ng.m}^{-3}$  observée pour les autres sites ruraux.

La situation vis-à-vis des seuils d'évaluation supérieurs et inférieurs peut être représentée de la même façon. Cette représentation met en évidence les zones problématiques pour ce qui est des concentrations en HAP (B[a]P) (Annexe 4). Comme indiqué ci-dessus, ces zones sont localisées de façon récurrente dans la région alpine, dans le Nord et dans le Nord-Est de la France et correspondent à des sites industriels ou urbains.

La Figure 6 permet d'évaluer les tendances d'évolution des concentrations moyennes annuelles en B[a]P à l'échelle nationale de 2008 à 2010 selon la typologie des sites.

Dans l'ensemble, les concentrations moyennes annuelles sont sensiblement équivalentes entre 2008 et 2010 quelle que soit la typologie de site considérée et inférieures en moyenne à la valeur cible de  $1 \text{ ng.m}^{-3}$ . Seules les concentrations observées en 2009 sur les sites périurbains sont plus élevées et même proches de la valeur cible. Ce résultat montre que cette typologie de site ne doit pas être négligée dans la stratégie de surveillance des HAP. L'impact du chauffage au bois dans ces zones pourrait expliquer ces observations. Cela reste une hypothèse à vérifier mais il faut pour cela disposer de données plus nombreuses pour cette typologie de sites. En effet, en 2010, seuls 5 sites périurbains sont instrumentés sur toute la France. Les concentrations moyennes annuelles les plus élevées sont observées de façon systématique autour des sites industriels avec des valeurs médianes supérieures ou très proches de la valeur cible en 2008 et 2009 et une concentration moyenne annuelle exceptionnelle sur le site industriel de Serémange (Florange, Lorraine) en 2009 de l'ordre de  $5,5 \text{ ng.m}^{-3}$ . Egalement, les valeurs exceptionnelles observées sur les sites urbains correspondent à des sites situés en majorité en Savoie et Haute-Savoie et dans une moindre mesure en Poitou-Charentes (2009, Dein).

Les Figures 7 et 8 présentent les concentrations moyennes en B[a]P observées en 2010 pour la saison chaude et la saison froide respectivement.

En saison chaude, les concentrations moyennes observées sont très faibles sur la grande majorité des sites ( $n = 70$ ) et inférieures à  $0,2 \text{ ng.m}^{-3}$  en valeur médiane (Figure 7). Seuls les sites industriels présentent des concentrations moyennes saisonnières plus élevées, de l'ordre de  $0,6 \text{ ng.m}^{-3}$  en valeur médiane. La dispersion des concentrations moyennes est également très importante (de  $0,1$  à  $1,3$  pour les 1<sup>er</sup> et 3<sup>ème</sup> quartiles). Enfin, les sites urbains sur lesquels les concentrations moyennes saisonnières s'écartent fortement de la valeur médiane et présentent des concentrations très importantes (jusqu'à  $2 \text{ ng.m}^{-3}$ ) correspondent aux départements du Pas de Calais et à la Haute-Savoie à l'instar des concentrations moyennes annuelles.

En saison froide, les concentrations moyennes saisonnières en B[a]P sont beaucoup plus importantes et de l'ordre de  $0,5 \text{ ng.m}^{-3}$  en valeur médiane (Figure 8). Si environ 25 sites ont des concentrations moyennes inférieures à  $0,5 \text{ ng.m}^{-3}$ , plus de 40 sites présentent des concentrations moyennes comprises entre  $0,5$  et  $1 \text{ ng.m}^{-3}$ . Contrairement aux résultats observés pour la saison chaude, pendant la saison froide, les niveaux de concentrations moyens sur les sites industriels sont comparables à ceux observés sur les autres typologies de sites. De plus, les concentrations moyennes sont moins dispersées qu'en saison chaude. La formation de couches d'inversion propices à l'accumulation des polluants et la photochimie qui, en saison froide, est de moindre importance et surtout plus homogène géographiquement, peuvent probablement expliquer ces résultats. Les concentrations moyennes exceptionnelles en B[a]P pendant la saison froide observées sur les sites urbains correspondent aux départements du Pas de Calais, de la Savoie et Haute-Savoie dont 3 sites présentent des concentrations moyennes comprises entre  $4,5$  et  $6 \text{ ng.m}^{-3}$ . Le site rural présentant une concentration moyenne saisonnière de l'ordre de  $2 \text{ ng.m}^{-3}$  est situé en dans le Cantal (Neussargues).

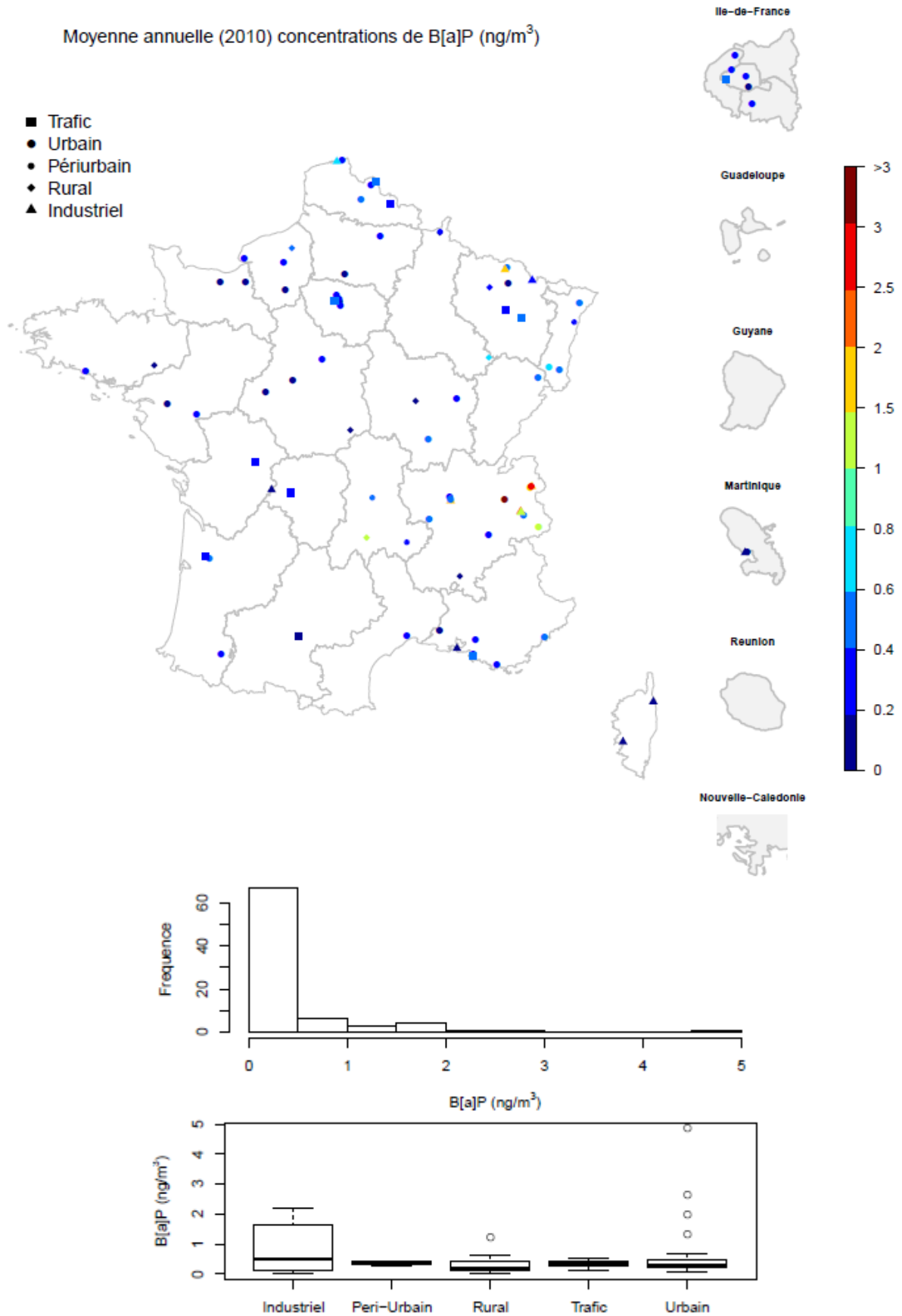


Figure 5 : Cartographie et statistiques descriptives des concentrations atmosphériques moyennes annuelles en B[a]P (2010).



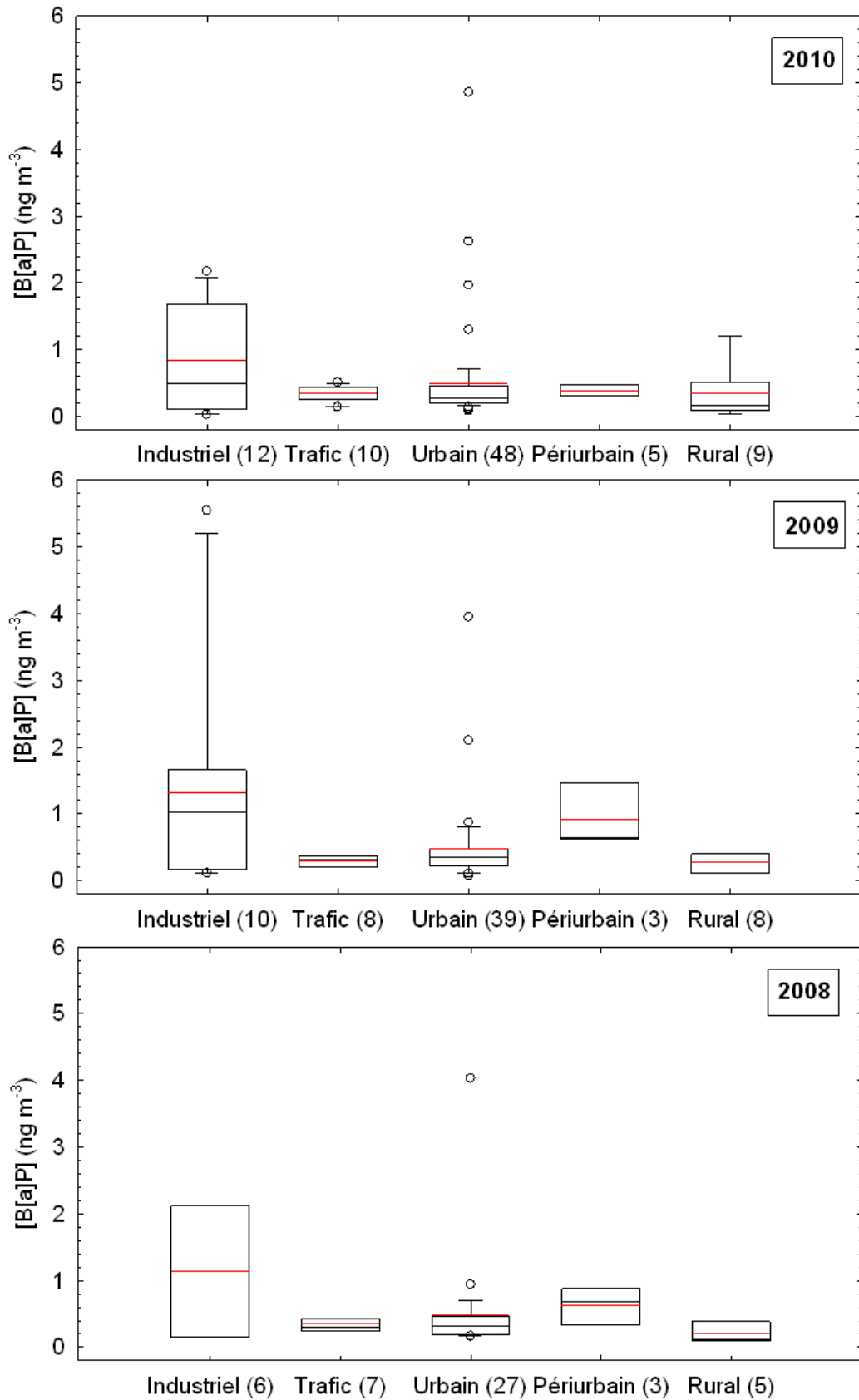


Figure 6 : Boîtes à moustaches des concentrations moyennes annuelles en B[a]P selon la typologie du site de prélèvements pour les années 2008, 2009 et 2010 (nombre de sites). Le trait en rouge représente la valeur moyenne.

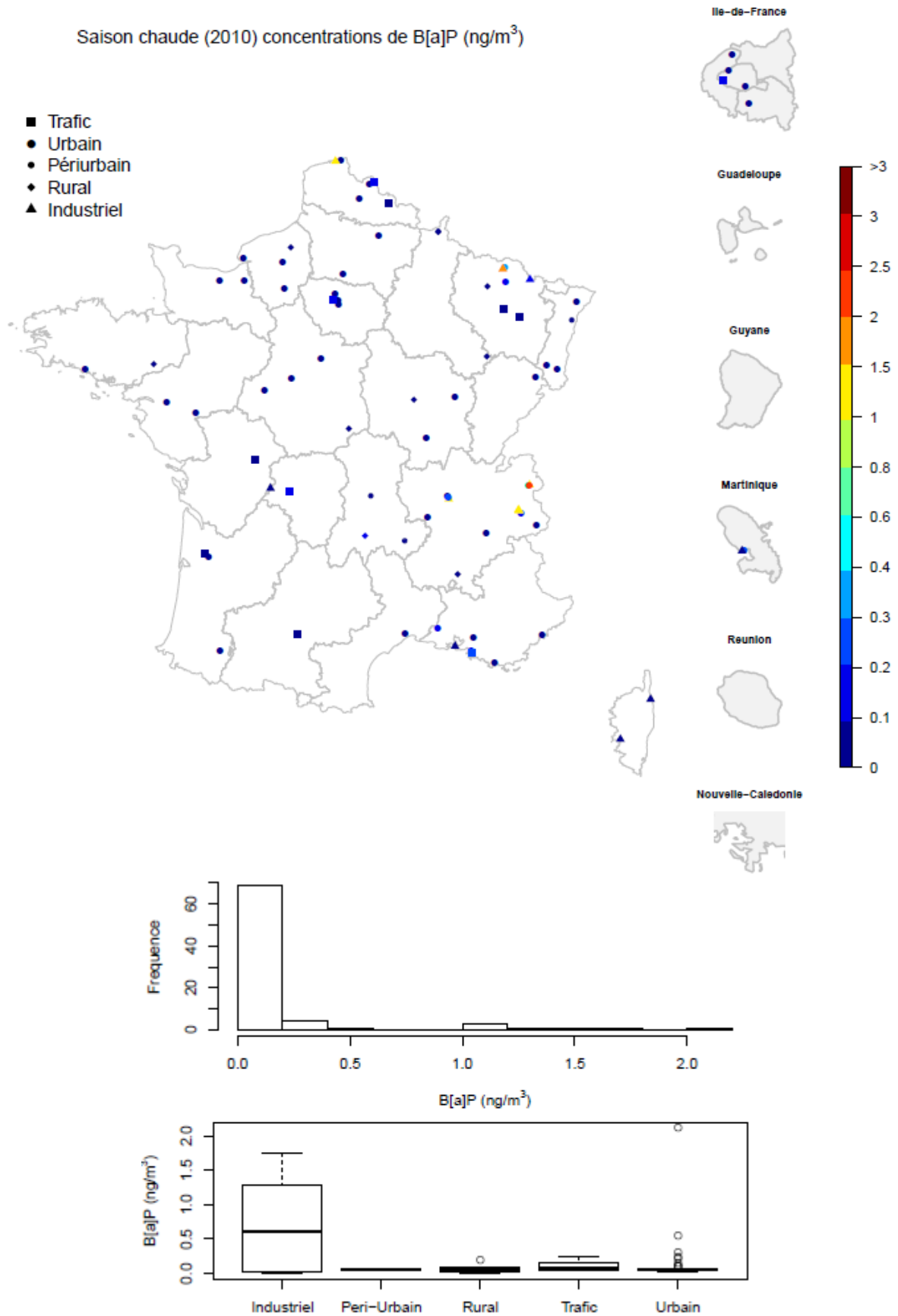


Figure 7 : Cartographie et statistiques descriptives des concentrations atmosphériques moyennes en B[a]P- Saison chaude (2010).

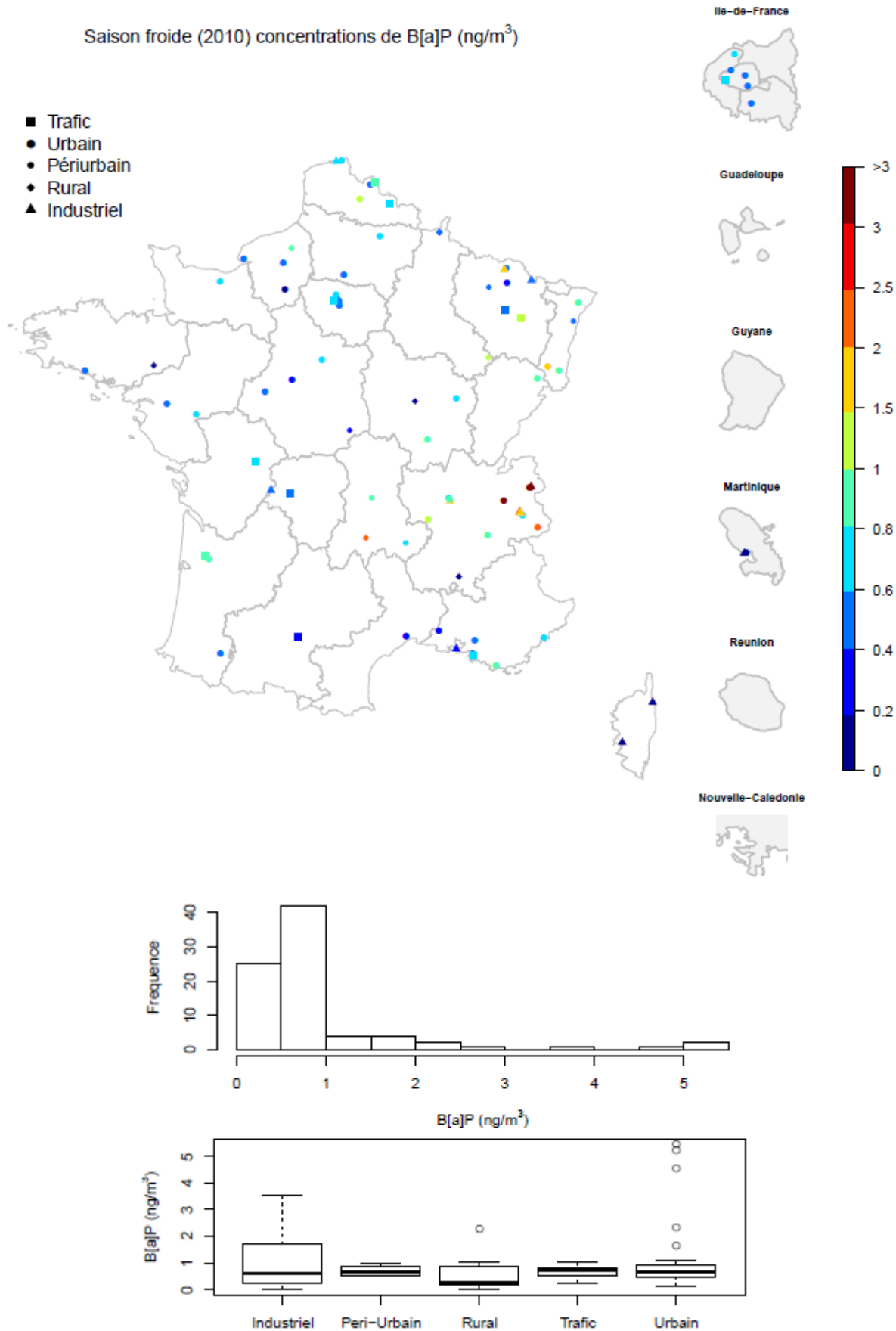


Figure 8 : Cartographie et statistiques descriptives des concentrations atmosphériques moyennes en B[a]P- Saison froide (2010).

Pour mieux appréhender l'impact saisonnier sur les niveaux de concentrations en HAP, il est intéressant d'examiner le rapport des concentrations moyennes entre les saisons et ceci, selon la typologie du site instrumenté et selon l'année (Figure 9).

En saison froide, les concentrations moyennes en B[a]P sont environ 10 à 20 fois plus élevées que celles observées en saison chaude. Le chauffage résidentiel en tant que source additionnelle de HAP, la photochimie et donc la dégradation dans l'atmosphère du B[a]P moins importantes et les conditions météorologiques particulières (inversions thermiques) expliquent ces différences entre les saisons. Cependant, les rapports saisonniers sont extrêmement différents entre les différentes typologies de sites et très variables au sein d'une même typologie.

De manière générale, les rapports saisonniers sont les plus faibles sur les sites proches des sources directes d'émission des HAP (industriels et trafics) avec des valeurs comprises majoritairement entre 2 et 16. L'émission régulière voire constante du B[a]P par les sources à proximité, en combinaison avec un faible temps de séjour dans l'atmosphère induit une faible dégradation par photolyse ou par réaction photochimique et permet d'expliquer les différences significatives observées avec les autres typologies de sites. Les valeurs exceptionnelles des ratios saisonniers observées sur les sites industriels correspondent aux sites d'Ipaper (Saillat) en Haute-Vienne (2010) et de Le Bochet dans l'Ain (2009). Les sites urbains présentent des ratios saisonniers de concentrations en B[a]P entre 8 et 22. Les valeurs exceptionnelles observées pour la typologie urbaine correspondent à des sites situés dans le Pas de Calais et dans l'Oise (2008), en Savoie et Haute Savoie (2009 et 2010) (avec une valeur de 335 à Lescheraines en Savoie en 2009), en Alsace et en Bretagne (2010). La grande majorité de ces observations sont en totale adéquation avec les très fortes concentrations observées sur ces mêmes sites en période froide. Les valeurs très élevées des ratios saisonniers sur des sites situés en Bretagne ou dans l'Oise sont liées aux faibles concentrations moyennes observées en saison chaude ( $\approx 0,01 \text{ ng.m}^{-3}$ ; concentrations moyennes en saison froide de l'ordre de  $0,5 \text{ ng.m}^{-3}$ ). Enfin, il est important de noter que les différences saisonnières entre la saison froide et la saison chaude sont les plus importantes sur les sites périurbains et dans une moindre mesure les sites ruraux (2008) pour lesquels les rapports de concentrations hiver/été sont compris entre 10 et 30 (valeurs médianes). Le peu de données disponibles ne permet pas d'en tirer de conclusion générale mais ces résultats mettent une fois de plus en avant l'importance dans la stratégie de surveillance des HAP d'instrumenter cette typologie de site. Ces fortes différences hiver/été sont probablement liées aux particularités locales incluant la climatologie et l'usage du chauffage au bois plus courant en hiver. Enfin, il faut noter que l'interprétation finale des résultats obtenus ne se sera complète que si l'analyse des résultats est mise en relation avec les données météorologiques de chaque année ( $T^\circ$ , pluviométrie...).

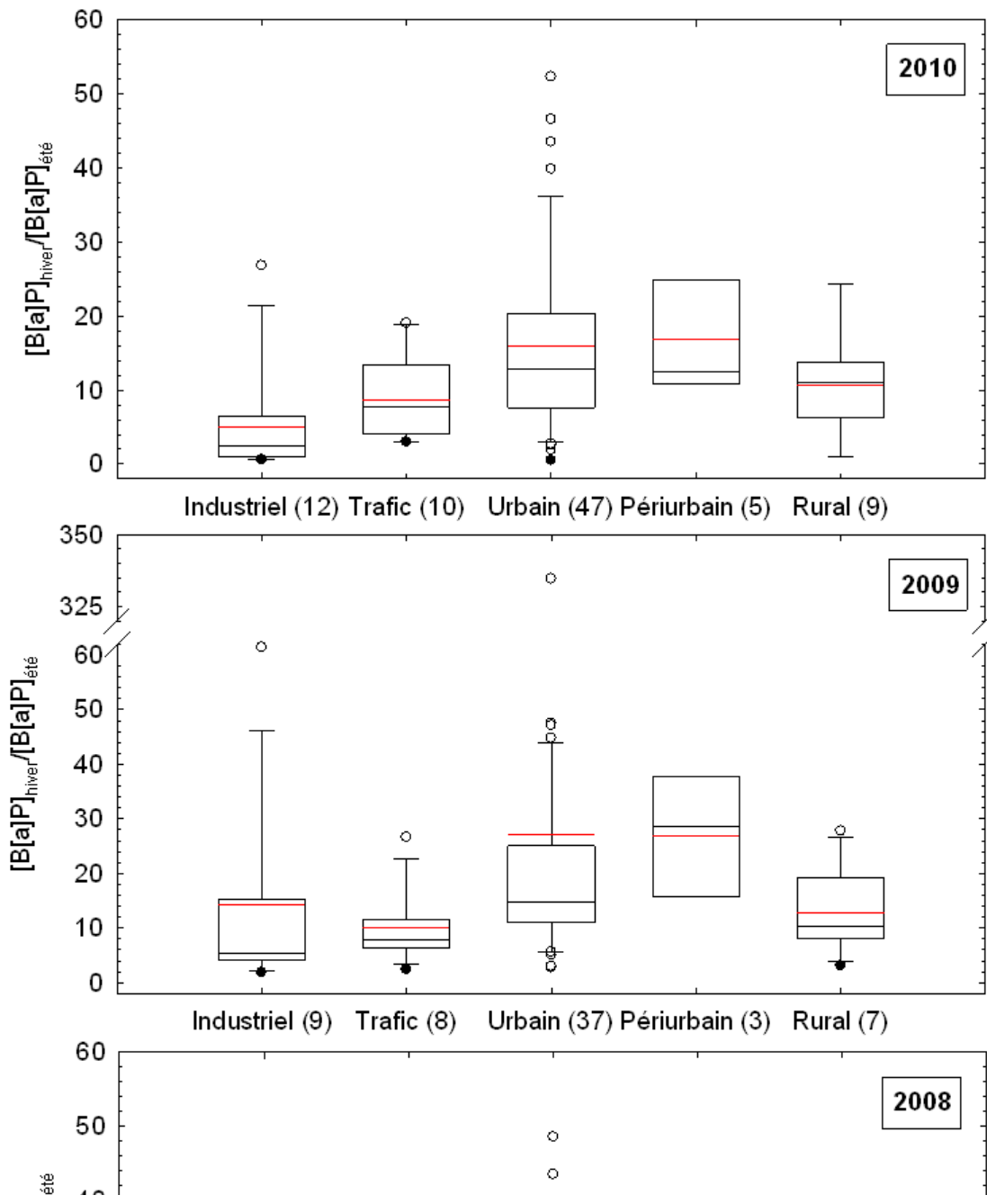


Figure 9 : Boîtes à moustaches des rapports de concentrations moyennes en B[a]P saison froide/saison chaude pour 2008, 2009 et 2010 (nombre de sites). Le trait en rouge représente la valeur moyenne.

L'ensemble des résultats obtenus pour le B[a]P fait ressortir des tendances spatiales majeures (sites industriels exclus). On observe de façon générale des concentrations importantes en B[a]P dans les zones montagneuses de la Savoie, Haute-Savoie et du Cantal. Ces fortes concentrations, mais également les fortes variabilités saisonnières observées, sont liées aux caractéristiques locales de ces zones. L'accumulation des polluants en période froide (inversions thermiques fréquentes liées à la topographie) et probablement un mode de chauffage domestique particulièrement émetteur de HAP et de B[a]P (e.g. chauffage au bois) peuvent expliquer les résultats observés. Enfin, des concentrations importantes sont également observées dans le Pas de Calais, en Lorraine de façon récurrente. De la même manière la météorologie (fortes amplitudes thermiques hiver/été) mais aussi la contribution de sources de HAP plus lointaines (Royaume-Uni et Allemagne) peuvent probablement expliquer les observations réalisées.

### 3.1.1 RATIO B[A]P / $\Sigma_7$ HAP

La cartographie nationale et les statistiques descriptives associées (fréquence d'observation et box-plot) des contributions moyennes annuelles du B[a]P au mélange des 7 HAP de la directive 2004/107/CE (B[a]P /  $\Sigma_7$ HAP) pour l'année 2010 sont présentées sur la Figure 10.

La cartographie montre que le grand quart Sud-Ouest constitue, en 2010, une zone totalement « blanche » pour la mesure des 7 HAP de la directive, de même que les régions Haute-Normandie, Picardie, Champagne-Ardenne et Bourgogne.

La contribution du B[a]P représente en moyenne 12 à 16 % du mélange des 7 HAP et ce, quelle que soit la typologie du site considérée (n = 36). Les plus fortes contributions sont observées sur les sites trafic (valeur médiane = 17 %). Les 3 types de sites potentiellement proches des sources directes d'émissions des HAP (industriel, urbain et trafic) présentent la plus grande variabilité dans la contribution du B[a]P aux HAP (de 11 à 18 % pour les 1<sup>er</sup> et 3<sup>ème</sup> quartiles). Géographiquement, les contributions les plus importantes (tous types de sites confondus) sont observées dans le Sud-Est de la France, dans l'Est (Alsace et Lorraine) et en Ile de France.

Cette distribution géographique se retrouve pour la saison froide de 2010 (Figure 11). Aux trois zones précédemment identifiées s'ajoutent également les départements du Calvados, des Ardennes et du Morbihan. La proportion moyenne de B[a]P dans les HAP en saison froide est similaire à celle qui est observée en moyenne annuelle. Elle est généralement comprise entre 12 et 16 % (n = 29, tous types de sites confondus). Seules les contributions observées sur les sites trafic sont plus importantes (17 % en valeur médiane). Les contributions observées sur les sites industriels sont toutefois moins dispersées qu'en moyenne annuelle. Un seul site industriel, situé en Moselle (Lorraine), s'écarte nettement de la valeur médiane observée pour les sites industriels (17 %).

En saison chaude (Figure 12), les contributions moyennes sont similaires à celles de la saison froide. Elles sont toutefois inférieures et comprises entre 10 et 16 % (n = 28). Les contributions du B[a]P aux 7 HAP sont toujours les plus importantes sur les sites trafic (15 % en valeur médiane). Les contributions les plus importantes sont, comme en moyenne annuelle et pour la saison froide, observées dans le Sud-Est, en Lorraine et en Ile de France. On peut noter une contribution plus importante sur le site urbain de Montpellier (> 20 %) et qui est également supérieure à la contribution observée en période hivernale sur ce même site.

De façon générale les mêmes tendances sont observées pour les 3 années étudiées ici (2008, 2009 et 2010). Les contributions du B[a]P aux 7 HAP les plus importantes sont observées pour les mêmes régions (Sud-Est, Lorraine, Alsace et Ile de France parisienne) avec en plus la région Rhône-Alpes en 2008 et 2009. Entre 2008 et 2010 les contributions sont du même ordre de grandeur ( $\approx 15\%$ ) et sont donc en moyenne annuelle constantes d'une année sur l'autre. Les contributions plus importantes sur les sites trafic sont observées de façon systématique (Figure 13). Une plus grande variabilité des contributions du B[a]P aux HAP est systématiquement observée sur les sites potentiellement proches des sources directes d'émissions des HAP (industriel, urbain et trafic). Cependant, on peut noter des contributions significativement plus importantes, que cela soit en saison froide ou chaude, en 2008 et 2009 par rapport à 2010 en Moselle (sites urbain et industriel) et en Ile de France (site trafic) avec des contributions moyennes pouvant être supérieures à 25 %. Les ratios  $B[a]P / \Sigma_7HAP$  hivernaux sont globalement plus importants que ceux observés en période estivale et ceci de façon systématique d'une année sur l'autre et quel que soit le type de site considéré (Figure 14). En moyenne le rapport des ratios  $B[a]P / \Sigma_7HAP$  hiver/été est compris entre 1 et 1,5 (=  $B[a]P / \Sigma_7HAP$  est 50 % plus important en hiver qu'en été). Ces différences hiver/été peuvent même être extrêmement fortes comme par exemple en 2008 avec, des ratios  $B[a]P / \Sigma_7HAP$  de 100 à 150 % plus importants en hiver qu'en été même sur des sites ruraux.

L'analyse des données réalisée ici montre que la contribution du B[a]P aux 7 HAP semble stable en moyenne annuelle mais grandement variable entre saison chaude et saison froide. Le peu de données disponibles (3 ans) et également la couverture partielle du territoire français ne permettent pas de statuer sur une évolution globale et à long terme. Cependant, la variabilité saisonnière significative des contributions du B[a]P aux 7 HAP d'une année à l'autre peut être préoccupante d'un point de vue sanitaire. Elle permet de mettre en avant l'importance de quantifier non seulement le B[a]P dans l'atmosphère mais également les 6 autres HAP de la directive 2004/107/CE. En effet, le « PAH position paper » précise bien que la contribution du B[a]P au mélange HAP doit être sensiblement constante au cours du temps ou qu'elle doit évoluer dans le sens de la représentativité du B[a]P en tant que traceur de l'activité cancérigène totale des HAP (augmentation de sa contribution) (European commission, 2001; European Official Journal, 2005).

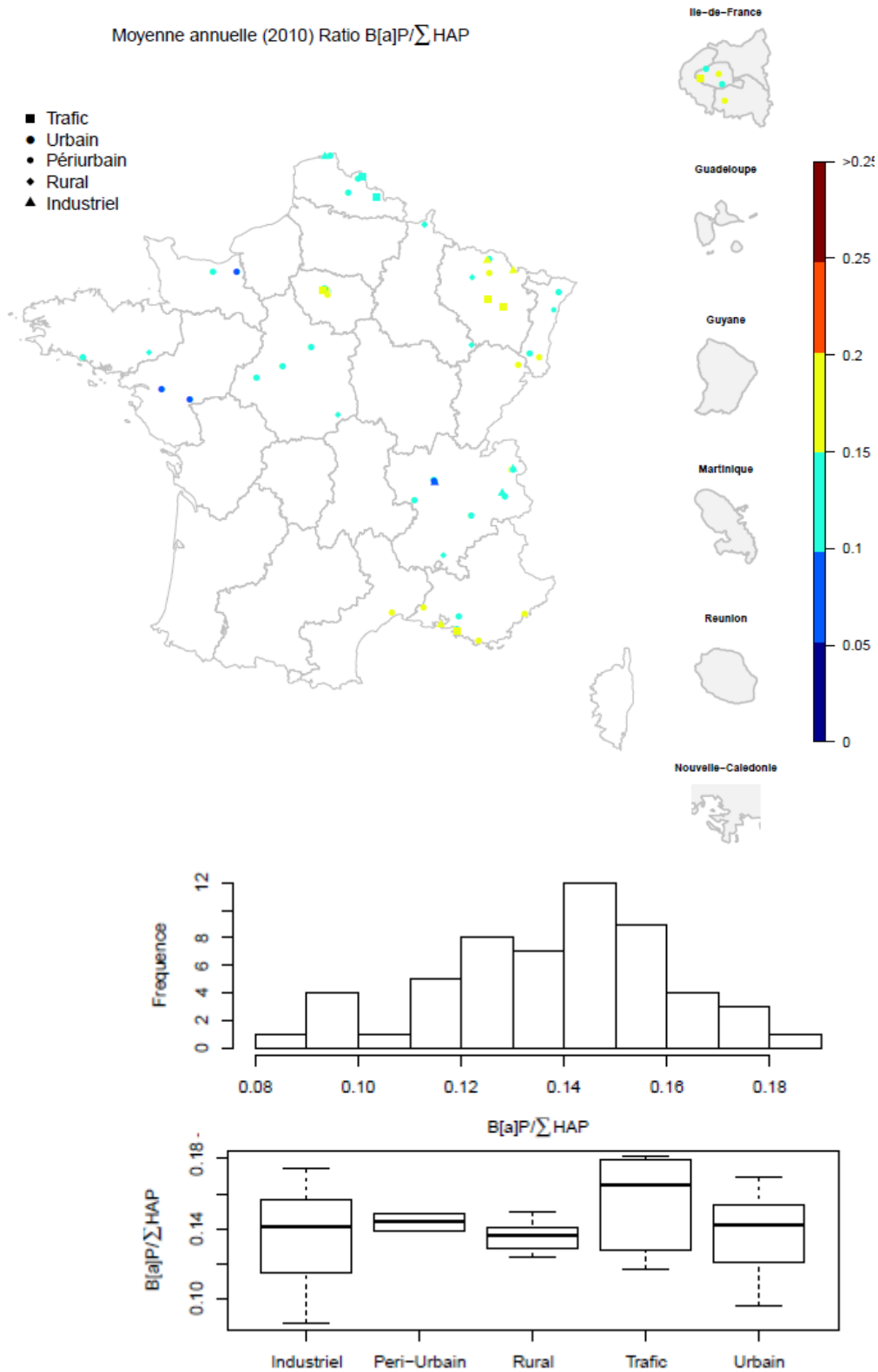


Figure 10 : Cartographie et statistiques descriptives des ratios moyens annuels  $B[a]P / \sum_7 HAP$  (2010).



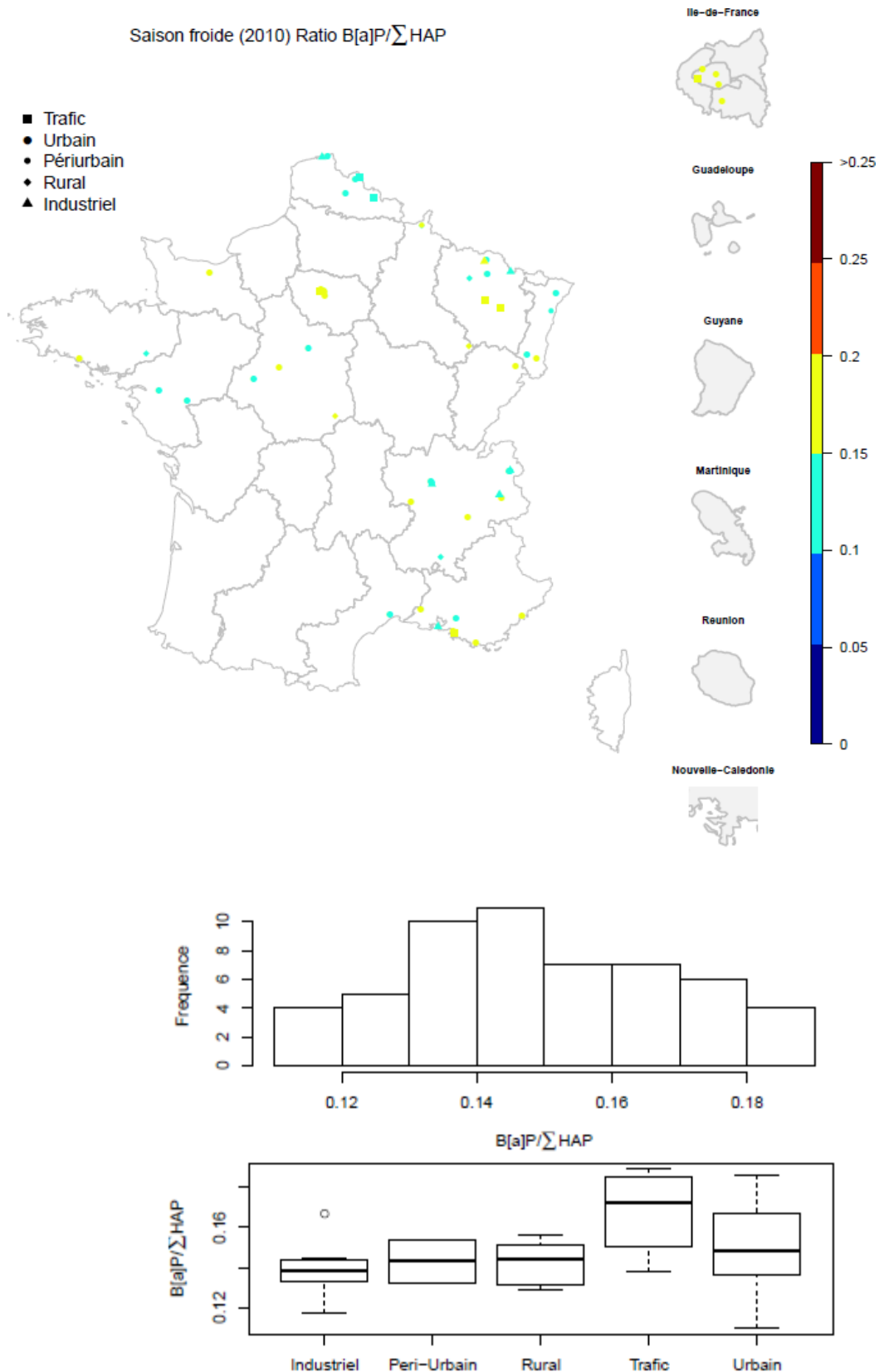


Figure 11 : Cartographie et statistiques descriptives des ratios moyens  $B[a]P / \sum_7 HAP$  (Saison froide, 2010).

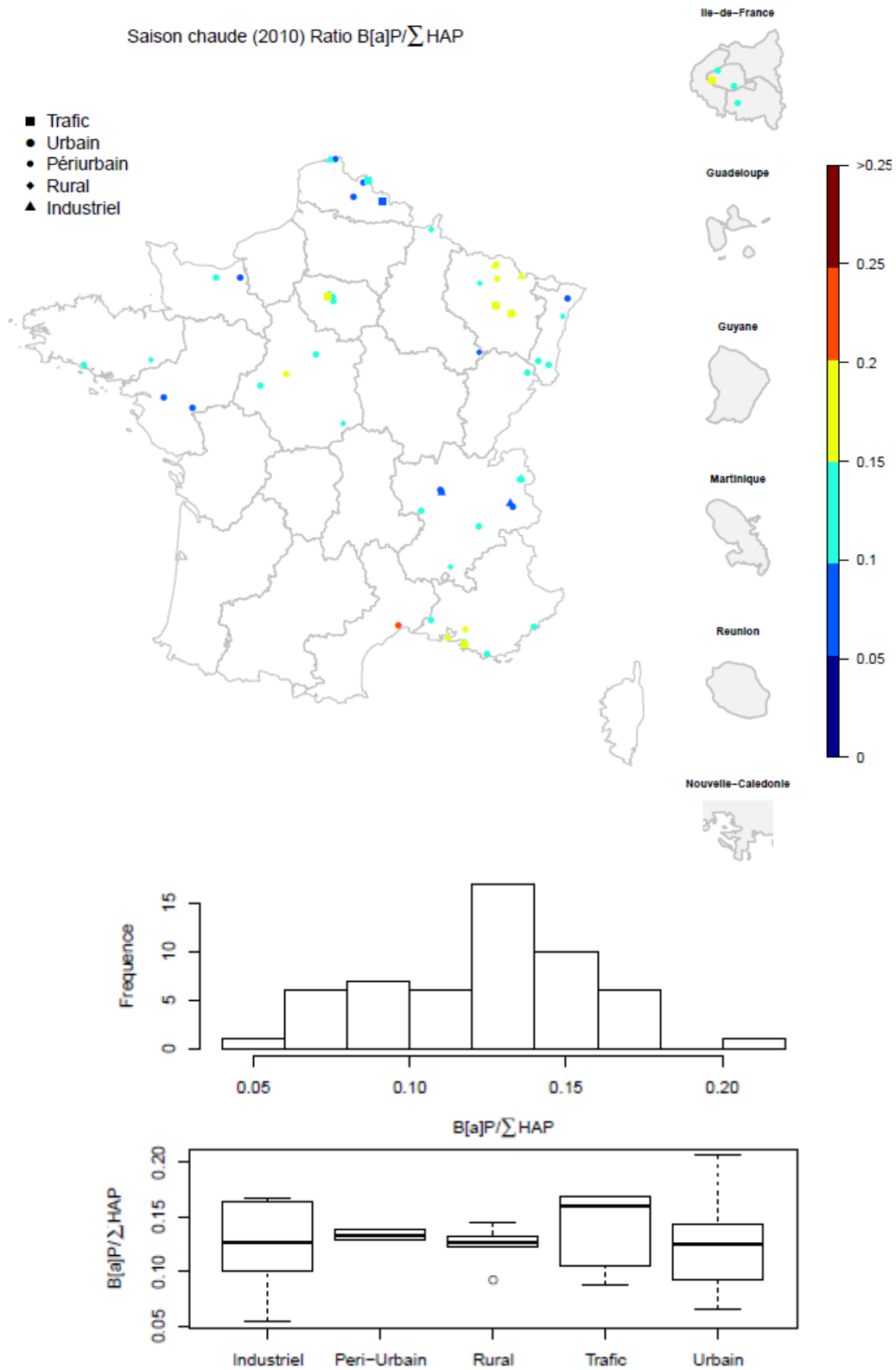


Figure 12 : Cartographie et statistiques descriptives des ratios moyens  $B[a]P / \sum_7 HAP$  (Saison chaude, 2010).

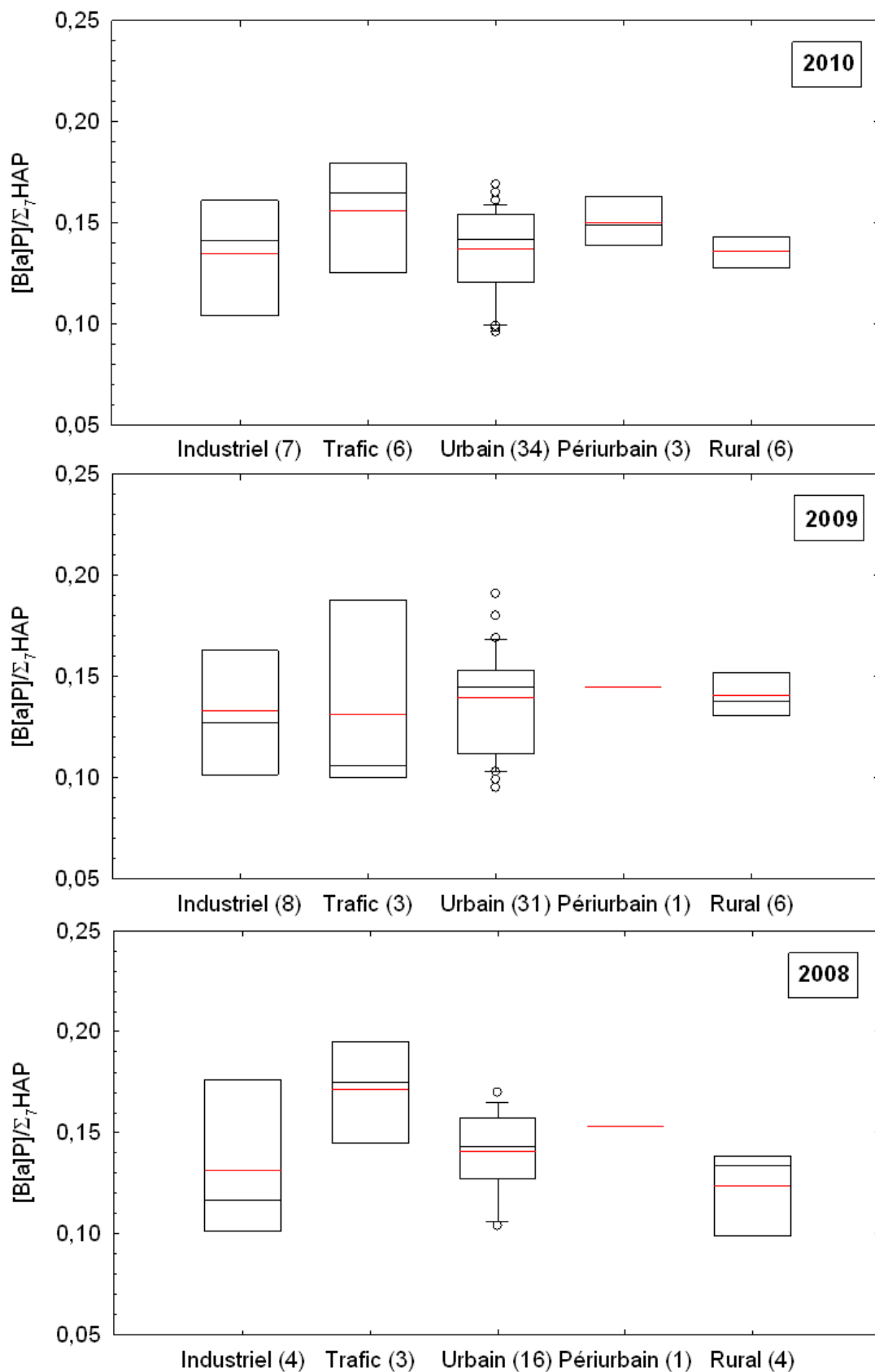


Figure 13 : Boîtes à moustaches des ratios moyens annuels  $B[a]P / \Sigma_7HAP$  selon la typologie du site de prélèvements pour les années 2008, 2009 et 2010 (nombre de sites). Le trait en rouge représente la valeur moyenne.

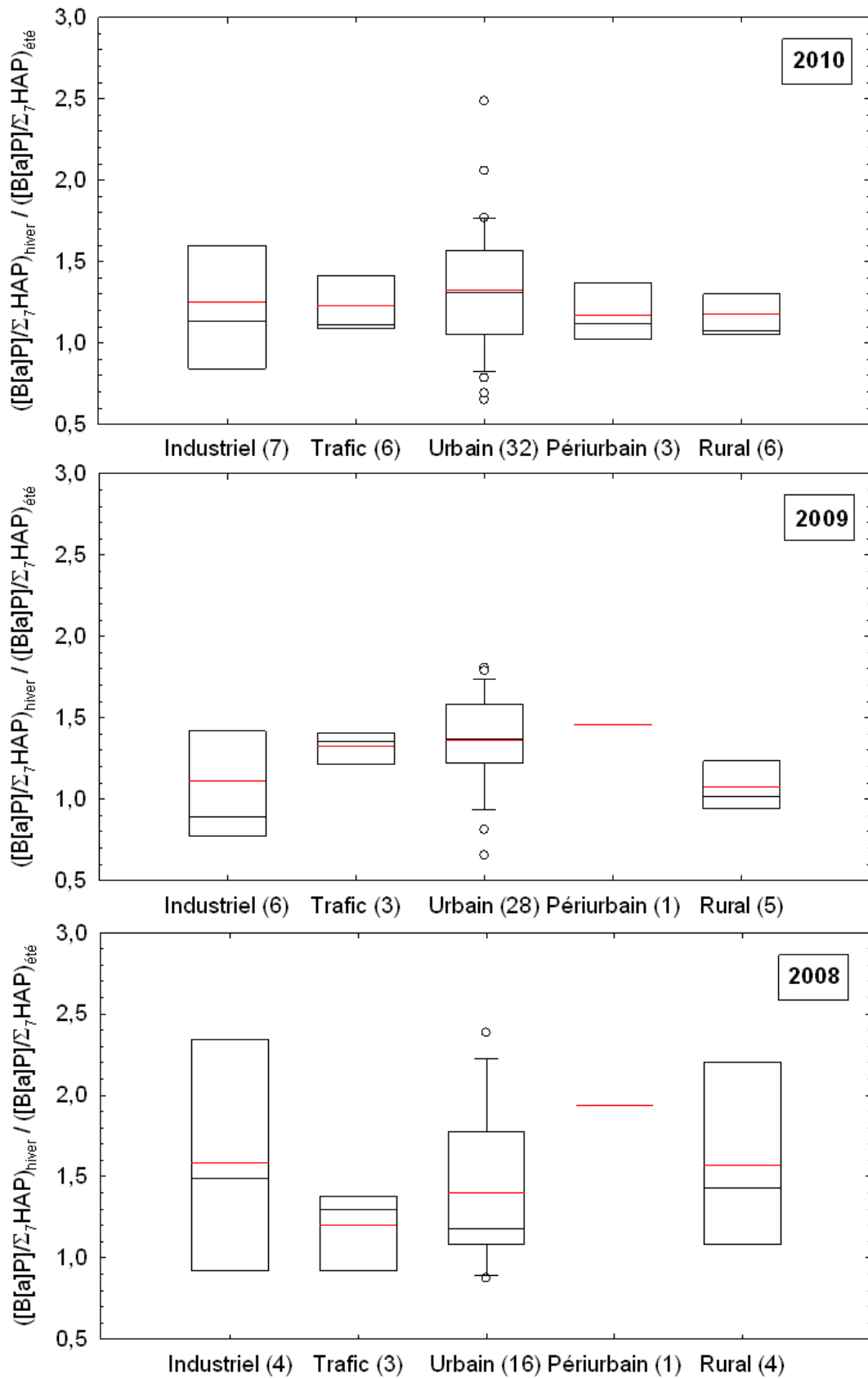


Figure 14 : Boîtes à moustaches des rapports des ratios moyens B[a]P /  $\Sigma_7HAP$  saison froide/saison chaude pour 2008, 2009 et 2010 (nombre de sites). Le trait en rouge représente la valeur moyenne.

#### 4. TENDANCES TEMPORELLES SUR LE LONG TERME

Depuis le 15 Février 2007, conformément aux dispositions de la directive 2004/107/CE, les états membres sont dans l'obligation de surveiller les HAP dans l'air ambiant. En conséquence, trois années minimum de données de surveillance des HAP par les AASQA sont disponibles. Néanmoins, certains sites ont été instrumentés bien avant (depuis 1998 pour certains) et les données sont donc disponibles pour un plus grand nombre d'années. En France, c'est le cas d'AirParif, Atmo Rhône-Alpes (maintenant Air Rhône-Alpes) et Atmo Nord-Pas-de-Calais.

Ainsi, une analyse de tendance d'évolution à long terme (> 5 ans) des concentrations en B[a]P et de la contribution du B[a]P au mélange des 7 HAP ( $B[a]P / \Sigma_7 HAP$ ) a pu être réalisée pour ces sites (à condition qu'ils ne comportent qu'un nombre limité de valeurs manquantes). Afin d'être statistiquement significatives, les analyses de tendance ont été réalisées à partir des jeux de données mensuels.

Dans la littérature, l'analyse de tendance d'évolution à long terme de la concentration atmosphérique en HAP (B[a]P inclus) est très peu documentée. On peut citer par exemples des études réalisées en Grande-Bretagne, Allemagne, Italie, République Tchèque, Etats-Unis (New-York et autour des grands lacs) et dans la zone du cercle arctique (Canada, Finlande et Suède) (

., 2008; Prevedouros et al., 2004; Schauer et al., 2003; Sun et al., 2006). De plus, à notre connaissance, seule une étude (italienne) rapporte des résultats sur la variation temporelle de la contribution du B[a]P à un mélange donné de HAP (Menichini et al., 1999). Ainsi, les résultats présentés ici et l'analyse de tendance d'évolution à long terme sont totalement originaux.

Les séries de données temporelles retenues ([B[a]P et  $B[a]P / \Sigma_7 HAP$ ) ont été décomposées selon un modèle élémentaire décrit par l'équation suivante (Becker et al., 2006):

$$Y_t = T_t + S_t + e_t \quad (\text{équation 1})$$

où  $Y_t$  est la série temporelle observée,  $T_t$  est la tendance à long terme ou la composante de faible fréquence,  $S_t$  est une composante saisonnière (période de une année) et  $e_t$  est une composante irrégulière ou le « bruit » aléatoire.

Une analyse statistique (test de Mann Kendall dit « saisonnier ») a ensuite été réalisée avec d'évaluer l'existence ou non d'une tendance :

- hypothèse **H0** : la série ne présente **pas de tendance**,
- hypothèse **H1** : la série présente une **tendance monotone** (croissance ou décroissance).

La validation ou non de l'existence d'une tendance est ensuite faite en analysant la valeur p (p-value) associée à ce test. Si celle-ci est inférieure à 5 % (**p-value < 0,05**) (risque de se tromper en acceptant l'hypothèse H1 inférieure à 5%), on validera la **présence d'une tendance**.

Dans ce type d'analyse, il est intéressant de mettre en regard les résultats obtenus avec l'évolution sur le long terme des émissions de HAP dans l'atmosphère. La Figure 15 présente l'évolution temporelle des émissions de HAP dans l'atmosphère en France entre 1990 et 2011. On peut donc voir une décroissance significative des émissions de HAP en France depuis 1990 (- 20 tonnes) et même entre 2000 et 2011 (- 9 tonnes), période qui nous intéresse plus particulièrement car les premières données reportées de surveillance des HAP dans l'air ambiant en France datent de 1998 à Paris (Tableau 1). Dans cette dernière période de 10 ans, on peut également noter une augmentation des émissions et de la contribution de la source transport routier (+ 17 %) contrebalancée par une nette diminution des émissions du secteur résidentiel et tertiaire et de leur contribution. Sur la dernière période de 5 ans, ces tendances sont aussi significatives (+ 9 % pour le secteur routier).

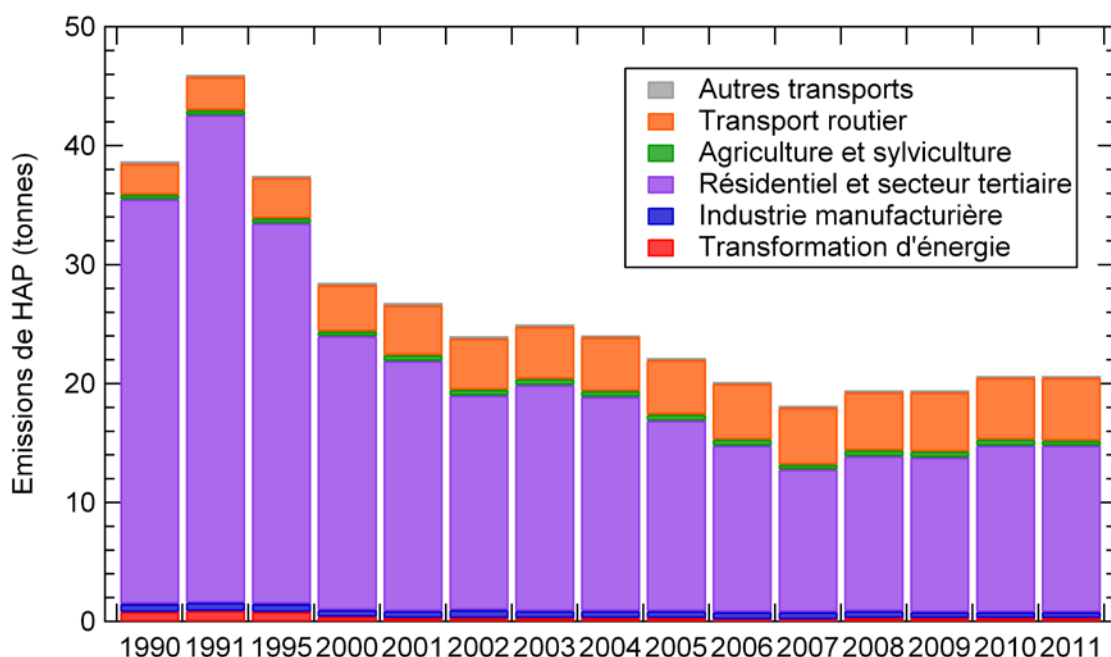


Figure 15 : Emissions des HAP dans l'atmosphère en France entre 1990 et 2011 (estimation pour 2011). (CITEPA, 2012). (4 HAP du protocole Aarhus pris en compte : benzo[a]pyrène, benzo[b]fluoranthène, benzo[k]fluoranthène et indeno[1,2,3-cd]pyrène)

## 4.1 AIRPARIF

### 4.1.1 B[A]P

Les évolutions temporelles (moyennes mensuelles) des concentrations en B[a]P pour les sites d'Airparif sont présentées sur la Figure 16. Airparif possède la base

de données la plus étendue dans le temps avec 3 sites (1 trafic + 2 urbains) instrumentés pour la mesure des HAP comportant 13 années de données et 2 sites (urbains) comportant 9 années de données. De plus, pour l'ensemble des sites, les séries de données mensuelles affichent un taux de représentativité temporelle supérieur à 90 % (Tableau 2).

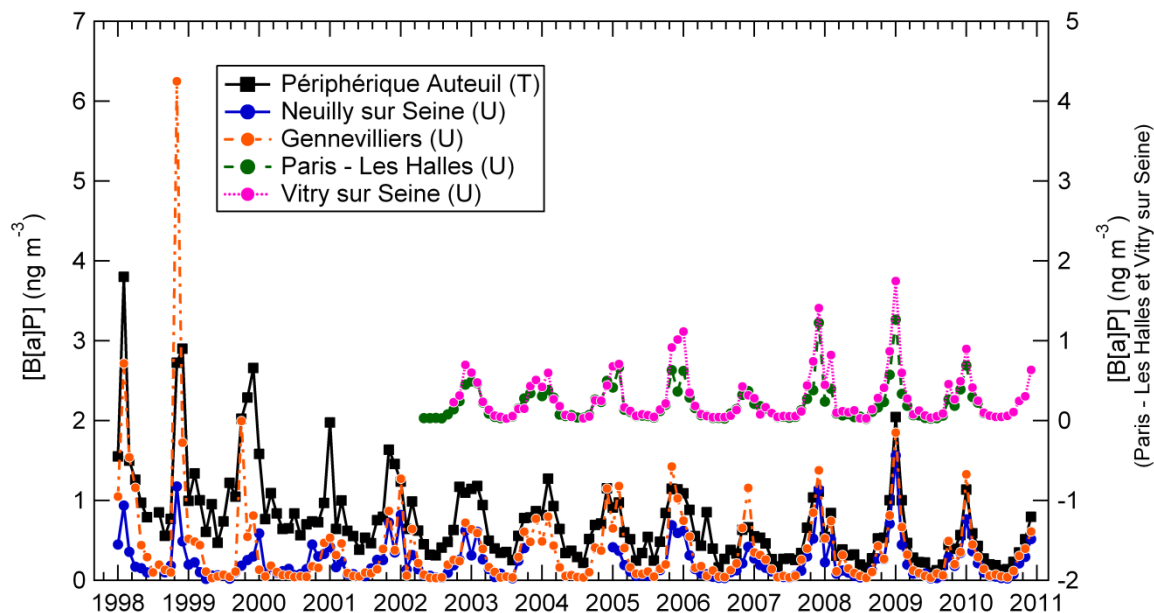


Figure 16 : Evolution temporelle des concentrations moyennes mensuelles en B[a]P en région Ile de France (Airparif).

La décomposition des séries temporelles selon de modèle de l'équation 1 et les résultats de l'analyse statistique réalisée (test de Mann-Kendall « saisonnier ») sont présentés sur la Figure 17 (exemples des sites « Périphérique Auteuil » (trafic) et de « Gennevilliers » (urbain)) et dans le Tableau 3.

Tous les sites présentent des composantes saisonnières très marquées avec des cycles annuels (amplitude moyenne de l'ordre de 1 ng.m<sup>-3</sup>). Les concentrations sont systématiquement plus importantes en hiver qu'en été, en lien avec les sources additionnelles de HAP en hiver (chauffage) et avec une photochimie (dégradation) plus active en été (et donc moindre en hiver). Les tests réalisés ne permettent de conclure à l'existence d'une tendance que pour le site du Périphérique Auteuil (trafic) (Figure 15-A, p-value < 2×10<sup>-16</sup>). Ce résultat permet d'affirmer qu'il y a une décroissance significative des concentrations en B[a]P (- 1 ng.m<sup>-3</sup> en 13 ans) sur ce site alors que dans le même temps, sur l'ensemble du territoire français, les émissions liées au transport routier ont augmenté de 4 à 6 tonnes par an (+33 %) (Figure 15). Cette décroissance significative des concentrations sur ce site trafic est cohérente avec les observations faites par exemple en Italie sur la même période (1994 - 2004). 11 sites trafic présentent ainsi une décroissance des concentrations moyennes annuelles en B[a]P. En 2004, celles-ci ont diminué de moitié par rapport à leur niveau initial en 1994 (de -0,6 à -1,9 ng.m<sup>-3</sup> en 5 à 11 ans) (Menichini et al., 2006).

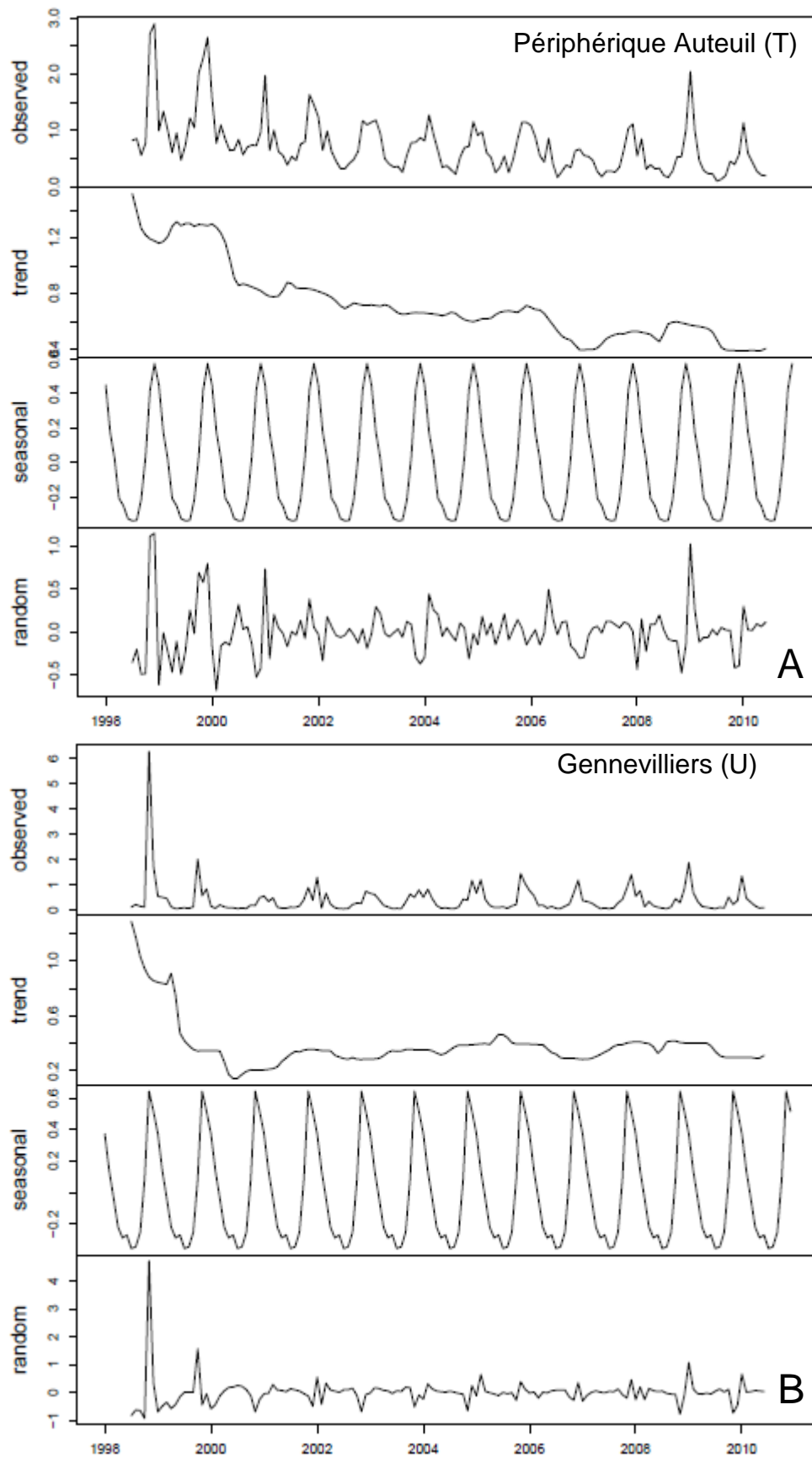


Figure 17 : Décomposition des séries temporelles du B[a]P pour les sites du Périphérique Auteuil (T) – A et de Gennevilliers (U) - B.



Pour les autres sites, le taux de représentativité temporelle des jeux de données ainsi que la longueur des périodes de mesures permettent d'assurer avec certitude qu'il n'y a pas eu de baisse significative des niveaux de concentrations en B[a]P sur les 10 dernières années (p-values > 0.05) (e.g. Figure 17-B et Tableau 3).

Tableau 3 : Analyse statistique des séries du B[a]P par Mann-Kendall « saisonnier » sur les sites d'AirParif.

Site	Période de mesure	Taux de représentativité temporelle (%) *	p-value	Tendance ?
Périphérique Auteuil (T)	1998 - 2010	99	$< 2 \times 10^{-16}$	Oui
Neuilly-sur-Seine (U)	1998 - 2010	90	0,07	Non
Gennevilliers (U)	1998 - 2010	100	0,56	Non
Paris Les Halles (U)	2001 - 2010	100	0,95	Non
Vitry-sur-Seine (U)	2002 - 2010	99	0,50	Non

\* Rapport entre le nombre de mois avec données et le nombre de mois total sur la période de mesure (exprimé en %).

#### 4.1.2 B[A]P / $\Sigma_7$ HAP

Les évolutions temporelles des ratios moyens mensuels B[a]P /  $\Sigma_7$ HAP pour les sites retenus d'Airparif sont présentées sur la Figure 18. L'ensemble des sites présente un taux de représentativité temporelle supérieur à 90 % (Tableau 4).

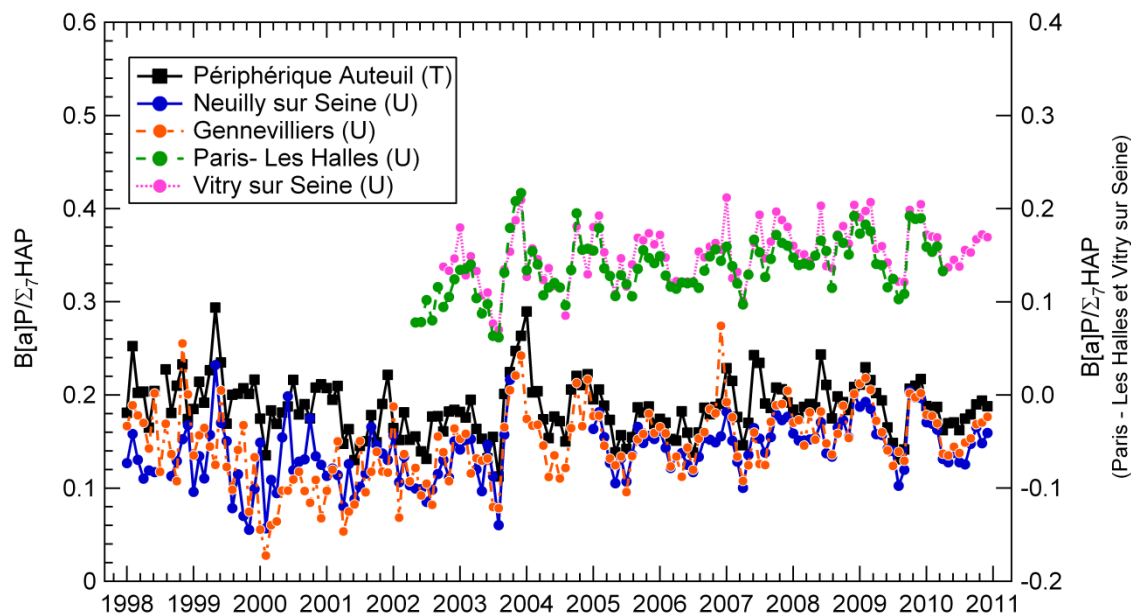


Figure 18 : Evolution temporelle du ratio moyen mensuel B[a]P /  $\Sigma_7$ HAP en région Ile de France (Airparif).

La décomposition des séries temporelles et les résultats de l'analyse statistique réalisée sont présentés sur la Figure 19 (exemples du Périphérique Auteuil (trafic) et de Vitry-sur-Seine (urbain)) et dans le Tableau 4.

Contrairement aux résultats de tendance obtenus pour les concentrations en B[a]P la saisonnalité est peu évidente pour la contribution du B[a]P au mélange même si l'amplitude des cycles est en moyenne de l'ordre de 60 % (e.g. Vitry-sur-Seine : ratios de 0.1 à 0.16). Pour tous les sites, à part le site trafic du Périphérique Auteuil, la contribution du B[a]P au mélange de HAP présente une tendance (p-values <  $3 \times 10^{-16}$ ). On observe une croissance significative de la contribution du B[a]P d'au minimum 50 % en environ 10 ans (la valeur du ratio passe de 0.05 - 0.1 à 0.15 - 0.18, environ) (Figure 18). La différence de tendance entre les typologies de fond et de trafic est probablement liée à des différences d'influence et d'évolution des sources prépondérantes de HAP. Le profil constant en HAP observé sur le site trafic traduit vraisemblablement un profil d'émission relativement constant par les véhicules routiers, malgré l'évolution du parc véhiculaire et des technologies des moteurs. Sur les sites urbains, l'influence et l'évolution d'autres sources de HAP (chauffage résidentiel) est mise en évidence.

Les résultats obtenus sont en accord avec la directive car l'augmentation de la contribution du B[a]P au mélange des HAP renforce le fait que ce composé ait été choisi comme HAP représentatif dans l'atmosphère d'une contamination chronique par cette catégorie de composés (European commission, 2001; European Official Journal, 2005).

Tableau 4 : Analyse statistique des séries du ratio B[a]P /  $\Sigma_7$ HAP par Mann-Kendall saisonnier sur les sites d'Airparif.

Site	Période de mesure	Taux de représentativité temporelle (%) *	p-value	Tendance ?
Périphérique Auteuil (T)	1998 - 2010	99	0,41	Non
Neuilly-sur-Seine (U)	1998 - 2010	90	$9,78 \times 10^{-7}$	Oui
Gennevilliers (U)	1998 - 2010	100	$1,16 \times 10^{-6}$	Oui
Paris Les Halles (U)	2001 - 2010	100	$3,80 \times 10^{-8}$	Oui
Vitry-sur-Seine (U)	2002 - 2010	99	$2,66 \times 10^{-6}$	Oui

\* Rapport entre le nombre de mois avec données et le nombre de mois total sur la période de mesure (exprimé en %).

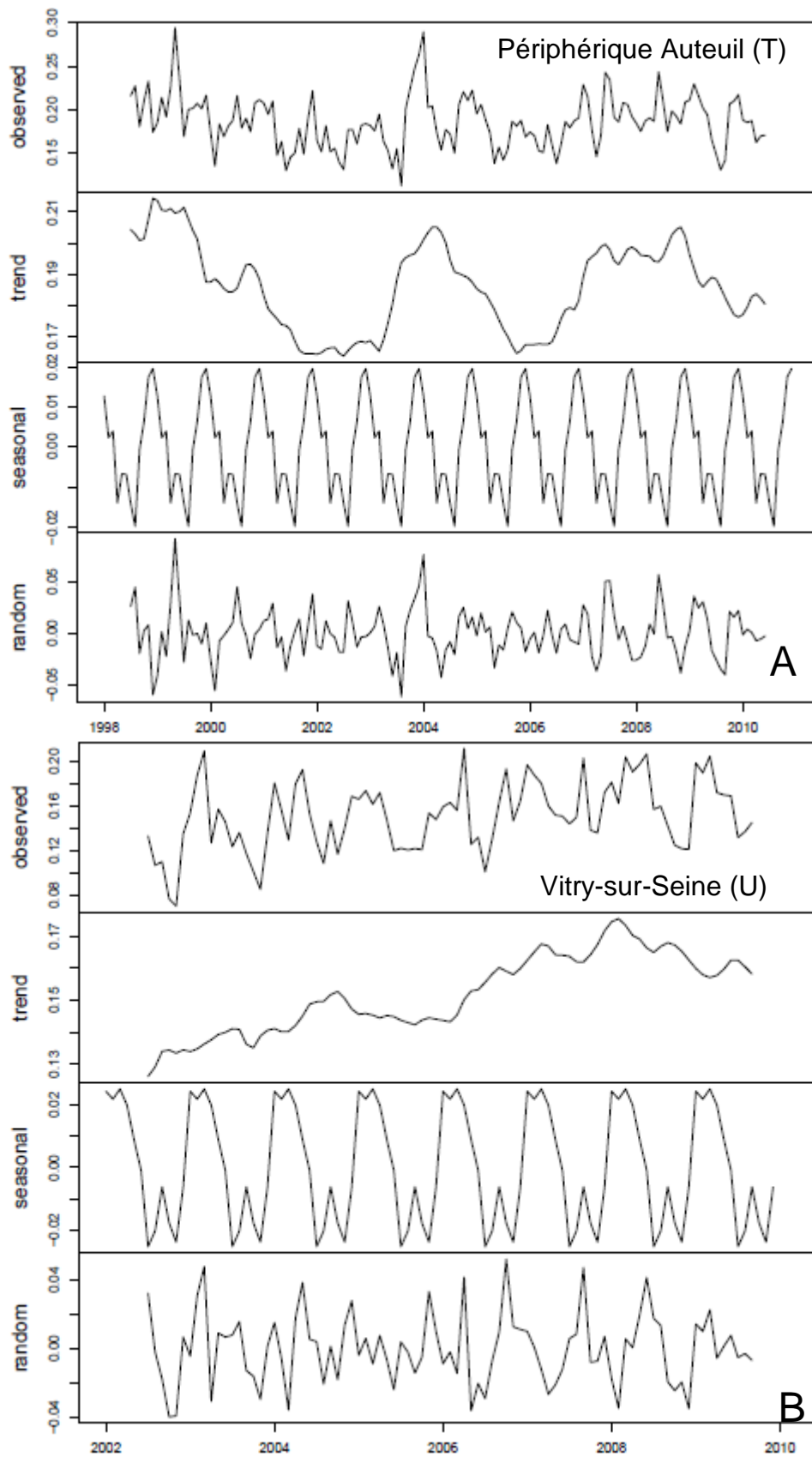


Figure 19 : Décomposition des séries temporelles du ratio  $B[a]P / \Sigma_7HAP$  pour les sites du Périphérique Auteuil (T) - A Vitry-sur-Seine (U) - B.

## 4.2 ATMO RHÔNE-ALPES

### 4.2.1 B[a]P

Les séries pluriannuelles de concentrations moyennes mensuelles en B[a]P pour la région Rhône-Alpes sont présentées sur la Figure 20. Les résultats de décomposition et d'analyse statistique des séries temporelles sont présentés sur la Figure 21 (Grenoble Les Frênes (urbain) et Vénissieux Village (industriel)). Pour l'ensemble des sites, les séries de données mensuelles affichent un taux de représentativité temporelle supérieur à 98 %.

Les composantes saisonnières sont facilement identifiables sur les sites urbains et trafic (amplitude de  $1 \text{ ng.m}^{-3}$ ). Par contre, sur le site industriel la composante saisonnière est très peu marquée même si l'amplitude maximale de concentrations est de l'ordre de  $2 \text{ ng.m}^{-3}$ ). Ce résultat, confirmé également par l'analyse de tendance (Figure 21 et Tableau 5) l'apport et l'émission constante des HAP et donc du B[a]P par l'industrie située à proximité sur site de mesure. Si visuellement, aucune tendance ne se dégage quels que soient les autres sites considérés (Figure 20), les résultats des tests statistiques (Figure 21 et Tableau 4) permettent de mettre en évidence une tendance à la décroissance ( $-0,3 \text{ ng.m}^{-3}$ ) sur ces 6 dernières années des concentrations sur le site de Grenoble Les Frênes ( $p\text{-value} < 1 \times 10^{-16}$ ) et de montrer la force de l'analyse statistique réalisée dans cette étude. Les concentrations moyennes en B[a]P observées sur les autres sites semblent constantes.

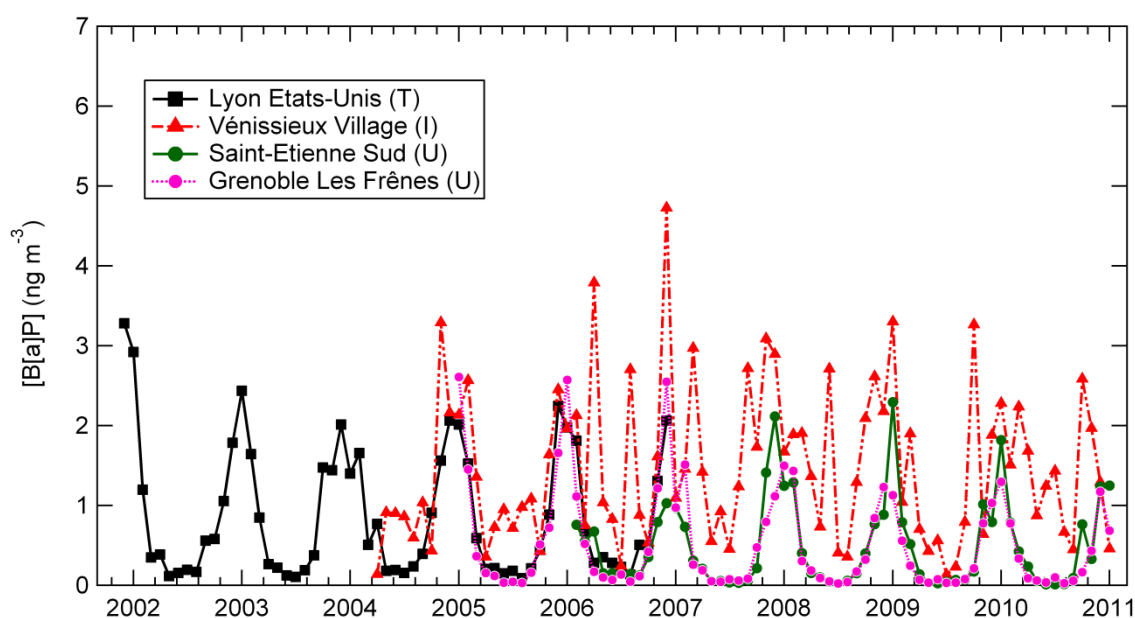


Figure 20 : Evolution temporelle des concentrations moyennes mensuelles en B[a]P en région Rhône-Alpes (Atmo Rhône-Alpes).

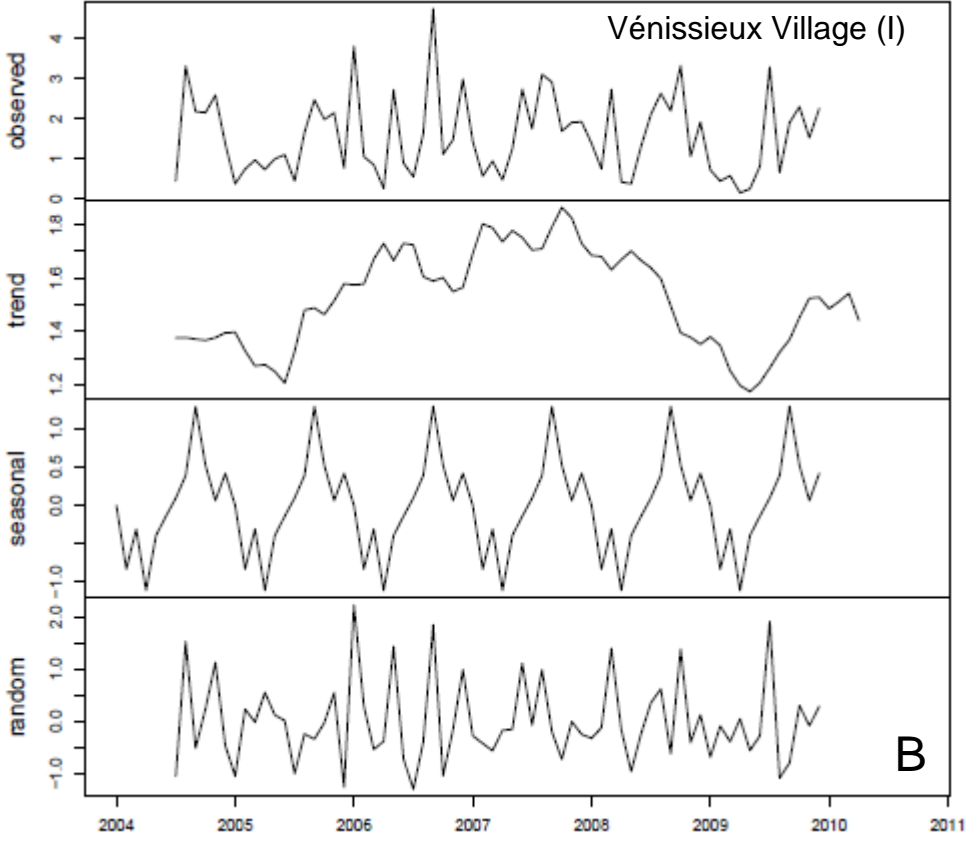
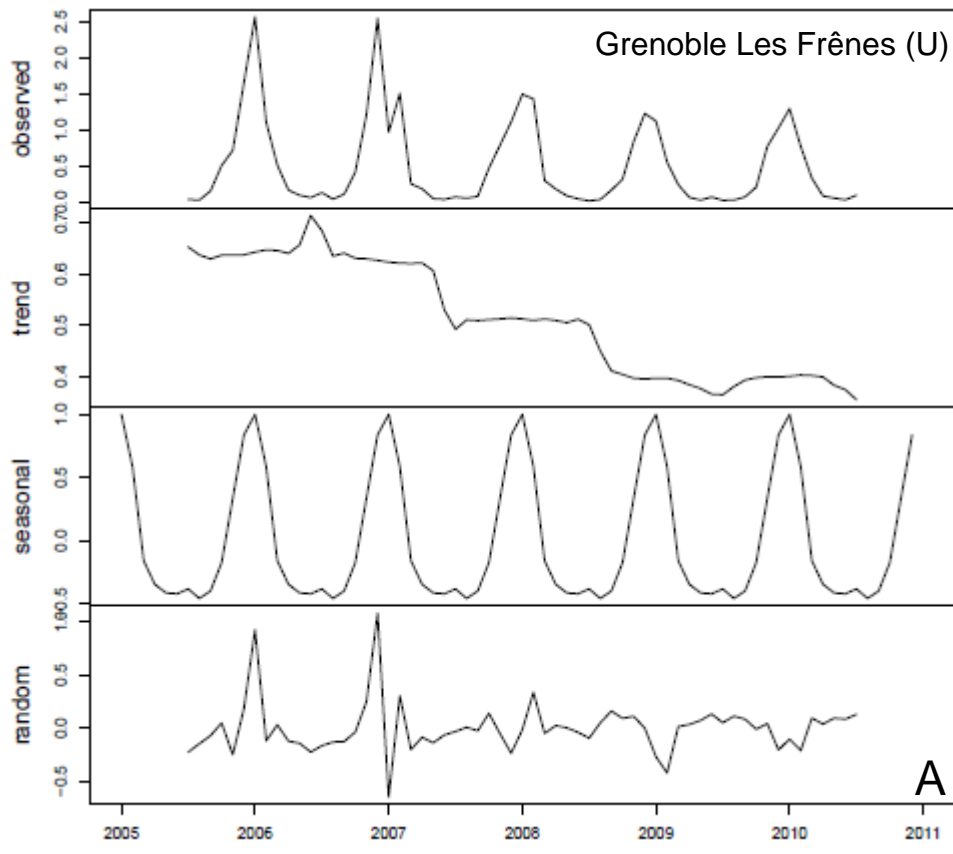


Figure 21 : Décomposition des séries temporelles du B[a]P pour les sites Grenoble-les-Frênes (U) - A et Vénissieux Village (I) - B.

Tableau 5: Analyse statistique Mann-Kendall des séries temporelles des concentrations moyennes mensuelles B[a]P des sites d'Atmo Rhône-Alpes.

Site	Période de mesure	Taux de représentativité temporelle (%) *	p-value	Tendance ?
Lyon Etats-Unis (T)	2000 - 2005	100	0,54	Non
Vénissieux Village (I)	2003 - 2010	100	0,42	Non
Saint-Etienne Sud (U)	2005 - 2010	98	0,07	Non
Grenoble Les Frênes (U)	2004 - 2010	100	$8,78 \times 10^{-5}$	Oui

\* Rapport entre le nombre de mois avec données et le nombre de mois total sur la période de mesure (exprimé en %).

#### 4.2.2 B[A]P / $\Sigma_7$ HAP

Les évolutions temporelles des ratios moyens mensuels B[a]P /  $\Sigma_7$ HAP pour les sites de Rhône-Alpes sont présentées sur la Figure 22. L'ensemble des sites présente un taux de représentativité temporelle supérieur à 98 % (Tableau 6). La décomposition des séries temporelles et les résultats de l'analyse statistique réalisée sont présentés sur la Figure 23 et dans le Tableau 6.

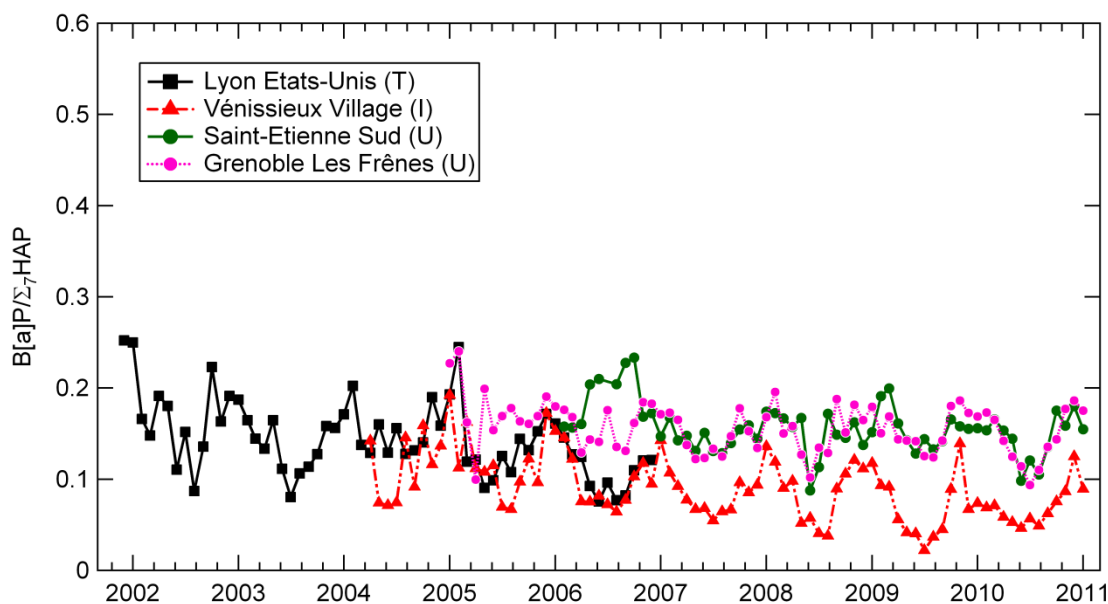


Figure 22 : Evolution temporelle du ratio moyen mensuel B[a]P /  $\Sigma_7$ HAP en région Rhône-Alpes (Atmo Rhône-Alpes).

La saisonnalité ici est beaucoup plus marquée que pour les résultats de la région Ile de France. Les amplitudes thermiques entre l'hiver et l'été, plus importantes en région Rhône-Alpes qu'en région Ile de France, peuvent expliquer ces résultats. L'amplitude saisonnière est comprise entre 40 et 80 % (sites urbains et trafic et industriel, respectivement).

Pour tous les sites, à part celui de Saint-Etienne Sud, la contribution du B[a]P aux 7 HAP mesurés (de -30 à -70 %) présente une tendance significative à la décroissance. Les décroissances les plus importantes sont observées sur les sites trafic et les sites industriels. Ces résultats sont en totale opposition avec ceux

obtenus sur les sites de la région Ile de France où la contribution du B[a]P semblait augmenter avec le temps (sites urbains) ou rester stable (site trafic). Les différences de tendances entre les régions sont pour le moment difficilement explicables. Une évolution différente des modes de chauffage résidentiel entre les deux régions, ainsi que l'évolution du tissu industriel local pourraient être des facteurs prépondérants dans ces différences de tendance. Celles-ci peuvent également être liées à des différences de climatologie régionale et à des évolutions différentes de celle ci.

Ces résultats sont très importants que cela soit d'un point de vue sanitaire ou législatif. En effet, la décroissance significative de la contribution du B[a]P remet cette fois-ci en cause le choix du B[a]P en tant que HAP représentatif de la contamination chronique au niveau européen. De plus, ces résultats confirment que la surveillance des HAP dans l'atmosphère ne doit pas se limiter au seul B[a]P mais doit comprendre l'ensemble de 7 HAP de la directive voire plus.

Tableau 6 : Analyse statistique des séries du ratio B[a]P /  $\Sigma_7$ HAP par Mann-Kendall saisonnier sur les sites d'Atmo Rhône-Alpes

Site	Période de mesure	Taux de représentativité temporelle (%) *	p-value	Tendance ?
Lyon Etats-Unis (T)	2000 - 2005	100	$5 \times 10^{-5}$	Oui
Vénissieux Village (I)	2003 - 2010	100	$1,97 \times 10^{-11}$	Oui
Saint-Etienne Sud (U)	2005 - 2010	98	0.07	Non
Grenoble Les Frênes (U)	2004 - 2010	100	$8.78 \times 10^{-5}$	Oui

\* Rapport entre le nombre de mois avec données et le nombre de mois total sur la période de mesure (exprimé en %).

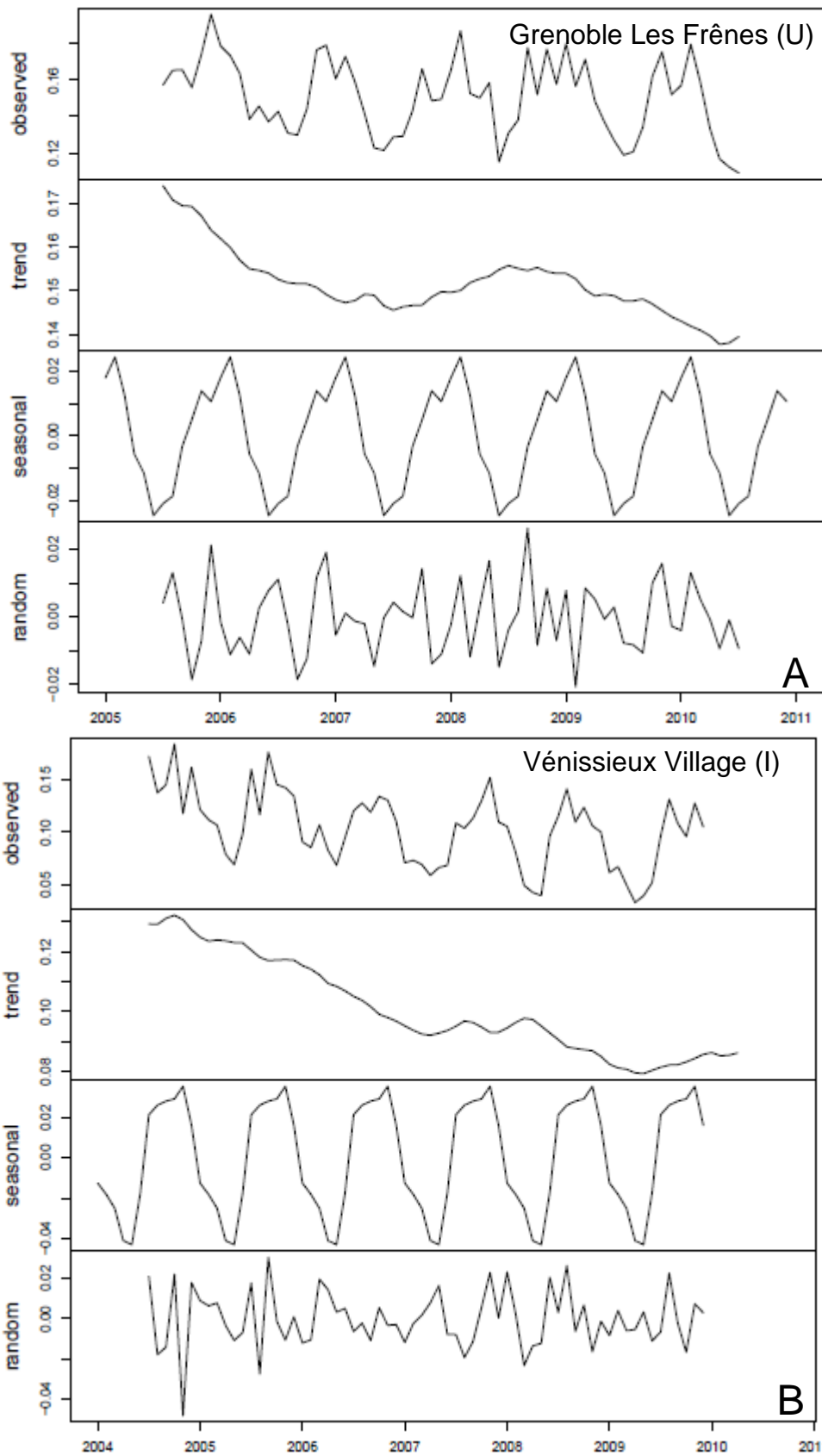


Figure 23 : Décomposition des séries temporelles du ratio  $B[a]P / \Sigma_7HAP$  pour les sites Grenoble-les-Frênes (U) - A et Vénissieux Village (I) - B.



## 4.3 ATMO NORD-PAS-DE-CALAIS

### 4.3.1 B[a]P

Dans la région Nord-Pas-de-Calais, 2 sites (trafic et urbain) ont bénéficié d'une surveillance du B[a]P sur une longue période (8 et 9 ans) (Figure 24) avec, en ce qui concerne les séries de données mesuelles, un taux de représentativité temporelle de 100 %. Les composantes saisonnières sont très marquées dans les deux cas (amplitude de l'ordre de  $1 \text{ ng.m}^{-3}$ ). La décomposition de la série temporelle et l'analyse statistique associée permettent de conclure à une décroissance significative (environ  $-1 \text{ ng.m}^{-3}$  en 8 et 9 ans) des concentrations moyennes en B[a]P ( $p\text{-values} < 1 \times 10^{-10}$ ) sur les deux sites (Figure 25 et Tableau 6). Les données des 7 HAP de la directive n'étant pas disponibles, aucune analyse de tendance du ratio  $B[a]P / \Sigma_7\text{HAP}$  n'a pu être réalisée.

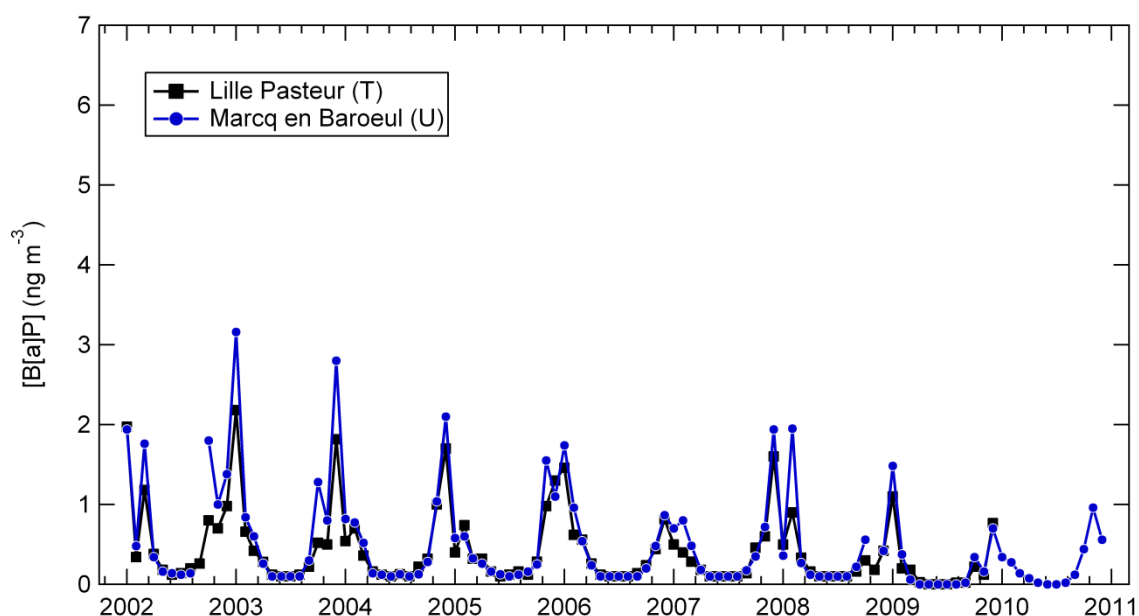


Figure 24 : Evolution temporelle des concentrations moyennes mensuelles en B[a]P en région Nord-Pas-de-Calais (Atmo Nord-Pas-de-Calais).

Tableau 7 : Analyse statistique des séries du B[a]P par Mann-Kendall saisonnier sur les sites d' Atmo Nord-Pas-de-Calais

Site	Période de mesure	Taux de représentativité temporelle (%) *	p-value	Tendance ?
Lille Pasteur (T)	2000 - 2005	100	$3.44 \times 10^{-11}$	Oui
Marcq-en-Barœul (U)	2003 - 2010	100	$1.43 \times 10^{-11}$	Oui

\* Rapport entre le nombre de mois avec données et le nombre de mois total sur la période de mesure (exprimé en %).

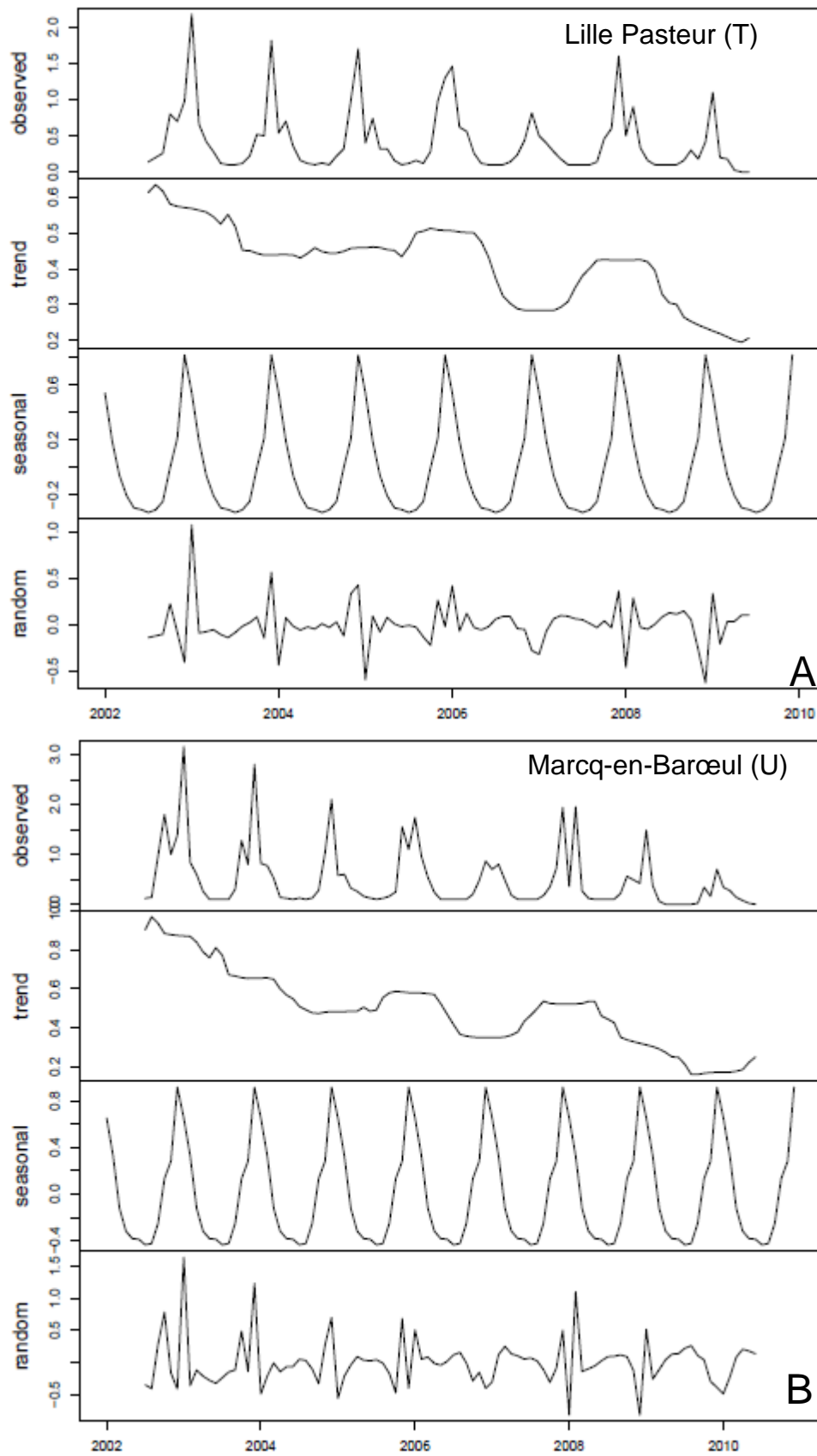


Figure 25 : Décomposition des séries temporelles du B[a]P pour les sites Lille-Pasteur (T) - A et Marcq-en-Barœul (U) - B.

#### 4.4 COMPARAISON DES RESULTATS AVEC LA LITTERATURE

Les résultats obtenus ici sur la tendance à long terme de la décroissance des concentrations en B[a]P sur 4 des 11 sites étudiés sont en accord avec ceux des études réalisées précédemment dans d'autres pays (toutes typologies de sites confondus : Becker et al

., 2008; Prevedouros et al., 2004; Schauer et al., 2003; Sun et al., 2006). La baisse des niveaux de concentrations observée sur les différents sites est l'ordre de  $1 \text{ ng.m}^{-3}$ . Cette baisse des concentrations est également en cohérence avec la baisse des émissions de HAP en France (Figure 15, CITEPA, 2012) et d'une manière générale en Europe. Les variations saisonnières très marquées sont cohérentes avec l'activité photochimique et la présence de sources additionnelles de HAP (chauffage) en saison froide. Cependant, pour les 7 autres sites restant, aucune tendance significative (à la hausse ou la baisse) des concentrations en B[a]P n'est observée. Ces résultats sont en opposition avec d'une part, l'estimation des émissions de HAP en France qui ont diminué sur cette période (Figure 15), même si d'un point de vue local les évolutions peuvent être différentes, et d'autre part, avec les observations faites dans d'autres pays tels que l'Italie ou la Grande-Bretagne (Meijer et al., 2008; Menichini et al., 2006). Cependant, ils sont cohérents avec les observations faites en République Tchèque sur la même période où aucune baisse ou augmentation significative des concentrations moyennes annuelles en B[a]P n'a été observée (Dvorska et al., 2008). Il y a, semble-t-il, une disparité géographique de la baisse des concentrations en HAP. Celle-ci est peut-être due à des spécificités locales ou à la nature des sources influentes dont les émissions n'évoluent pas nécessairement de la même manière. Il faudrait conduire un travail approfondi pour pouvoir le vérifier (études de sources par exemple par positive mass factorisation (PMF) (e.g. Belis et al., 2011; Jang et al., 2012; Larsen and Baker, 2003; Park et al., 2011)

Les résultats obtenus ici montrent que le choix du B[a]P en tant que HAP représentatif d'une contamination chronique est discutable. En effet, si sur les sites de l'Île de France, la contribution du B[a]P au mélange des HAP est constante ou croissante sur le long terme, elle est nettement décroissante à long terme sur la grande majorité des sites de Rhône-Alpes. Les seuls éléments auxquels peuvent être comparés nos résultats sont ceux de la seule étude récente disponible à notre connaissance et qui concerne des données issues d'un site trafic à Rome (Italie) (Menichini et al., 1999). Cette étude a montré la stabilité de la contribution du B[a]P au 7 HAP sur 5 ans. De plus, celle-ci était en accord avec les études plus anciennes des années 70 et 80 qui ont servi de base à la rédaction de la directive et à la notification dans cette dernière que la contribution du B[a]P devait demeurer stable au cours du temps. Les résultats contrastés obtenus dans notre étude peuvent être liés à la climatologie ou à la nature des sources des HAP. Il conviendra de vérifier ces hypothèses lors de travaux futurs. Ces résultats devront en outre être pris en considération lors des discussions liées à la révision de la

directive et notamment dans les éventuelles réflexions sur le nombre de HAP réglementaires à surveiller. Ils montrent en effet que la représentativité du B[a]P par rapport au mélange des HAP n'est pas assurée et qu'en conséquence, pour répondre à des questions sanitaires, l'analyse des 7 HAP de la directive pourrait se révéler essentielle. L'analyse des HAP pourrait même être étendue à d'autres composés tels que les 16 HAP déclarés prioritaires par l'US-EPA et d'autres HAP tels que le Coronène, le Rétène ou les HAP-méthylés. On pourrait alors envisager, dès lors que des séries pluriannuelles de données seraient disponibles, de réaliser une étude des sources de HAP sur les sites problématiques, par exemple en appliquant un modèle statistique récepteur du type PMF (positive mass factorisation) (Belis et al., 2011; Jang et al., 2012; Larsen and Baker, 2003; Park et al., 2011). De futures études du LCSQA sur les HAP pourraient être orientées dans cette perspective.

## **5. CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES**

Le travail accompli a permis de réaliser la collecte et le traitement statistique d'un vaste ensemble de données relatif aux concentrations en HAP à l'échelle nationale. Des cartographies nationales des niveaux de concentrations en B[a]P et de la contribution du B[a]P au mélange des 7 HAP de la directive (ratio B[a]P /  $\Sigma_7$  HAP) ont pu être établies pour les années 1998 à 2010. Une analyse approfondie des cartographies de ces 3 dernières années (les plus complètes) a été ensuite réalisée. Enfin, pour les jeux de données les plus étendus dans le temps (> 5 ans), une étude de tendance a été réalisée afin d'évaluer les évolutions sur le long terme des concentrations en HAP et de leurs profils.

Les résultats obtenus révèlent l'existence de zones encore « blanches » où la surveillance des HAP n'est pas encore opérationnelle notamment en ce qui concerne l'ensemble des HAP de la directive 2004/107/CE. De façon générale, les concentrations moyennes annuelles de B[a]P observées sont inférieures à la valeur cible de 1 ng.m<sup>-3</sup>. Seuls les sites industriels et certains sites (urbains en majorité) situés dans des zones spécifiques présentent des concentrations moyennes annuelles supérieures à cette valeur cible. Les zones problématiques concernent de façon régulière les départements du Pas de Calais, de la Lorraine, de la Savoie et de la Haute-Savoie. De plus, l'analyse des résultats selon la typologie du site instrumenté a permis de mettre en avant l'importance de la surveillance des HAP sur les sites de type périurbain où des concentrations élevées peuvent être observées. L'influence du chauffage au bois pourrait être sensible sur ces sites. Toutefois, cette hypothèse reste à vérifier à l'aide de données plus nombreuses. L'étude des rapports de concentration entre saison froide et saison chaude montre également l'effet de la saisonnalité sur les concentrations en B[a]P (rapport 10 à 20 entre saison froide et saison chaude). Le chauffage résidentiel en tant que source additionnelle de HAP en hiver, la photochimie en période estivale, qui favorise la

dégradation dans l'atmosphère du B[a]P, et les conditions météorologiques particulières (inversions thermiques) expliquent ces différences. La contribution du B[a]P aux 7 HAP semble stable en moyenne annuelle mais est grandement variable entre la saison chaude et la saison froide. Cette variabilité saisonnière significative souligne la nécessité de quantifier non seulement le B[a]P dans l'atmosphère mais également les 6 autres HAP de la directive 2004/107/CE. En effet, la directive spécifie bien de vérifier et contrôler que la contribution du B[a]P au mélange des HAP est constante.

L'analyse des tendances sur le long terme pour des sites d'Airparif, Atmo Rhône-Alpes (Air Rhône-Alpes) et Atmo Nord-Pas-de-Calais indique une décroissance générale des concentrations en B[a]P (- 1 ng.m<sup>-3</sup> en 10 ans en moyenne). Cette baisse des concentrations est également en cohérence avec la baisse des émissions de HAP en France et d'une manière générale au niveau européen. Toutefois, sur une grande partie des sites instrumentés, aucune baisse significative des concentrations en B[a]P n'est observée ce qui semble contradictoire avec les observations faites dans d'autres pays européens et la baisse des émissions de HAP en France évaluée par le CITEPA. A cette évolution se superposent des variations saisonnières très marquées liées à l'activité photochimique en saison chaude et à la présence de sources additionnelles de HAP (chauffage) en saison froide. L'analyse de ces évolutions temporelles montre aussi que le choix du B[a]P en tant que HAP représentatif d'une contamination chronique est discutable. En effet, sur les sites de l'Ile de France, la contribution du B[a]P au mélange des HAP est constante ou croissante sur le long terme alors qu'elle est significativement décroissante (plus de -50% en 10 ans) sur la grande majorité des sites de Rhône-Alpes. Si dans le premier cas (Ile de France), le choix par la directive du B[a]P comme HAP représentatif semble pertinent, dans le second cas (Rhône-Alpes), il est pourrait être remis en cause. Ces résultats devront être pris en considération lors des discussions concernant la révision de la directive, et notamment lors des discussions relatives à l'utilisation du B[a]P comme traceur de la contamination chronique en HAP. L'ensemble des résultats obtenus montrent l'importance de prendre en compte les 7 HAP de la directive dans la surveillance et l'évaluation de la qualité de l'air. La liste des HAP à surveiller pourrait être par exemple étendue aux 16 HAP recommandés par l'US-EPA. Un tel suivi sur des périodes de plusieurs années (au moins 2-3 ans) permettrait à terme d'évaluer les sources potentielles des HAP en utilisant des modèles statistiques du type PMF. Ce type d'approche reste toutefois à évaluer.

L'analyse de l'ensemble de données collectées au cours de cette étude sera ensuite étendue à d'autres variables. Les corrélations des concentrations en HAP avec d'autres polluants ou paramètres (particules (PM<sub>10</sub> et PM<sub>2,5</sub>), NO<sub>x</sub>, benzène, température ambiante) seront en particulier examinées. A plus long terme, il est envisager de croiser les données de HAP avec différentes bases de données telles que l'inventaire national spatialisé des émissions, la population, l'altitude. L'objectif sera d'analyser plus en détail l'influence des sources émettrices de HAP, de la

densité de population, et de la topographie du site sur les niveaux de concentration et les profils en HAP à l'échelle nationale.

## 6. REFERENCES

Albinet, A., 2011. Rapport de recommandations pour le prélèvement et l'analyse des hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) dans l'air ambiant. LCSQA.

Becker, S., Halsall, C. J., Tych, W., Hung, H., Attewell, S., Blanchard, P., Li, H., Fellin, P., Stern, G., Billeck, B. and Friesen, S., 2006. Resolving the long-term trends of polycyclic aromatic hydrocarbons in the canadian arctic atmosphere. *Environmental Science & Technology* 40, 3217-3222.

Belis, C. A., Cancelinha, J., Duane, M., Forcina, V., Pedroni, V., Passarella, R., Tanet, G., Douglas, K., Piazzalunga, A., Bolzacchini, E., Sangiorgi, G., Perrone, M. G., Ferrero, L., Fermo, P. and Larsen, B. R., 2011. Sources for PM air pollution in the Po Plain, Italy: I. Critical comparison of methods for estimating biomass burning contributions to benzo(a)pyrene. *Atmospheric Environment* 45, 7266-7275.

CITEPA, 2012. Inventaire des émissions de polluants atmosphériques et de gaz à effet de serre en France. Séries sectorielles et analyses étendues. CITEPA (Centre Interprofessionnel Technique d'Etudes de la Pollution Atmosphérique): [http://www.citepa.org/images/III-1 Rapports Inventaires/secten avril2012-indb sec.pdf](http://www.citepa.org/images/III-1_Rapports_Inventaires/secten_avril2012-indb_sec.pdf).

Dimashki, M., Lim, L. H., Harrison, R. M. and Harrad, S., 2001. Temporal trends, temperature dependence, and relative reactivity of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons. *Environmental Science & Technology* 35, 2264-2267.

Dvorska, A., Lammel, G., Klanova, J. and Holoubek, I., 2008. Kosetice, Czech Republic – ten years of air pollution monitoring and four years of evaluating the origin of persistent organic pollutants. *Environmental Pollution* 156, 403-408.

European commission, 2001. Ambient air pollution by PAH: position paper. European commission: [http://ec.europa.eu/environment/air/pdf/pp\\_pah.pdf](http://ec.europa.eu/environment/air/pdf/pp_pah.pdf).

European Official Journal, Directive 2004/107/CE of the European Parliament and of the Council of 15 December 2004 relating to arsenic, cadmium, mercury, nickel and polycyclic aromatic hydrocarbons in ambient air. In *Official Journal*, 2005; Vol. L23, pp 3-16.

IARC, 2010. Some non-heterocyclic polycyclic aromatic hydrocarbons and some related exposures. Lyon, Vol. 92.

Jang, E., Salim Alam, M. and Harrison, R. M. In *Source apportionment of PAHs in urban areas*, European Aerosol Conference (EAC), Granada (Spain), 2012.

Larsen, R. K. and Baker, J. E., 2003. Source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons in the urban atmosphere: a comparison of three methods. *Environmental Science & Technology* 37, 1873-1881.

Meijer, S. N., Sweetman, A. J., Halsall, C. J. and Jones, K. C., 2008. Temporal trends of polycyclic aromatic hydrocarbons in the U.K. atmosphere: 1991–2005. *Environmental Science & Technology* 42, 3213-3218.

Menichini, E., Monfredini, F. and Merli, F., 1999. The temporal variability of the profile of carcinogenic polycyclic aromatic hydrocarbons in urban air: a study in a medium traffic area in Rome, 1993 - 1998. *Atmospheric Environment* 33, 3739-3750.

Menichini, E., Belladonna, V., Bergoglio, F., Gabrieli, C., Ceccanti, M., Rossi, I., Cellini, L., Corradetti, E., Grechi, D., Tricarico, V., Rosa, M., Zemello, C., Spiazzi, A., Stella, A., Valerio, F., Trevisani, G. R. and Villalta, R., 2006. Trend of atmospheric benzo[a]pyrene in Italy before the adoption of the european directive on PAHs. *Polycyclic Aromatic Compounds* 26, 79-92.

, R. F., Hoepner, L., Chillrud, S. N., Yan, B., Garfinkel, R., Whyatt, R., Camann, D., Perera, F. P., Kinney, P. L. and Miller, R. L., 2008. Spatial and temporal trends of polycyclic aromatic hydrocarbons and other traffic-related airborne pollutants in New York city. *Environmental Science & Technology* 42, 7330-7335.

Park, S.-U., Kim, J.-G., Jeong, M.-J. and Song, B.-J., 2011. Source Identification of Atmospheric Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Industrial Complex Using Diagnostic Ratios and Multivariate Factor Analysis. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology* 60, 576-589.

Prevedouros, K., Brorström-Lundén, E., J. Halsall, C., Jones, K. C., Lee, R. G. M. and Sweetman, A. J., 2004. Seasonal and long-term trends in atmospheric PAH concentrations: evidence and implications. *Environmental Pollution* 128, 17-27.

Schauer, C., Niessner, R. and Poschl, U., 2003. Polycyclic aromatic hydrocarbons in urban air particulate matter: decadal and seasonal trends, chemical degradation, and sampling artifacts. *Environmental Science & Technology* 37, 2861-2868.

Sun, P., Blanchard, P., Brice, K. A. and Hites, R. A., 2006. Trends in polycyclic aromatic hydrocarbon concentrations in the Great Lakes atmosphere. *Environmental Science & Technology* 40, 6221-6227.

## 7. LISTE DES ANNEXES

<b>Repère</b>	<b>Désignation</b>	<b>Nombre de pages</b>
Annexe 1	Présentation du fichier Excel de report des données et du formulaire explicatif envoyés par courriel aux AASQA	2
Annexe 2	Cartographies et statistiques descriptives pour les concentrations atmosphériques moyennes du B[a]P et B[a]P / $\Sigma_7$ HAP pour l'intersaison de l'année 2010	2
Annexe 3	Cartographies et statistiques descriptives pour les concentrations atmosphériques moyennes annuelles du B[a]P et B[a]P / $\Sigma_7$ HAP de l'année 2010 (avec codes qualités a et b uniquement)	2
Annexe 4	Cartographies nationales du B[a]P vis-à-vis des seuils d'évaluation supérieurs et inférieurs (de 2008 à 2010).	3





## **ANNEXE 1**

---

Présentation du fichier Excel de report des données et du  
formulaire explicatif envoyés par courriel aux AASQA

## **Indications pour remplir le fichier Excel avec les données des HAP et des autres polluants ciblés**

### ➤ **HAP**

Les informations demandées concernent les concentrations journalières en HAP mesurées sur les différents sites de prélèvement et pour l'ensemble des années de surveillance disponibles. Pour chaque site de mesure, reporter chronologiquement les concentrations et les dates dans les colonnes correspondantes. Dans le fichier initial, seul un site a été représenté. Pour chaque nouveau site de mesure, faire un C/C à droite des précédents tableaux de données (HAP & autres polluants ciblés + informations sur les sites) et répéter le travail.

Les HAP concernés sont en priorité le B(a)P et les HAP de la 4<sup>ème</sup> directive fille 2004/107/CE mais le report de l'ensemble des autres HAP mesurés en parallèle est également souhaité.

L'ordre d'indication des HAP dans le fichier Excel a été donné à titre d'exemple. Celui-ci peut être modifié (en prenant soin d'indiquer en tête de colonne le nom des HAP correspondants).

L'heure de début et de fin des prélèvements est demandée à titre « facultatif ». Si ces données sont inaccessibles, indiquer une heure approximative commune à l'ensemble des prélèvements du site. Si cette information n'est pas connue, ne rien indiquer.

Si une analyse composée des échantillons a été pratiquée, l'indiquer et préciser la période de regroupement dans la case « Remarque » dans le cadre « Informations sur le site de mesure des HAP ».

### ➤ **Autres polluants (NO<sub>x</sub>, Particules et Benzène)**

Sont uniquement concernées : les concentrations en NO<sub>x</sub>, PM et benzène mesurées soit sur le même site de mesure que celui des HAP, soit sur un site à proximité et présentant une typologie identique.

Il est inutile de chercher à faire correspondre sur la même ligne les dates de mesurage de ces autres polluants ciblés avec celles des HAP. De même, il est inutile de chercher à faire correspondre sur une même ligne les dates de mesurage des NO<sub>x</sub>/PM avec celles du benzène.

Les unités de concentration choisies dans le fichier Excel peuvent être changées. Dans ce cas, m'en informer par e-mail lors du renvoi du fichier complété.

En ce qui concerne les données de température, celles-ci doivent également correspondre à celles du site HAP. Si les températures n'ont pas été mesurées, ne rien indiquer.

Concentration en HAP (ng/m <sup>3</sup> ) : HAP de la directive + autres HAP disponibles												
Date (jj/mm/aa)	Heure début	Heure fin	B(a)P	B(a)A	B(b)F	B(j)F	B(k)F	Db(a,h)A	IP	Autre	Autre	Autre

Figure A1 : Volet de report des données pour les HAP

Autres polluants (NOx, Particules et Benzène)							Autre paramètre		
Date (jj/mm/aa)	NO (µg/m <sup>3</sup> )	NO <sub>2</sub> (µg/m <sup>3</sup> )	Date (jj/mm/aa)	PM <sub>10</sub> (µg/m <sup>3</sup> )	PM <sub>2.5</sub> (µg/m <sup>3</sup> )	Date (jj/mm/aa)	Benzène (µg/m <sup>3</sup> )	Date (jj/mm/aa)	T° ext. (°C)

Figure A2 : Volet de report des données pour les autres paramètres (particules, NO<sub>x</sub>, benzène et température ambiante)

## **ANNEXE 2**

---

Cartographies et statistiques descriptives pour les concentrations atmosphériques moyennes du B[a]P et B[a]P /  $\Sigma_7$ HAP pour l'intersaison de l'année 2010

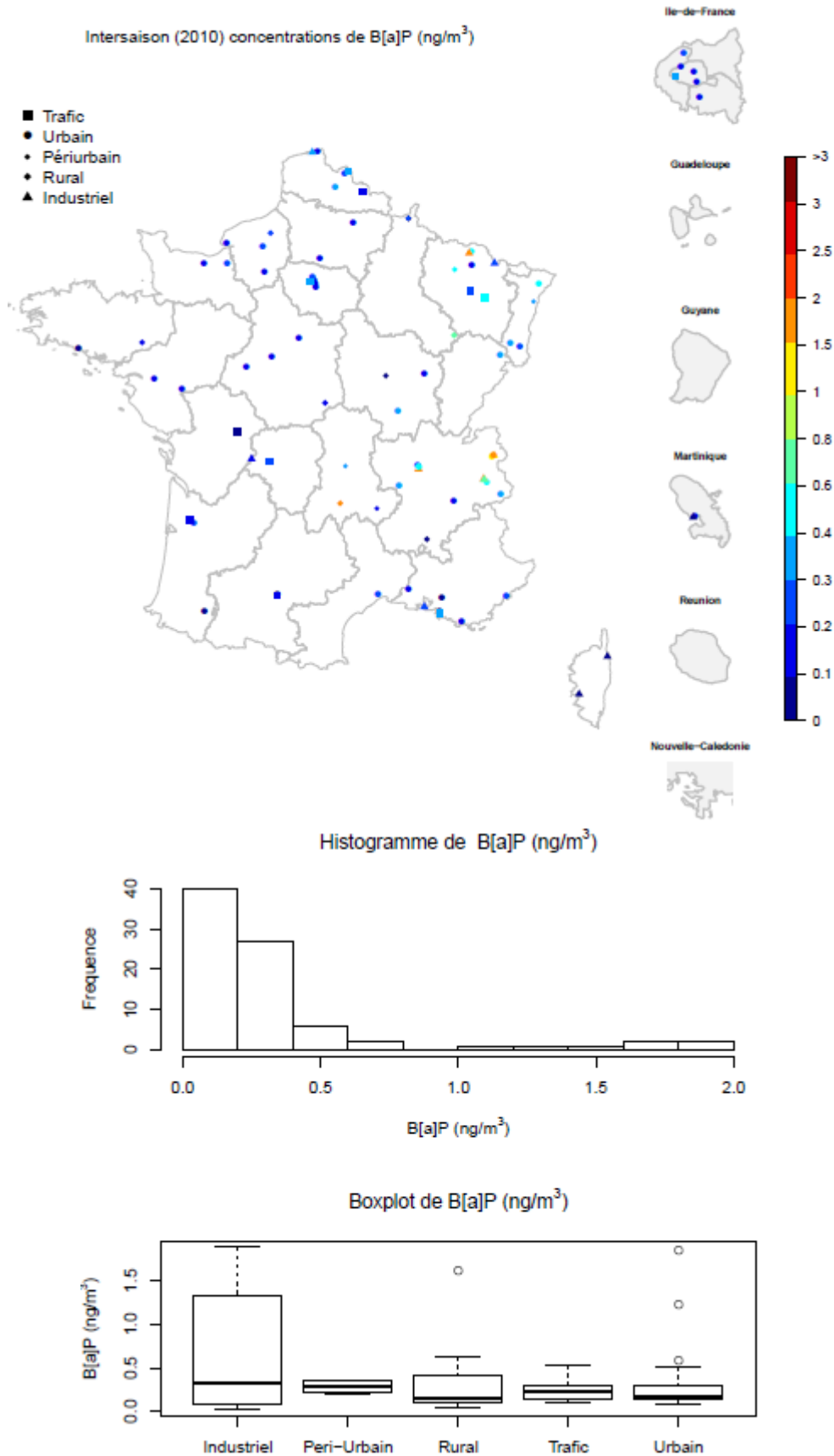


Figure A4 : Cartographie et statistiques descriptives du B[a]P /  $\Sigma_7$ HAP (Intersaison, 2010).

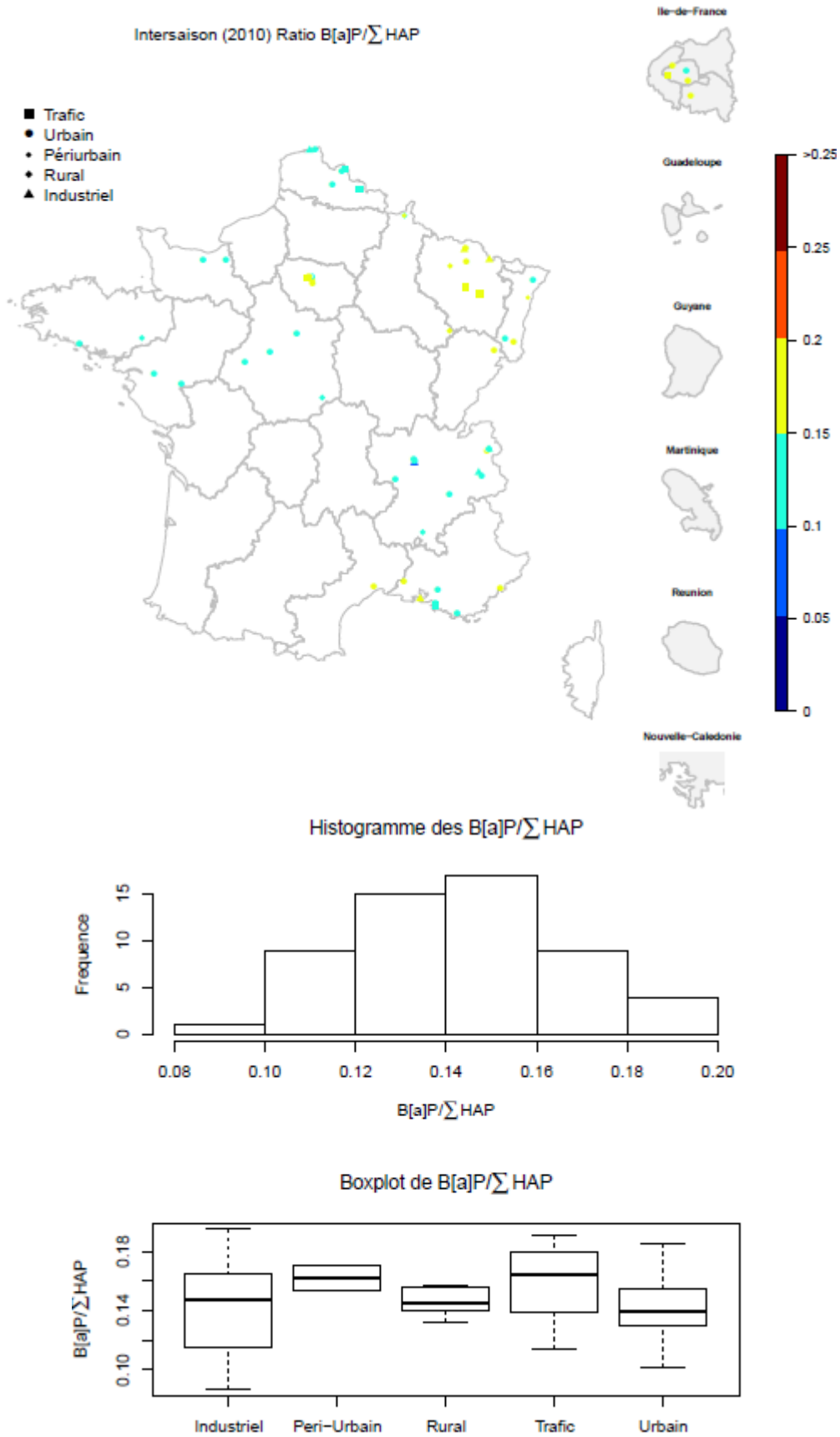


Figure A5 : Cartographie et statistiques descriptives des ratios moyens  $B[a]P / \sum HAP$  (Intersaison, 2010).

## **ANNEXE 3**

---

Cartographies et statistiques descriptives pour les concentrations atmosphériques moyennes annuelles du B[a]P et B[a]P /  $\Sigma_7$ HAP de l'année 2010 (avec codes qualités a et b uniquement)



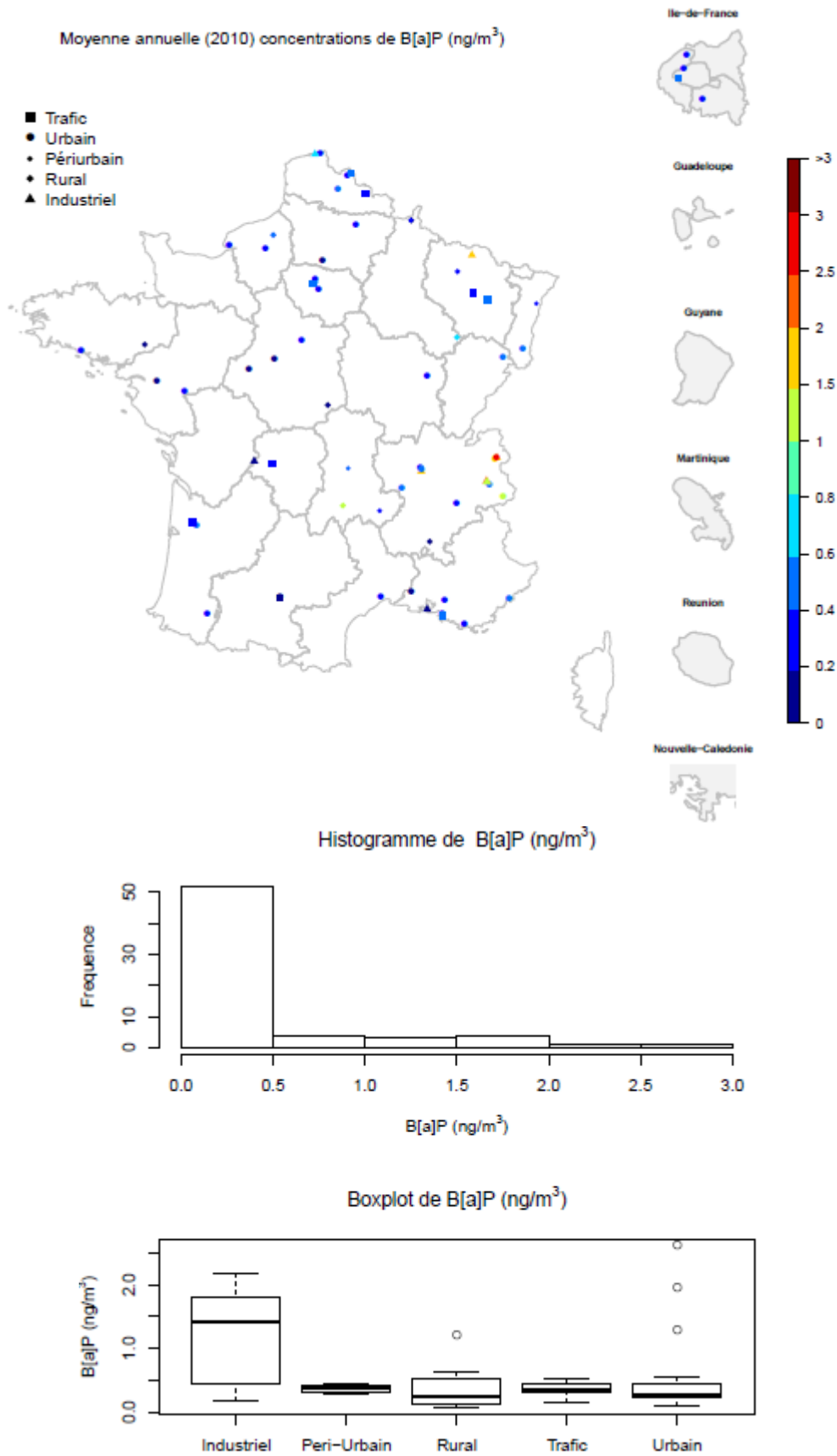


Figure A6 : Cartographie et statistiques descriptives des concentrations atmosphériques moyennes annuelles en B[a]P (2010).

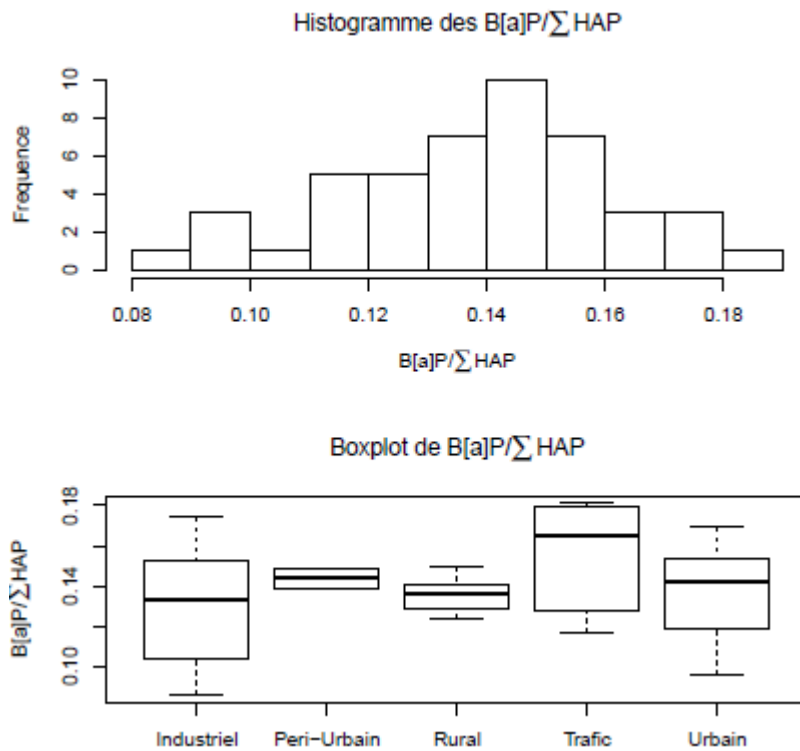
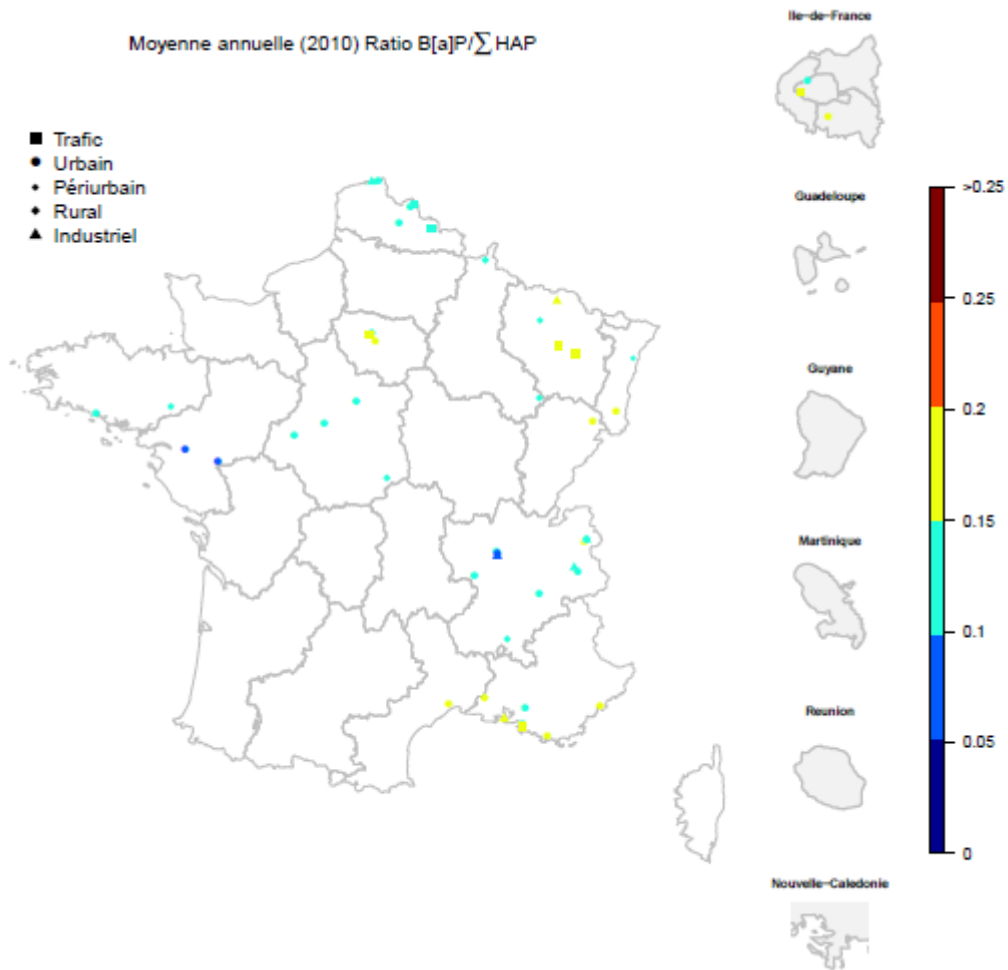


Figure A7 : Cartographie et statistiques descriptives des ratios moyens annuels  $B[a]P / \sum_7 HAP$  (2010).

## **ANNEXE 4**

---

Cartographies nationales du B[a]P vis-à-vis des seuils  
d'évaluation supérieurs et inférieurs pour les années 2008,  
2009 et 2010

Situation des sites par rapport aux seuils d'évaluation (2008)

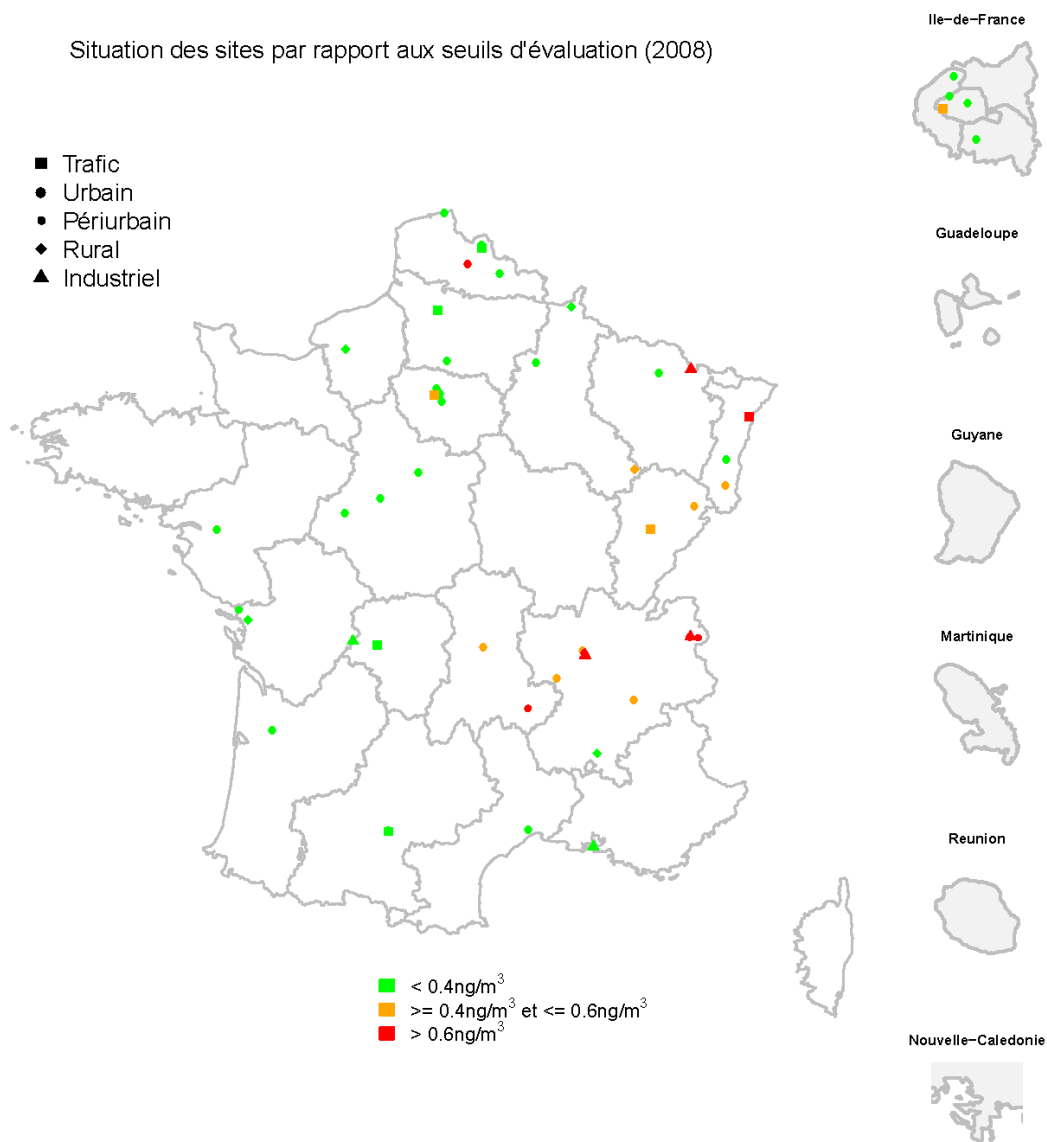


Figure A8 : Cartographies nationales du B[a]P vis-à-vis des seuils d'évaluation supérieurs et inférieurs (2008).

Situation des sites par rapport aux seuils d'évaluation (2009)

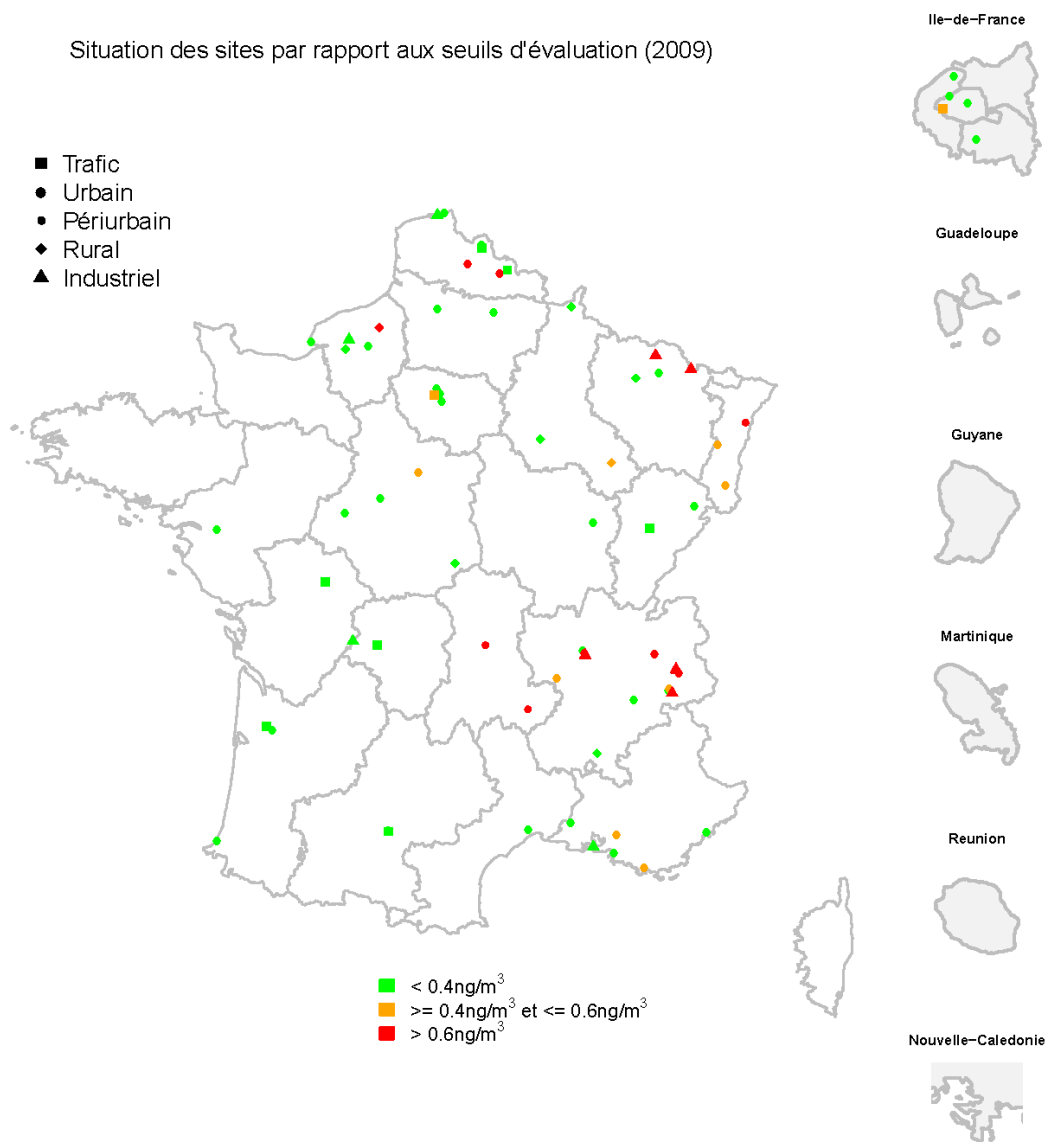


Figure A9 : Cartographies nationales du B[a]P vis-à-vis des seuils d'évaluation supérieurs et inférieurs (2009).

Situation des sites par rapport aux seuils d'évaluation (2010)

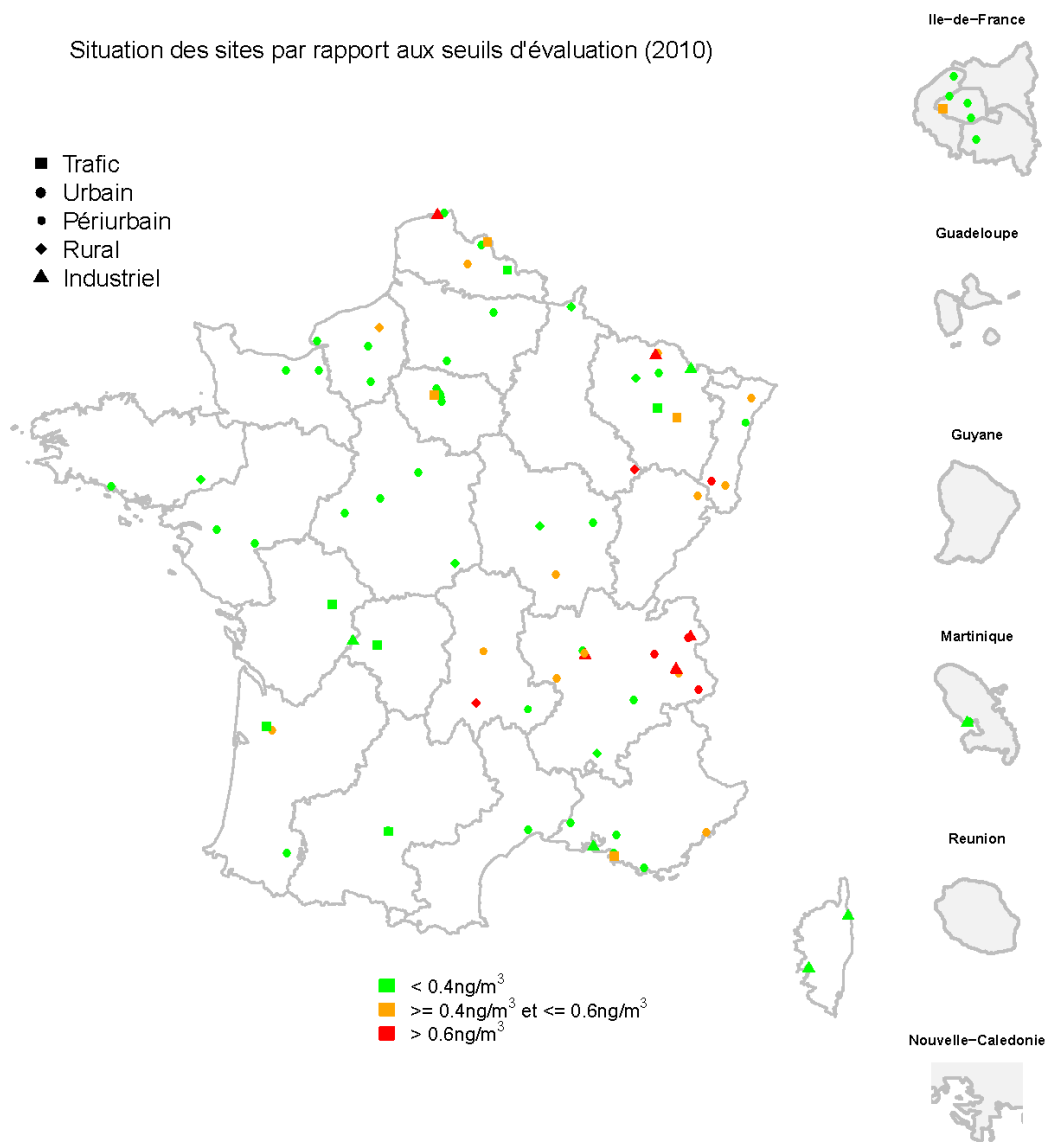


Figure A10 : Cartographies nationales du B[a]P vis-à-vis des seuils d'évaluation supérieurs et inférieurs (2010).