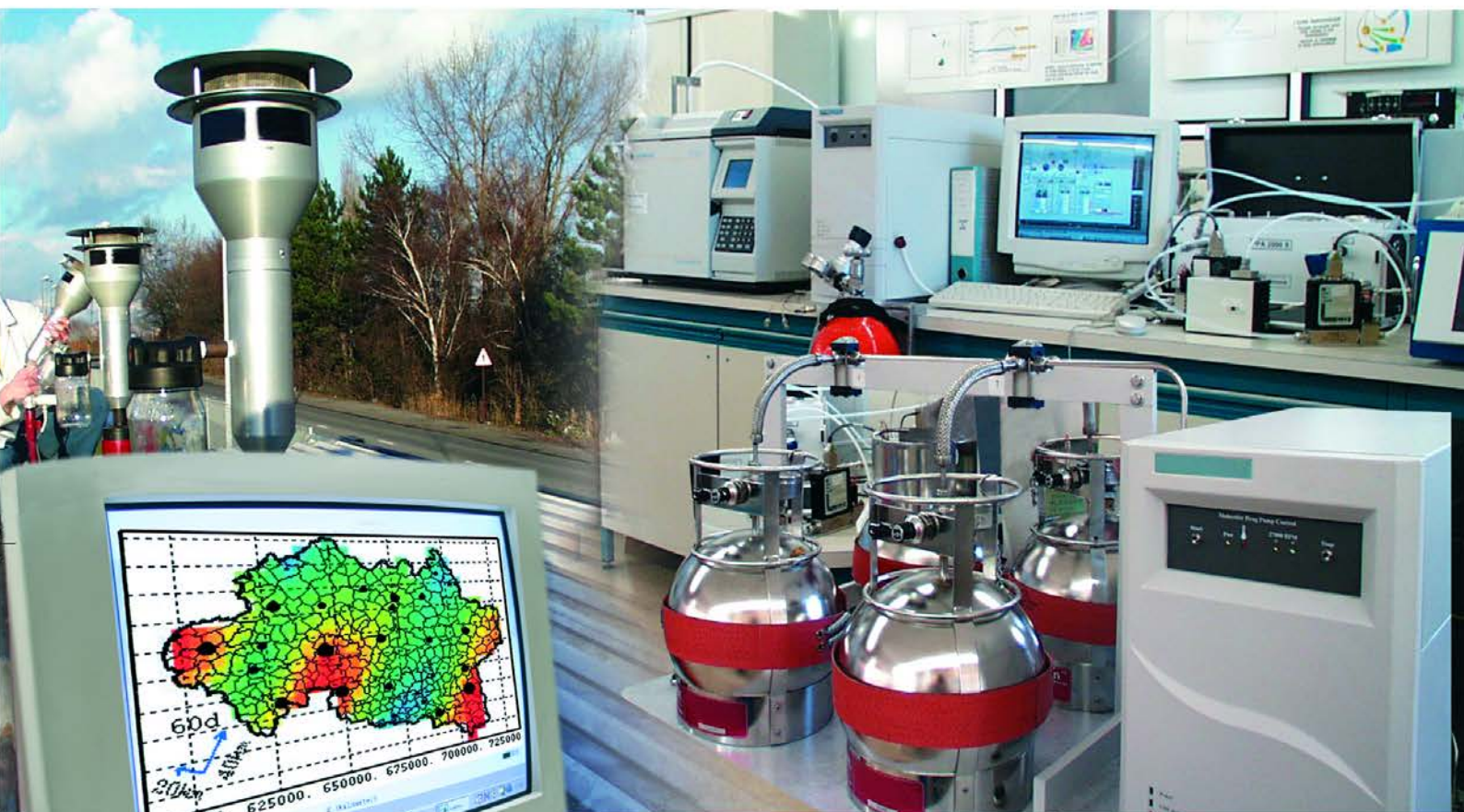




Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air



Surveillance des HAP

**Contributions et corrélations des HAP avec les PM :
cartographie nationale (France) et tendances sur le long
terme**

Programme 2013

Alexandre Albinet - Maxime Beauchamp





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, sous la coordination technique de l'ADEME et en concertation avec les Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA). Ces travaux en matière de pollution atmosphérique supportés financièrement par la Direction Générale de l'Energie et du Climat du Ministère de l'Ecologie, de l'Energie, du Développement durable et de la Mer 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 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.



Contributions et corrélations des HAP avec les PM : Cartographie nationale (France) et tendances sur le long terme

Laboratoire Central de Surveillance
de la Qualité de l'Air

Surveillance des HAP

2013

Alexandre Albinet - Maxime Beauchamp

Ce document comporte 42 pages (hors couverture et annexes)


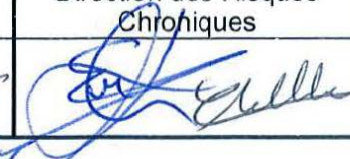
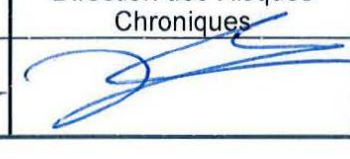
	Rédaction	Vérification	Approbation
NOM	A. Albinet M. Beauchamp	E. Leoz L. Malherbe	N. Alsac
Qualité	Ingénieurs Direction des Risques Chroniques	Responsable unité CIME et Ingénieur unité MOCA Direction des Risques Chroniques	Responsable du pôle CARA Direction des Risques Chroniques
Visa			

TABLE DES MATIÈRES

RESUME	9
REMERCIEMENTS	10
1. ABREVIATIONS	11
2. CONTEXTE ET OBJECTIFS	12
2.1 Données et exploitation.....	13
2.2 Variables numériques considérées	13
3. CARTOGRAPHIES NATIONALES DE 2008 A 2010	13
3.1 B[a]P/PM	14
3.2 B[a]P vs PM	27
4. TENDANCES TEMPORELLES SUR LE LONG TERME	32
4.1 Ile de France	34
4.2 Rhône-Alpes	36
4.3 Nord-Pas-de-Calais.....	39
5. CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES	42
6. REFERENCES	44

RESUME

Cette étude a permis d'établir les cartographies de 2008 à 2010 de la contribution des HAP aux PM (PM_{10} et $PM_{2.5}$). Bien qu'il ne s'agisse pas d'une exigence réglementaire, on observe de nombreuses zones « blanches » quant à une surveillance combinée des HAP et PM, et notamment des $PM_{2.5}$, alors qu'elle serait d'un intérêt majeur en termes d'évaluation de l'impact sanitaire des particules. En effet, même si les concentrations en particules sont a priori faibles, leur composition chimique (par exemple, la concentration en HAP) peut avoir un rôle déterminant dans leur potentiel toxique.

Les contributions des HAP aux PM les plus fortes sont globalement observées sur les sites industriels et sont similaires pour les autres typologies de sites (urbains, trafics, ruraux, périurbains). Les ratios $B[a]P/PM_{10}$ et $B[a]P/PM_{2.5}$ les plus importants sont observés notamment en Rhône-Alpes tous types de sites confondus. Les variations des contributions hivernales et estivales sont moins marquées sur les sites industriels et trafic, et plus importantes sur les sites urbains, ruraux et périurbains. Ces résultats mettent en avant l'influence importante de la source résidentielle liée au chauffage, et en particulier au chauffage au bois, sur la contribution des HAP aux PM et donc sur la toxicité des PM en hiver.

Si les corrélations des concentrations en HAP et des PM sont évidentes sur les sites trafic (notamment avec les $PM_{2.5}$) ($r^2 > 0,7$), montrant que la source majoritaire des HAP particuliers semble essentiellement liée au trafic sur ces sites, elles sont un peu plus faibles sur les sites urbains, ruraux et périurbains ($0,4 < r^2 < 0,9$), et très peu significatives ($r^2 < 0,4$) sur les sites industriels. Ces résultats montrent que les concentrations en HAP sur les sites industriels pris en compte dans cette étude n'ont pas de lien direct avec les concentrations massiques en particules sur ces sites. Les particules émises par les industries, relatives à cette étude, sont par contre potentiellement fortement toxiques en lien avec les fortes contributions des HAP aux PM observées.

L'étude des tendances à long terme montre une évolution significative à la baisse (-30 à -50 %) de la contribution du $B[a]P$ aux PM_{10} sur les deux sites urbains du Nord Pas de Calais depuis 6 à 8 ans, sur 2 des 3 sites urbains de Rhône-Alpes (Grenoble-Les Frênes et Lyon Centre, 5 à 6 ans) et sur seulement 1 seul des 4 sites urbains de l'Île-de-France (Vitry sur Seine, 8 ans). Sur le site trafic de l'Île de France (Périphérique Auteuil) cette tendance est aussi clairement à la baisse (-50 % entre 1998 et 2010). Comme pour les sites urbains de Rhône-Alpes et d'Île-de-France pour lesquels aucune évolution significative n'est mise en évidence, la contribution des HAP aux PM sur un site industriel en Rhône-Alpes (Vénissieux Village) est restée constante sur ces 5 ou 12 années (selon les sites, données de 1998 à 2010). Ces résultats montrent que même si les émissions globales de HAP ont continué à diminuer en France sur ces 12 dernières années, leur contribution à la masse des particules sur la moitié des sites retenus pour cette étude, a peu évolué. Le potentiel toxique (cancérogène) des particules lié aux HAP n'a pas évolué mais surtout il n'a pas baissé malgré la mise en place des politiques de gestion de qualité de l'air et les avancées technologiques des processus et traitements des combustions ayant eu lieu dans le même temps.

REMERCIEMENTS

Le LCSQA tient à remercier l'ensemble des AASQA pour leur participation, notamment pour le transfert de leurs données de mesures de HAP et autres polluants qui ont permis de réaliser 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

La surveillance dans l'air ambiant des HAP (hydrocarbures aromatiques polycycliques), composés toxiques émis lors des processus de combustions incomplets (IARC, 2010; Ravindra et al., 2008), a été rendue obligatoire lors de la mise en place de la IV^{ème} directive fille (2004/107/CE) (European Official Journal, 2005) promulguée le 15 décembre 2004. Les différents états membres européens avaient jusqu'au 15 février 2007 pour mettre en place 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 a priori disponibles pour chacune des AASQA (associations agréées de surveillance de la qualité de l'air).

L'objectif général de cette étude est de caractériser les variations spatiales et temporelles des concentrations en HAP à l'échelle nationale (France métropolitaine et DOM-TOM) mais aussi d'évaluer les liens pouvant exister avec d'autres paramètres et polluants : particules (PM₁₀ et PM_{2,5}), NO_x, benzène et température ambiante.

La première partie de cette étude (Albinet et al., 2012) avait permis de collecter et d'effectuer un premier traitement statistique des données mises à disposition par les AASQA. 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 / Σ_7 HAP) avait été étudiée. Pour les jeux de données les plus riches (nombre d'années de surveillance disponibles supérieur à 5), une étude de tendance avait également 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/ Σ_7 HAP).

Ce rapport présente les résultats de l'étude des liens entre les HAP et la matière particulaire (PM₁₀ et PM_{2,5}). La caractérisation des variations spatiales et temporelles de la contribution des HAP (B[a]P) aux PM (rapport B[a]P/PM₁₀ ou B[a]P/PM_{2,5}) et les corrélations entre les niveaux de concentrations des HAP et des PM sont présentées. A l'instar de la première partie de cette étude, pour les jeux de données les plus riches, l'étude des tendances et évolutions sur le long terme de la contribution du B[a]P au PM a été réalisée.

A notre connaissance ce type d'analyse en lien avec les PM et notamment l'étude des tendances à long terme n'a jamais été rapportée dans la littérature. Cette étude a donc un caractère novateur certain afin d'évaluer la répartition géographique, l'évolution saisonnière et temporelle à long terme de la toxicité des particules en lien avec leur contenu en HAP et notamment en B[a]P (classé cancérigène pour l'homme) et selon la typologie du site d'étude.

2.1 DONNEES ET EXPLOITATION

Les données de 26 AASQA étaient disponibles et ont permis 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.

Les traitements informatiques des données 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. Pour rappel, la saison froide a été définie comme l'union des mois de janvier, février, novembre et décembre ; la saison chaude comme celle des mois de mai, juin, juillet et août ; et l'intersaison comme celle des 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.

La description complète du jeu de données disponible et du traitement et agrégation des données est décrite dans la première partie de cette étude (Albinet et al., 2012).

Il convient de noter qu'une grande partie du travail relatif à la deuxième phase de cette étude a consisté tout d'abord à une remise en forme totale de la base de données collectée. Ce travail de fond a été essentiel afin de permettre le traitement statistique automatique des données et une analyse plus approfondie des résultats.

2.2 VARIABLES NUMERIQUES CONSIDEREES

Dans ce rapport les variables numériques considérées pour le traitement statistique des données sont les suivantes :

- Contribution du B[a]P aux PM : $B[a]P/PM_{10}$ et $B[a]P/PM_{2.5}$
- Corrélation du B[a]P avec les PM : $R^2 B[a]P$ vs PM_{10} ou $R^2 B[a]P$ vs $PM_{2.5}$

3. CARTOGRAPHIES NATIONALES DE 2008 A 2010

Les cartographies nationales des contributions du B[a]P aux PM et des corrélations B[a]P vs PM 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. Egalement, seuls les résultats obtenus pour les ratios B[a]/PM sont présentés compte tenu du fait que la quantité Σ_7 HAP n'est pas mesurée dans tout le territoire et que les données disponibles sur le mélange des 7 HAP sont en conséquence moins nombreuses que pour le BaP (Albinet et al., 2012).

On peut toutefois noter que lorsque les données sont disponibles, les résultats observés (cartographies) pour les ratios B[a]P/PM sont cohérents avec ceux obtenus pour Σ_7 HAP/PM.

3.1 B[A]P/PM

La cartographie nationale et les statistiques descriptives associées (fréquence d'observation et boîtes à moustaches) des contributions moyennes annuelles pour 2010 du B[a]P aux PM₁₀ (B[a]P/PM₁₀) sont présentées sur la Figure 1. La couverture spatiale du territoire est assez homogène montrant que globalement la surveillance des HAP est accompagnée d'une surveillance des particules (n = 58 sites en 2010). Il reste néanmoins des zones « blanches » (ou peu renseignées) qui sont non instrumentées pour la mesure des HAP ou parce qu'une surveillance combinée HAP et PM n'est pas mise en œuvre (régions Auvergne, Champagne-Ardenne, Poitou-Charentes, Midi-Pyrénées, Languedoc-Roussillon, Franche-Comté, Alsace). Bien qu'elle ne soit pas exigée, cette double surveillance est pourtant d'un intérêt majeur en termes d'évaluation de l'impact sanitaire des particules. En effet, même si les concentrations en particules sont a priori faibles, leur composition chimique (par exemple, la concentration en HAP) peut avoir un rôle déterminant dans leur potentiel toxique.

La majorité des sites (n = 52, toutes typologies confondues) présente des ratios moyens annuels B[a]P/PM₁₀ de l'ordre de 0.02 ‰. A l'instar des concentrations en B[a]P, les plus fortes contributions du B[a]P aux PM₁₀ (≥ 0.06 ‰) sont observées en région Rhône-Alpes (Savoie, Haute-Savoie et Rhône) sur 3 sites industriels et 3 sites urbains.

La Figure 2 permet d'évaluer les tendances d'évolution du ratio moyen annuel B[a]P/PM₁₀ à l'échelle nationale de 2008 à 2010 selon la typologie des sites. Les contributions d'une année sur l'autre sont sensiblement équivalentes quelle que soit la typologie des sites considérée. Les ratios B[a]P/PM₁₀ pour les sites urbains, trafics et ruraux sont proches et de l'ordre de 0.01 à 0.02 ‰. Seuls 2-3 sites urbains situés en Savoie et Haute Savoie présentent régulièrement des valeurs exceptionnelles avec des contributions significativement plus élevées (≥ 0.05 ‰). Les sites industriels présentent de loin les ratios moyens annuels B[a]P/PM₁₀ les plus forts mais aussi les plus variables d'un site à l'autre.

Il est enfin important de noter que les contributions moyennes annuelles en B[a]P aux PM₁₀ sont peu renseignées sur les sites péri-urbains alors que les seules données disponibles (en 2008) montrent des contributions plus importantes que sur les autres types de sites. Cette observation rejoint celle faite sur le manque de mesures des HAP sur cette typologie de site alors que les concentrations sont a priori plus fortes (Albinet et al., 2012) et comme cela est constaté ici, le potentiel toxique des particules est probablement plus important.

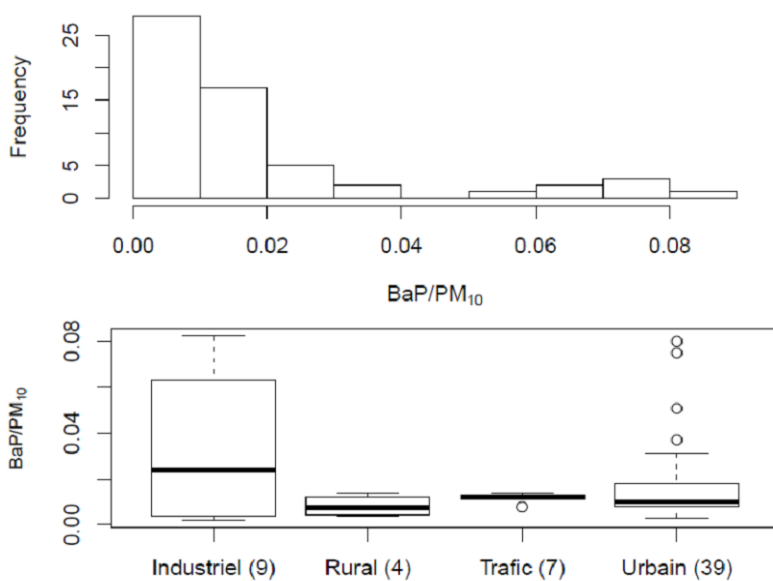
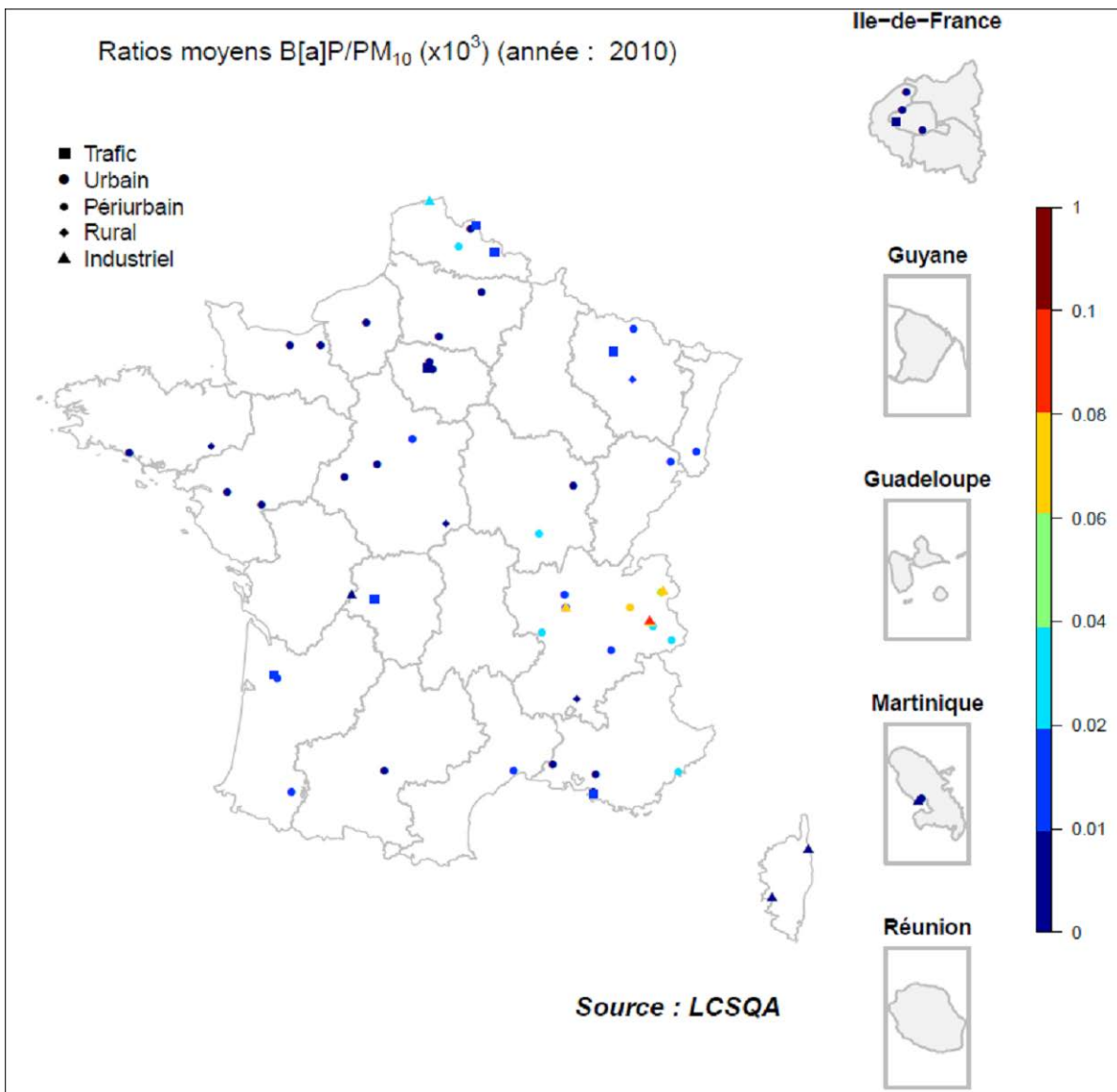


Figure 1 : Cartographie et statistiques descriptives des rapports moyens annuels B[a]P/PM₁₀ (2010) (en %).

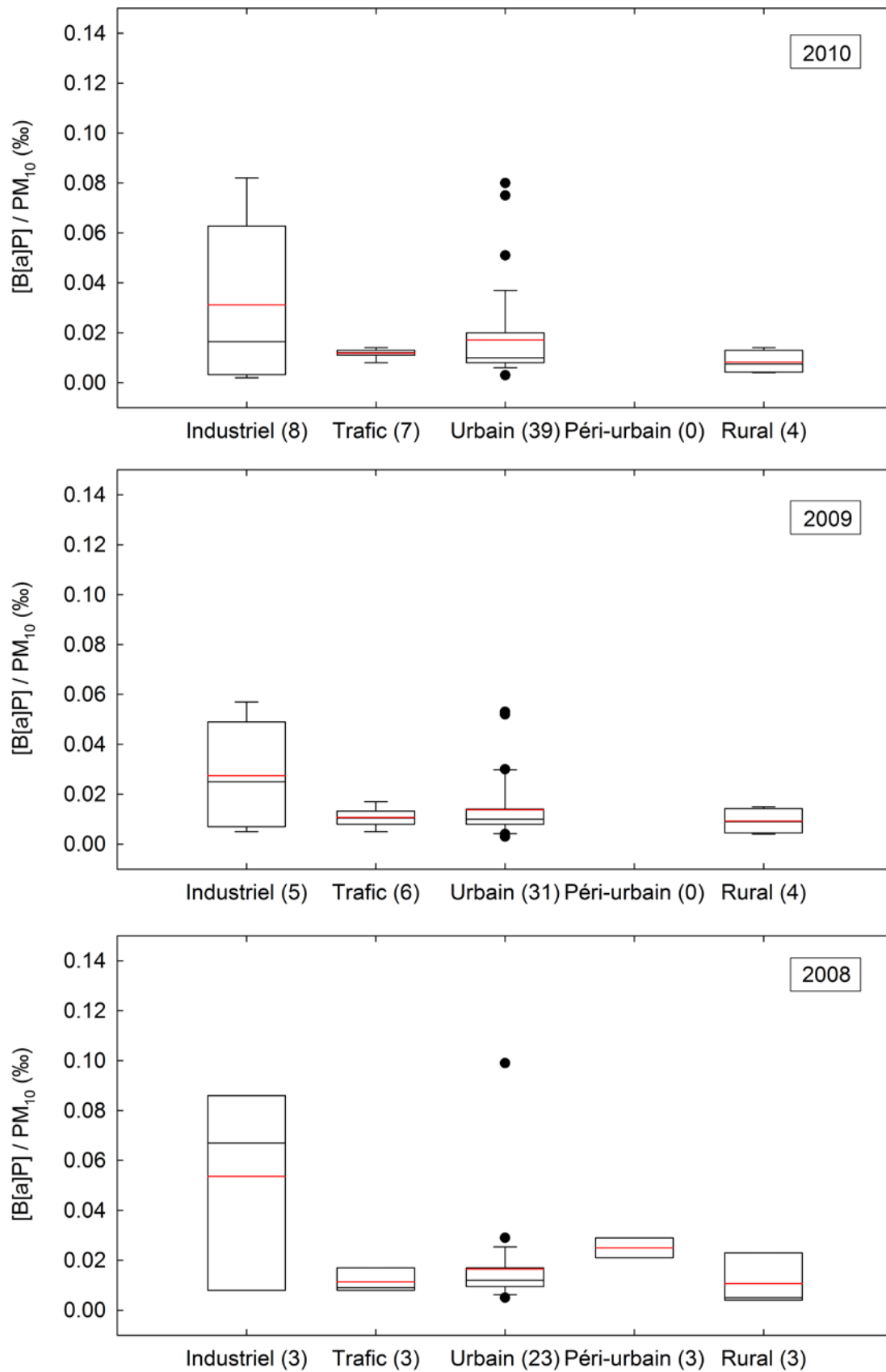


Figure 2 : Boîtes à moustaches des rapports moyens annuels $B[a]P/PM_{10}$ selon la typologie du site de prélèvements pour les années 2008, 2009 et 2010 (nombre de sites). Le trait en rouge représente la valeur moyenne.

Les Figures 3 et 4 présentent les cartographies des ratios moyens B[a]P/PM₁₀ observées respectivement en saison chaude et froide.

En saison chaude, les contributions du B[a]P aux PM₁₀ sont très faibles (≤ 0.01 ‰) sur la grande majorité de sites ($n = 50$). Les valeurs des ratios B[a]P/PM₁₀ sont similaires entre les différentes typologies de sites. Seuls les sites industriels présentent des contributions en B[a]P aux PM₁₀ significativement plus importantes (de l'ordre de 0.04 ‰ en valeur médiane). Enfin, 2 sites urbains localisés en Savoie et Haute-Savoie présentent des ratios exceptionnellement forts (> 0.07 ‰) à l'instar de leurs contributions moyennes annuelles en B[a]P aux PM₁₀ et de leurs concentrations en B[a]P très importantes (Albinet et al., 2012).

En saison froide, les valeurs médianes des contributions du B[a]P aux PM₁₀ sont 2 à 3 fois plus importantes qu'en saison chaude et sont de l'ordre de 0.02 à 0.03 ‰ en valeur médiane et ceci quelle que soit la typologie de site considérée. Sur les 58 sites instrumentés, environ 31 présentent des ratios B[a]P/PM₁₀ moyens supérieurs à 0.02 ‰. Plus d'une quinzaine de sites ont des ratios moyens supérieurs à 0.04 ‰. Les mêmes 2 sites urbains identifiés en saison chaude et localisés en Savoie et Haute-Savoie présentent des ratios exceptionnels ≥ 0.1 ‰ mettant en évidence un problème majeur et récurrent (Figure 2) de potentiel toxique des particules sur ces deux zones en lien avec leur composition chimique.

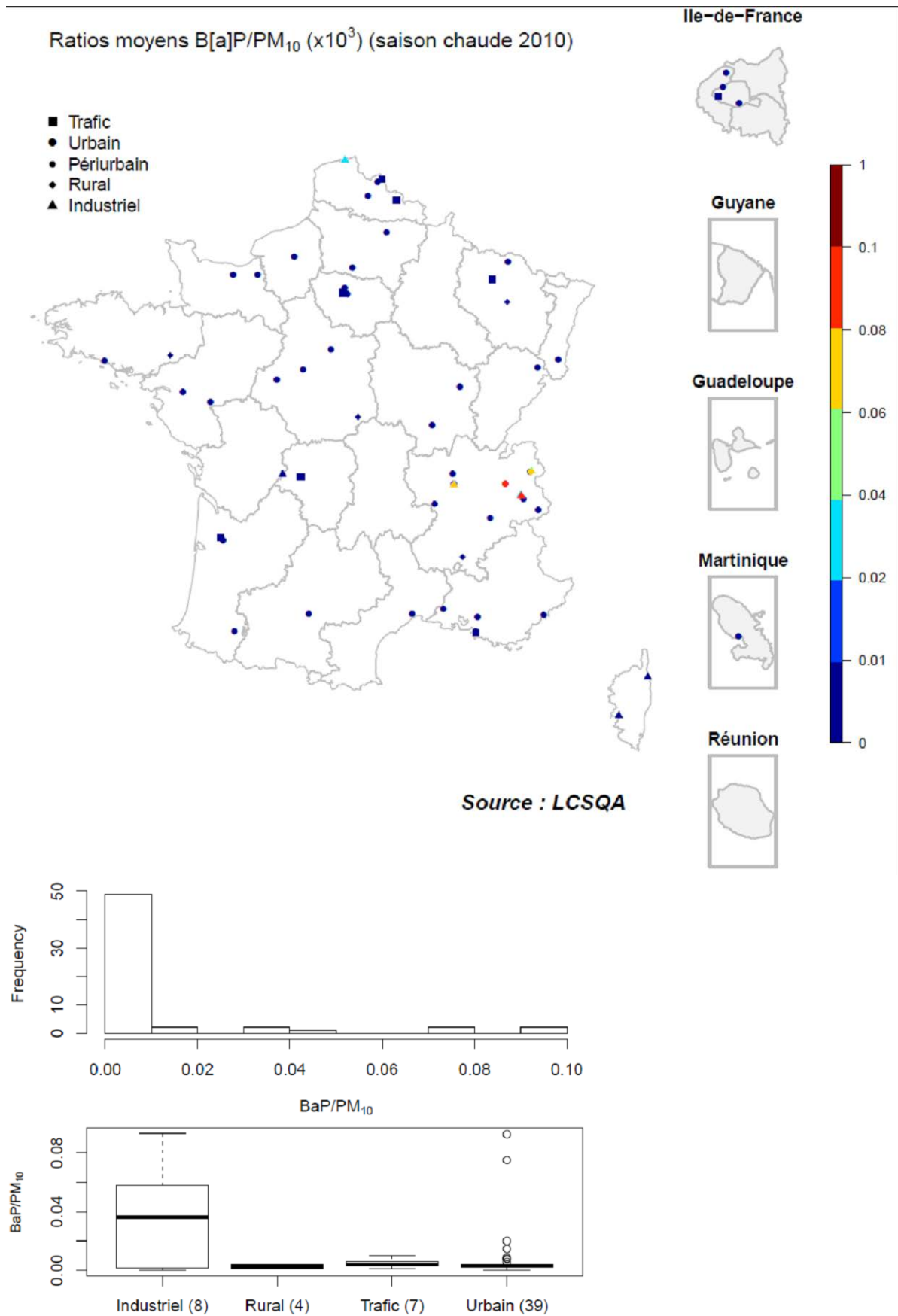


Figure 3 : Cartographie et statistiques descriptives des rapports moyens annuels B[a]P/PM₁₀ - Saison chaude (2010) (en ‰).

Ratios moyens B[a]P/PM₁₀ (x10³) (saison froide 2010)

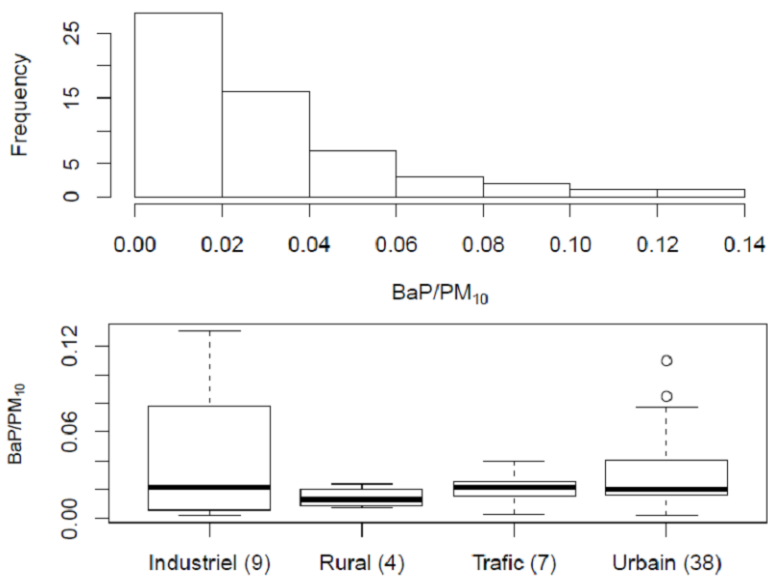
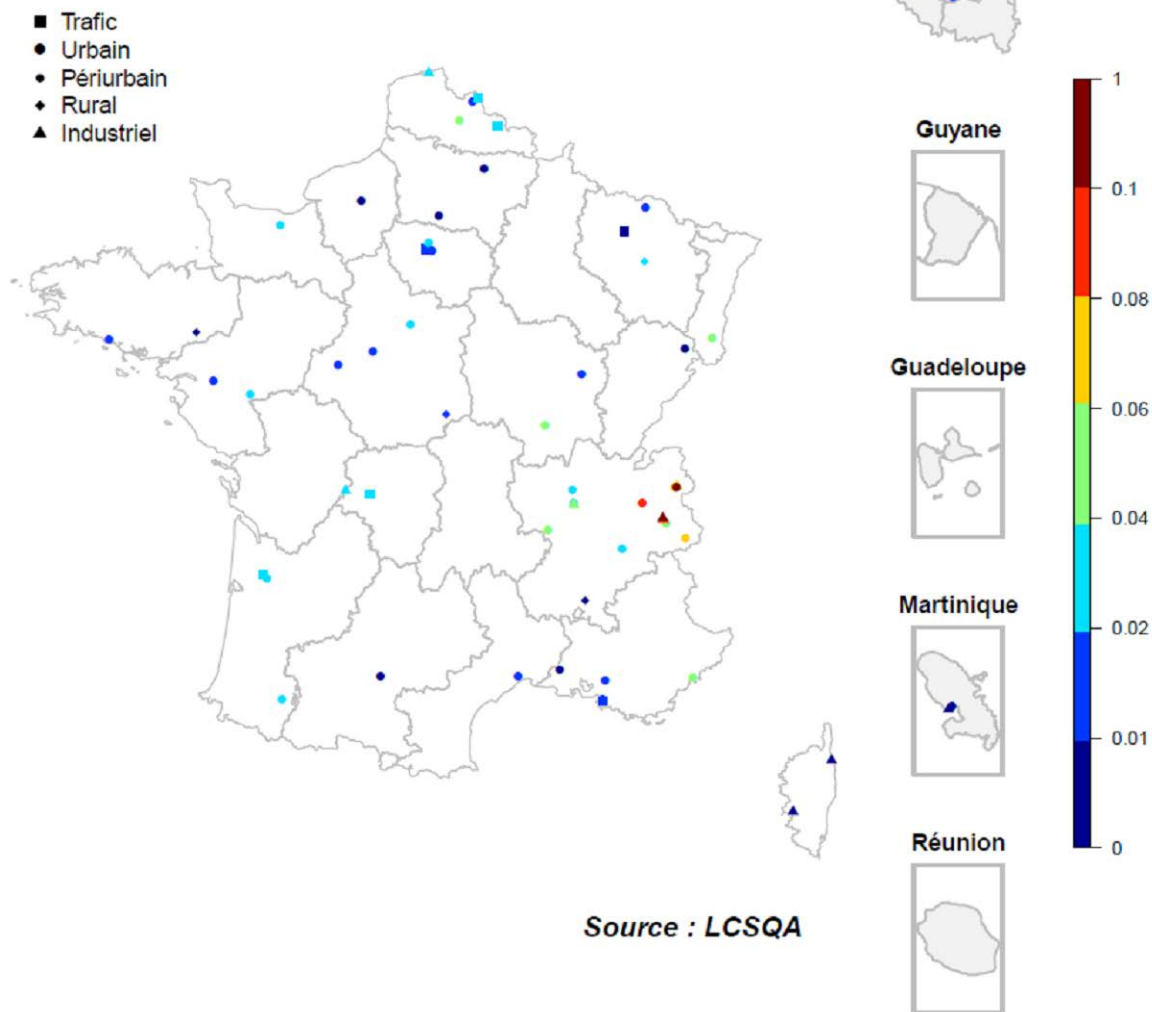


Figure 4 : Cartographie et statistiques descriptives des rapports moyens annuels B[a]P/PM₁₀ - Saison froide (2010) (en %).

Afin de mieux appréhender l'impact saisonnier sur la contribution en B[a]P aux PM_{10} , il est intéressant d'examiner le rapport des contributions moyennes B[a]P/ PM_{10} entre les saisons froide et chaude et ceci, selon la typologie du site instrumenté et selon l'année (Figure 5).

En saison froide, les contributions en B[a]P aux PM_{10} sont environ 5 à 10 fois plus importantes qu'en saison chaude. La photochimie moins importante, et donc la dégradation du B[a]P dans l'atmosphère, les conditions météorologiques particulières (inversions thermiques) et les sources additionnelles de HAP comme le chauffage résidentiel présentes en saison froide peuvent expliquer ces différences saisonnières. Il est intéressant de noter que les rapports saisonniers sont plus importants sur les sites urbains, périurbains et ruraux que sur les sites trafic, et dans une moindre mesure, industriels. Sur ces sites, le chauffage résidentiel explique certainement les concentrations plus importantes en B[a]P observées en hiver. De plus, des sources de combustions fortement émettrices de HAP et émettrices préférentiellement de particules fines ($< 1 \mu m$) telle que la combustion de biomasse (chauffage résidentiel au bois) contribuent certainement de façon majoritaire aux concentrations en HAP particulières en période hivernale. Ainsi, les rapports saisonniers sont plus importants sur ces typologies de sites pour lesquelles la contribution de chauffage au bois est à priori importante. Les valeurs exceptionnelles observées pour la typologie urbaine correspondent une nouvelle fois aux sites localisés dans les vallées alpines de la Savoie et Haute-Savoie pour lesquelles l'usage du bois en tant que chauffage principal est commun et les inversions thermiques, et donc l'accumulation de polluants en fond de vallée, sont fréquentes en période hivernale (Albinet et al., 2006; Albinet et al., 2008a; Marchand et al., 2004).

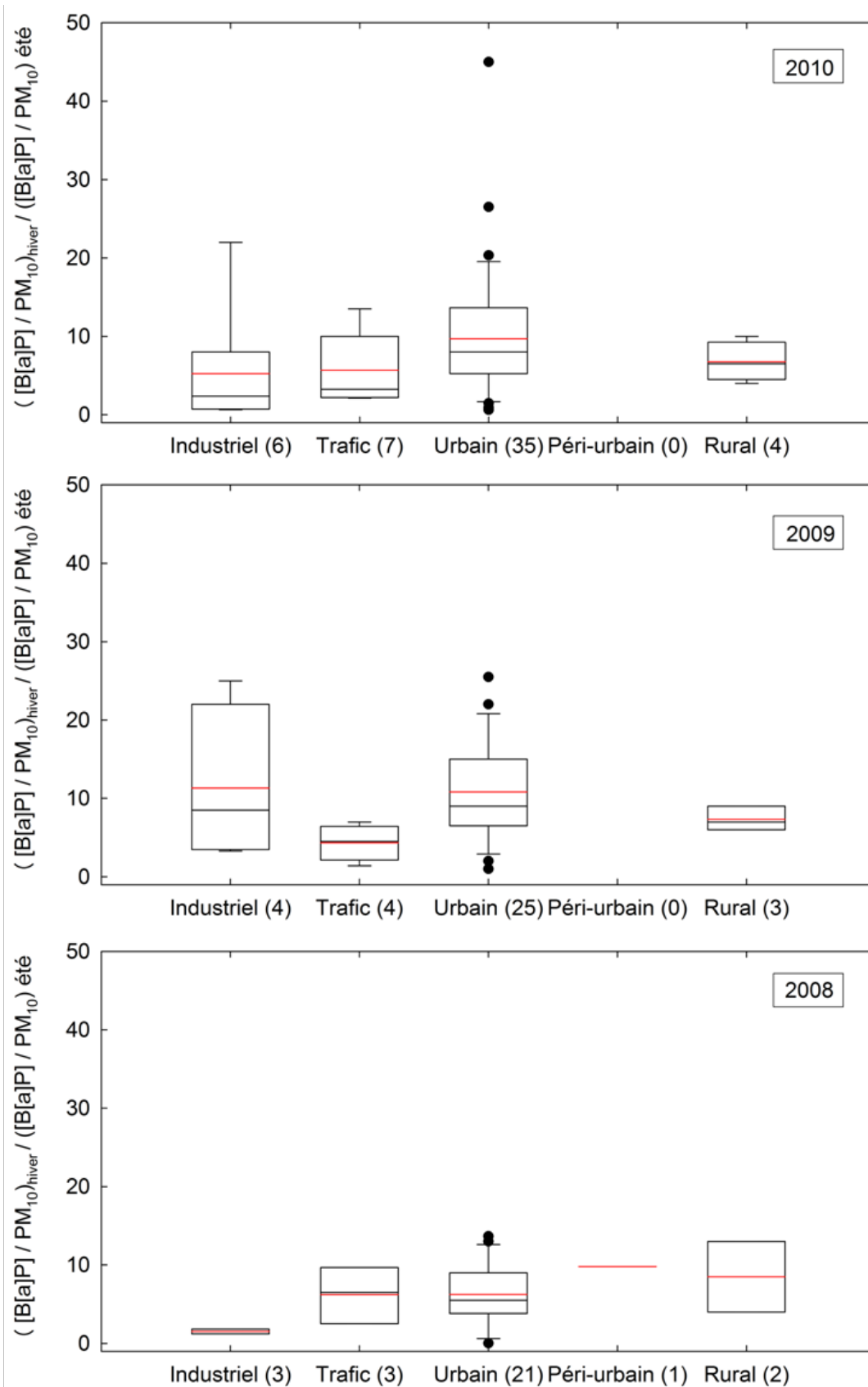


Figure 5 : Boîtes à moustaches des rapports moyens saison froide/saison chaude de B[a]P/PM₁₀ pour 2008, 2009 et 2010 (nombre de sites). Le trait en rouge représente la valeur moyenne.

La Figure 6 présente la cartographie nationale et les statistiques descriptives associées des contributions moyennes annuelles pour 2010 du B[a]P aux PM_{2.5} (B[a]P/PM_{2.5}).

Globalement, la co-localisation de la mesure de HAP et des PM_{2.5} est assez faible en France (n = 38 sites en 2010). La couverture spatiale du territoire est donc limitée et répartie de façon inégale sur l'ensemble du territoire. Une fois de plus, et bien que cette surveillance conjointe des HAP et des PM_{2.5} ne constitue pas une obligation réglementaire, de nombreuses zones « blanches », et notamment tout le grand Ouest, peuvent être mises en évidence. Si cette double surveillance est d'un intérêt majeur en termes d'évaluation de l'impact sanitaire des particules en général, elle est d'autant plus importante quand il s'agit des PM_{2.5} car les HAP, composés toxiques, sont essentiellement associés à la fraction la plus fine des particules (Dp < 1 µm) (Albinet et al., 2008b).

Les ratios moyens annuels B[a]P/PM_{2.5} inférieurs sont de l'ordre de 0.01 à 0.03 ‰. Les plus fortes contributions du B[a]P aux PM_{2.5} (≥ 0.10 ‰) sont observées en région Rhône-Alpes (Savoie, Haute-Savoie et Rhône) sur 2 sites industriels et 1 site urbain.

La Figure 7 permet d'appréhender les tendances d'évolution du ratio moyen annuel B[a]P/PM_{2.5} à l'échelle nationale de 2008 à 2010 selon la typologie des sites. Les contributions d'une année sur l'autre sont sensiblement équivalentes quelle que soit la typologie des sites considérée. Les ratios B[a]P/PM_{2.5} pour les sites urbains, trafic et ruraux sont proches et de l'ordre de 0.01 à 0.02 ‰. Seuls 1 à 2 sites urbains par an, localisés en Savoie et Haute Savoie, présentent des valeurs exceptionnelles avec des contributions significativement plus élevées (≥ 0.04 ‰). Les ratios moyens annuels B[a]P/PM_{2.5} les plus forts sont systématiquement observés sur les sites industriels (≈ 0.10 ‰).

Il est intéressant de noter que comparativement aux contributions des HAP aux PM₁₀, les contributions des HAP aux PM_{2.5} pour les sites industriels (de 0.03 à 0.10 ‰) sont bien plus élevées que celles observées pour les autres typologies. Ainsi, il semblerait que ces sites sont probablement peu émetteurs de PM, et notamment de PM_{2.5} et de particules ultrafines PM₁ (CITEPA, 2014) avec lesquelles sont majoritairement associés les HAP (Albinet et al., 2008b), mais que leur teneur en HAP est bien plus importante.

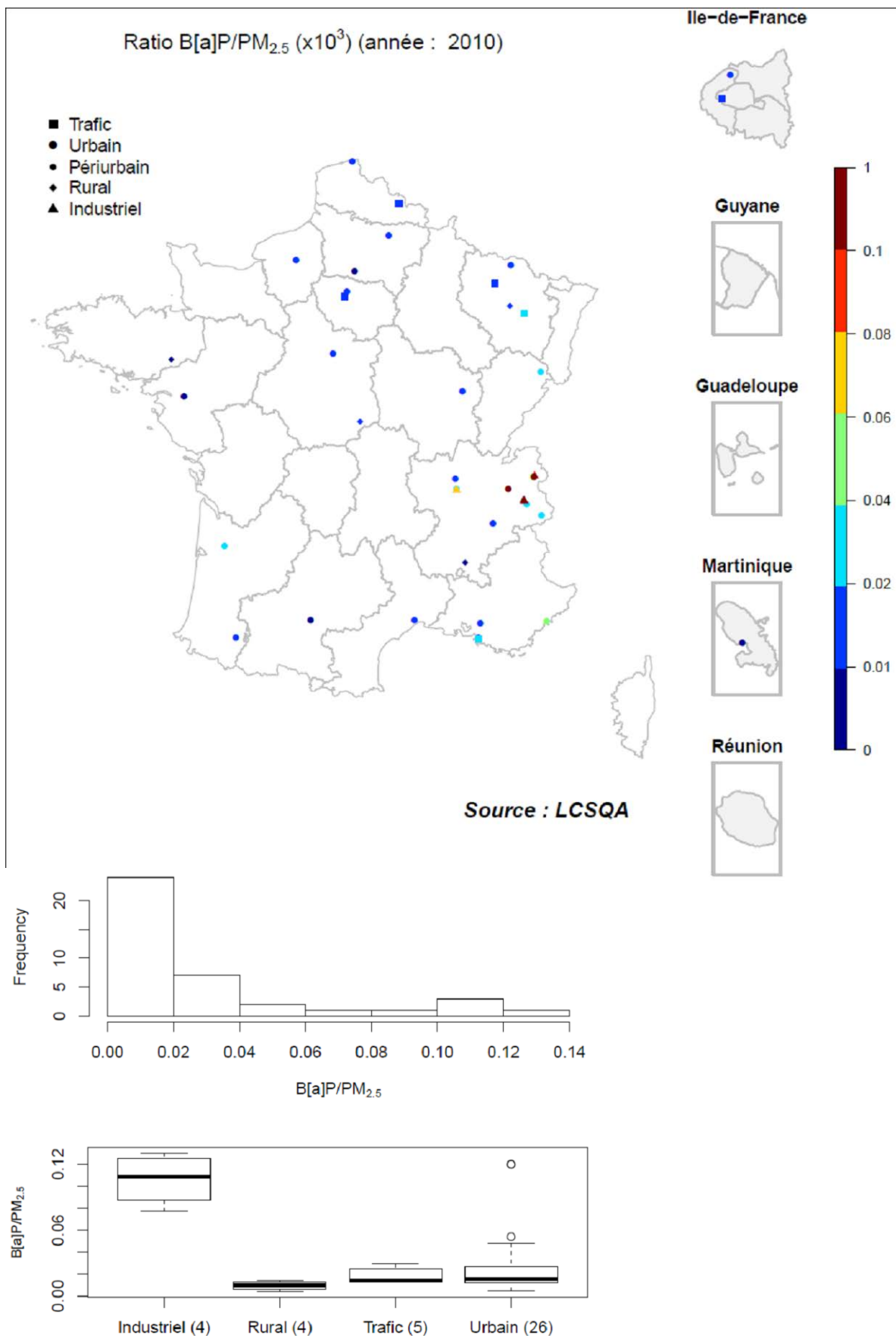


Figure 6 : Cartographie et statistiques descriptives des rapports moyens annuels B[a]P/PM_{2.5} (2010) (en ‰).

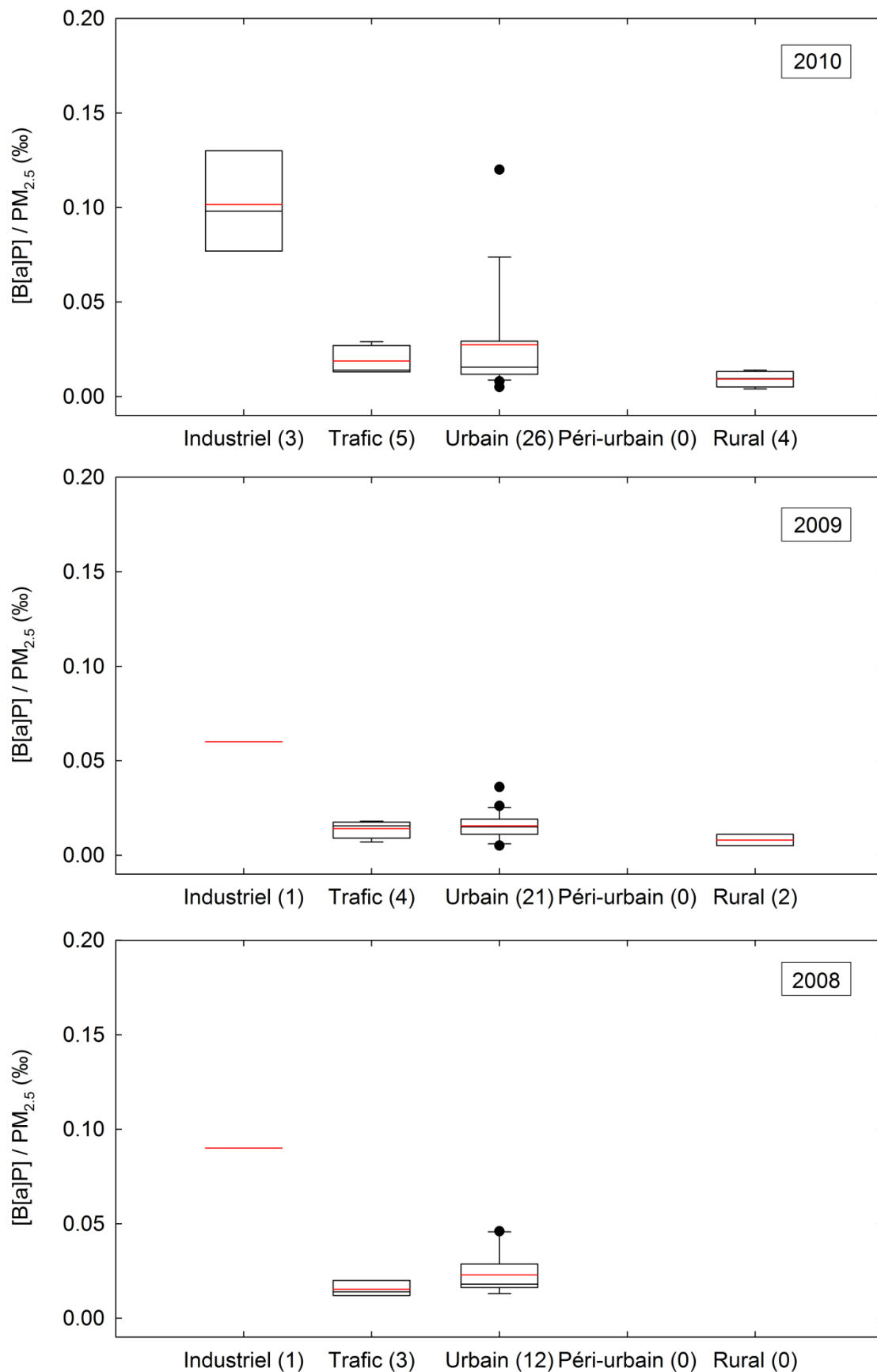


Figure 7 : Boîtes à moustaches des rapports moyens annuels $B[a]P/PM_{2.5}$ selon la typologie du site de prélèvements pour les années 2008, 2009 et 2010 (nombre de sites). Le trait en rouge représente la valeur moyenne.

La Figure 8 permet d'étudier l'impact saisonnier sur la contribution en B[a]P aux $PM_{2.5}$ selon la typologie du site instrumenté et selon l'année.

Comme dans le cas des PM_{10} , en saison froide, les contributions en B[a]P aux $PM_{2.5}$ sont environ 2 à 8 fois plus importantes qu'en saison chaude. Notons que les rapports saisonniers sont similaires sur les sites urbains, ruraux et même trafic (contrairement aux PM_{10}) et bien plus importants que ceux des sites industriels. Sur ces sites, l'émission constante de HAP quelle que soit la saison (activité industrielle continue) et les faibles émissions directes par les industries de $PM_{2.5}$ (de particules ultrafines en général PM_1) (CITEPA, 2014) expliquent le fait que la variabilité saisonnière des contributions des HAP aux $PM_{2.5}$ soit peu marquée. Les valeurs caractéristiques observées pour la typologie urbaine correspondent à un site situé dans les vallées alpines de la Savoie et Haute-Savoie où la combustion du bois pour le chauffage résidentiel est importante et les inversions thermiques sont fréquentes en hiver (Albinet et al., 2006; Albinet et al., 2008a; Marchand et al., 2004).

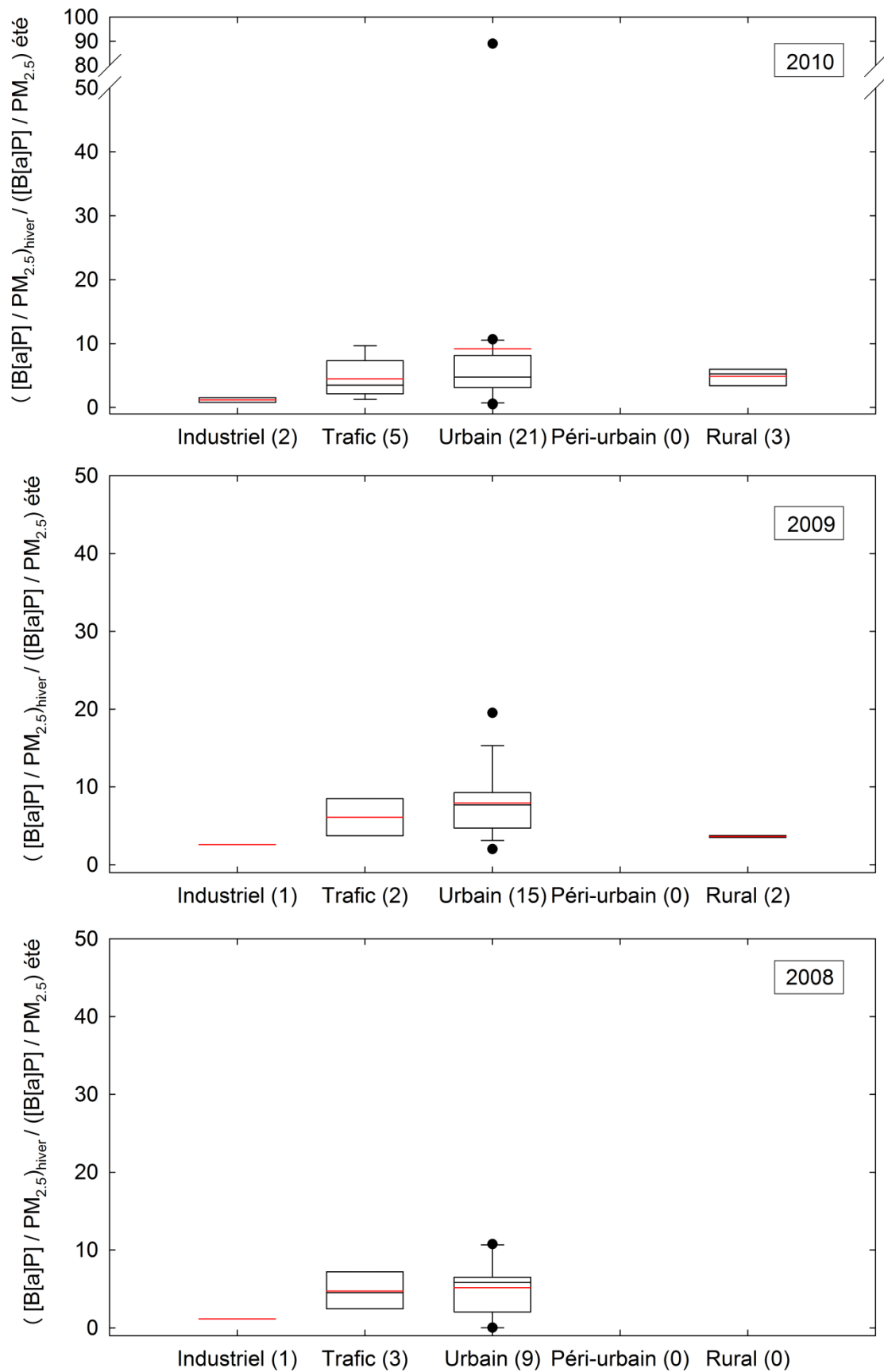


Figure 8 : Boîtes à moustaches des rapports moyens saison froide/saison chaude de B[a]P/PM_{2.5} pour 2008, 2009 et 2010 (nombre de sites). Le trait en rouge représente la valeur moyenne.

3.2 B[a]P vs PM

Outre l'analyse des contributions des HAP à la masse des PM, il est intéressant d'étudier à l'échelle nationale et selon la typologie des sites, les corrélations qui existent entre les HAP et les PM et donc entre leurs sources potentielles.

Les Figures 9 et 10, présentent les cartographies nationales pour 2010 des corrélations moyennes entre le B[a]P et les PM₁₀ ou PM_{2.5}.

Les sites sur lesquels des corrélations significatives ($r^2 > 0.5$) sont observées sont répartis aléatoirement sur le territoire français. Ainsi, aucune tendance ou disparité géographique n'apparaît. Ce résultat montre que le transport longue distance n'a que peu d'influence sur les corrélations entre HAP et PM et que ce sont donc bien les sources locales, pouvant donc être communes, qui expliquent les fortes corrélations entre HAP et PM observées sur certains sites.

Les Figures 11 et 12 permettent de comparer les corrélations entre le B[a]P et les PM₁₀ ou PM_{2.5} selon la typologie de site et les tendances d'évolution de 2008 à 2010.

Globalement, les corrélations des HAP avec les PM sont évidentes sur les sites trafic notamment avec les PM_{2.5} ($r^2 > 0,7$) montrant que les sources de PM et de HAP particulières sont en grande partie communes sur ces sites avec donc une influence du trafic routier probablement prépondérante (émissions directes des échappements). Les corrélations sur les sites industriels sont le plus faibles ($r^2 < 0,4$). Ces résultats montrent que les concentrations en HAP particulières sur les sites industriels n'ont pas de lien direct avec les émissions et donc les concentrations en particules. Les particules émises par les industries sont par contre très fortement toxiques en lien avec les fortes contributions des HAP aux PM observées. Sur les sites urbains, ruraux et périurbains ces corrélations sont plus faibles ($0,4 < r^2 < 0,9$). Les sources de HAP particulières et de PM sur ces sites sont seulement en partie communes. Deux ou trois sites urbains par an présentent néanmoins des corrélations très significatives entre le B[a]P et les PM ($r^2 \geq 0.8$). Ces sites sont situés en Savoie et Haute-Savoie. De telles corrélations avaient déjà été constatées dans les vallées alpines par Marchand et al (2004). Sur les sites urbains, ce type de corrélation reste très caractéristique. En effet, les HAP sont essentiellement associés à la fraction fine des particules ($D_p < 1 \mu m$) qui représente une faible fraction de la masse des PM₁₀. Etant donné que les HAP ont une origine essentiellement anthropique primaire, des telles corrélations, et de plus récurrentes, montrent que sur ces sites les PM₁₀ et PM_{2.5} sont majoritairement issues d'émissions primaires anthropiques et que la part naturelle de l'aérosol reste marginale. Ainsi, sur ces sites la contribution du chauffage en hiver, et notamment chauffage au bois, joue un rôle prépondérant sur les concentrations en PM et en HAP.

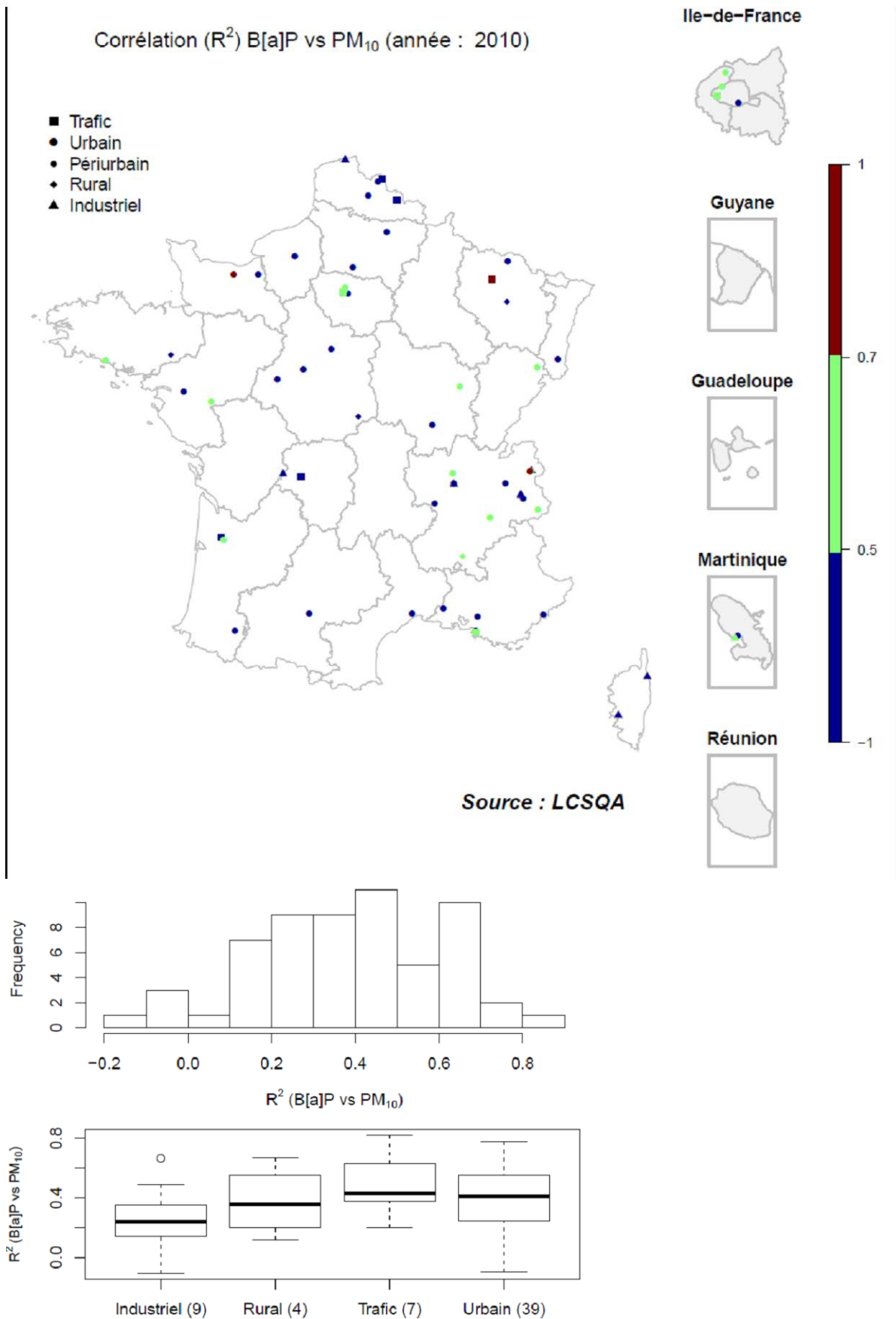


Figure 9 : Cartographie et statistiques descriptives des corrélations moyennes annuelles B[a]P vs PM_{10} (2010).

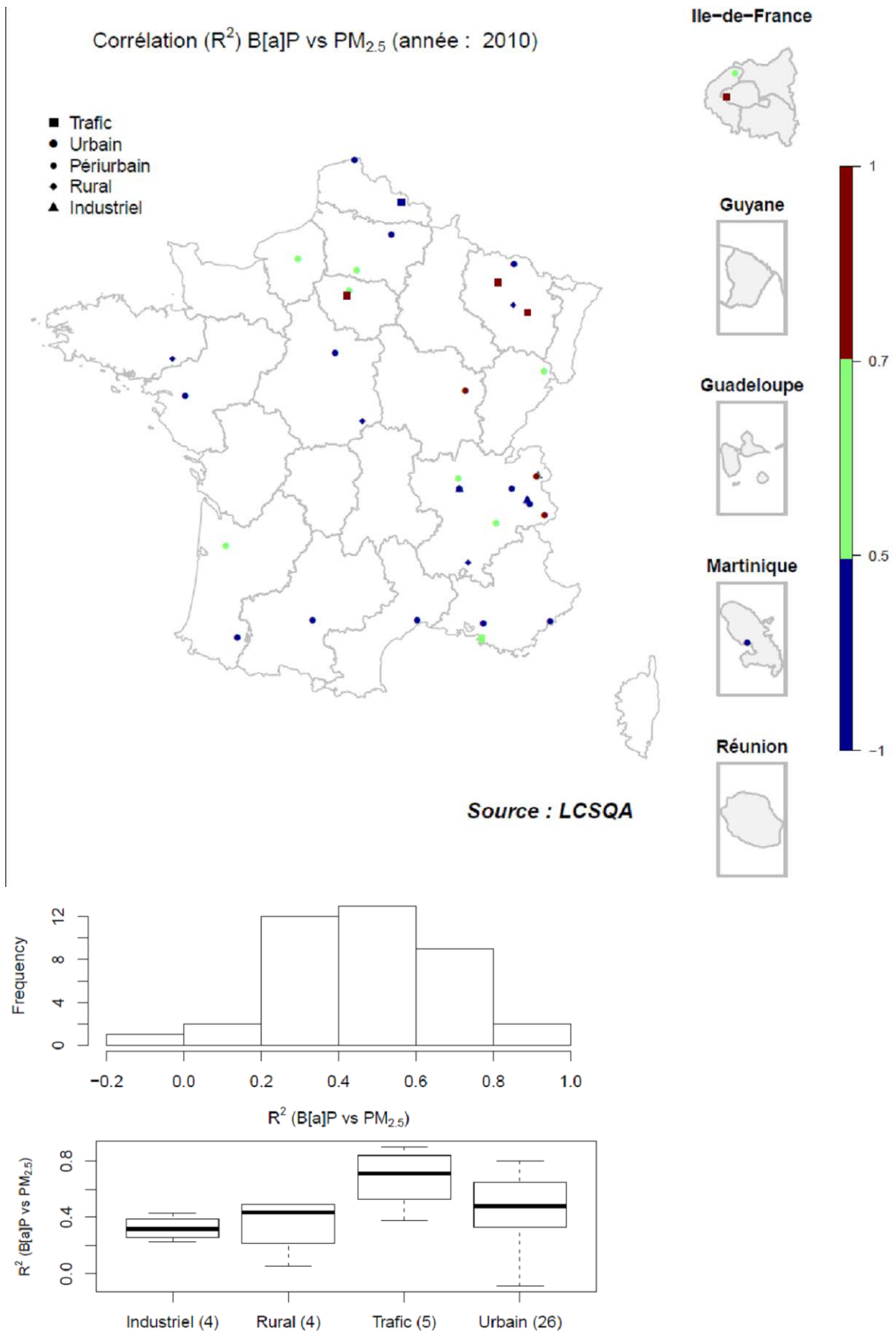


Figure 10 : Cartographie et statistiques descriptives des corrélations moyennes annuelles B[a]P vs $PM_{2.5}$ (2010).

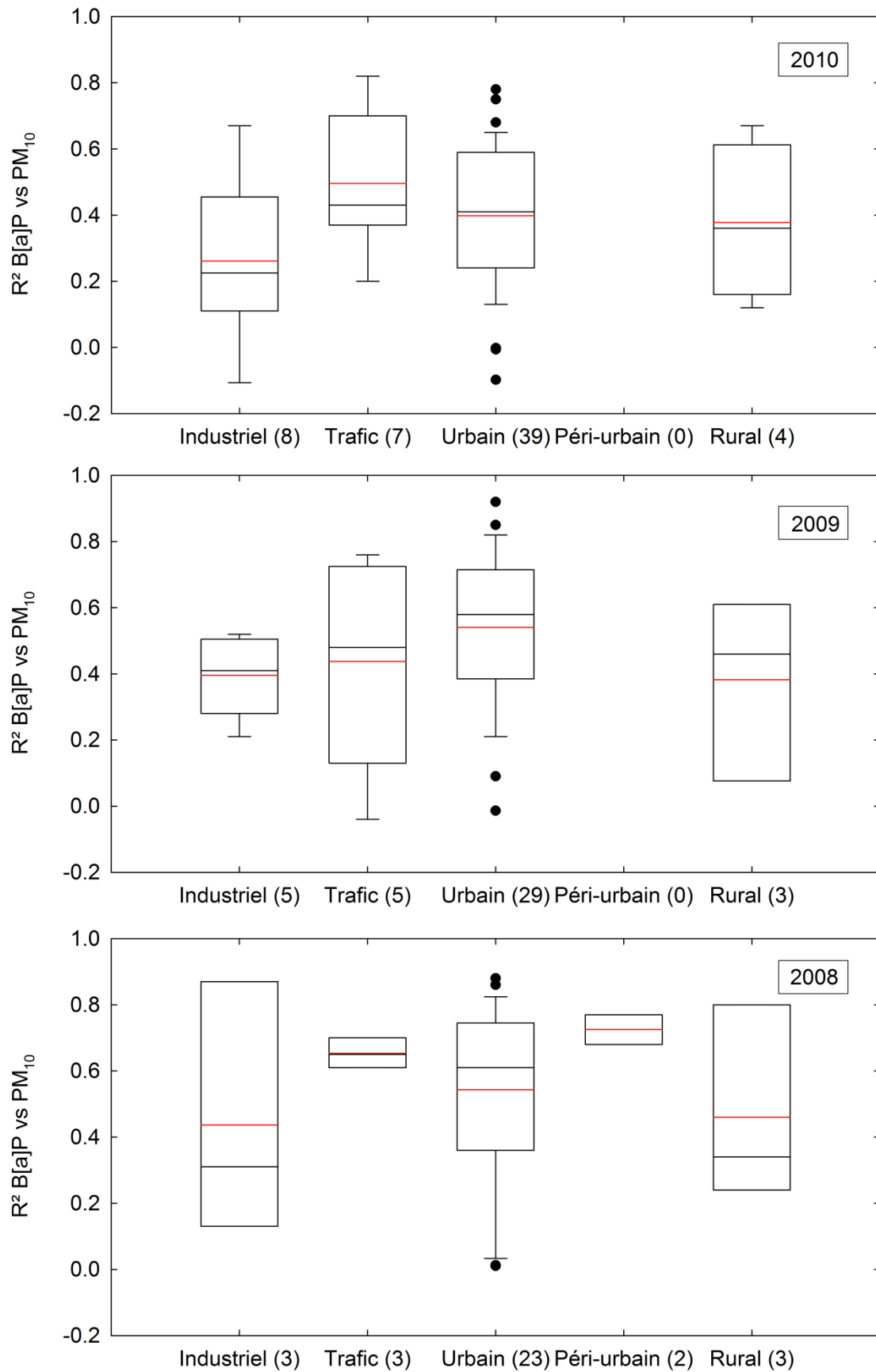


Figure 11 : Boîtes à moustaches des corrélations moyennes annuelles B[a]P vs PM_{10} pour 2008, 2009 et 2010 (nombre de sites). Le trait en rouge représente la valeur moyenne.

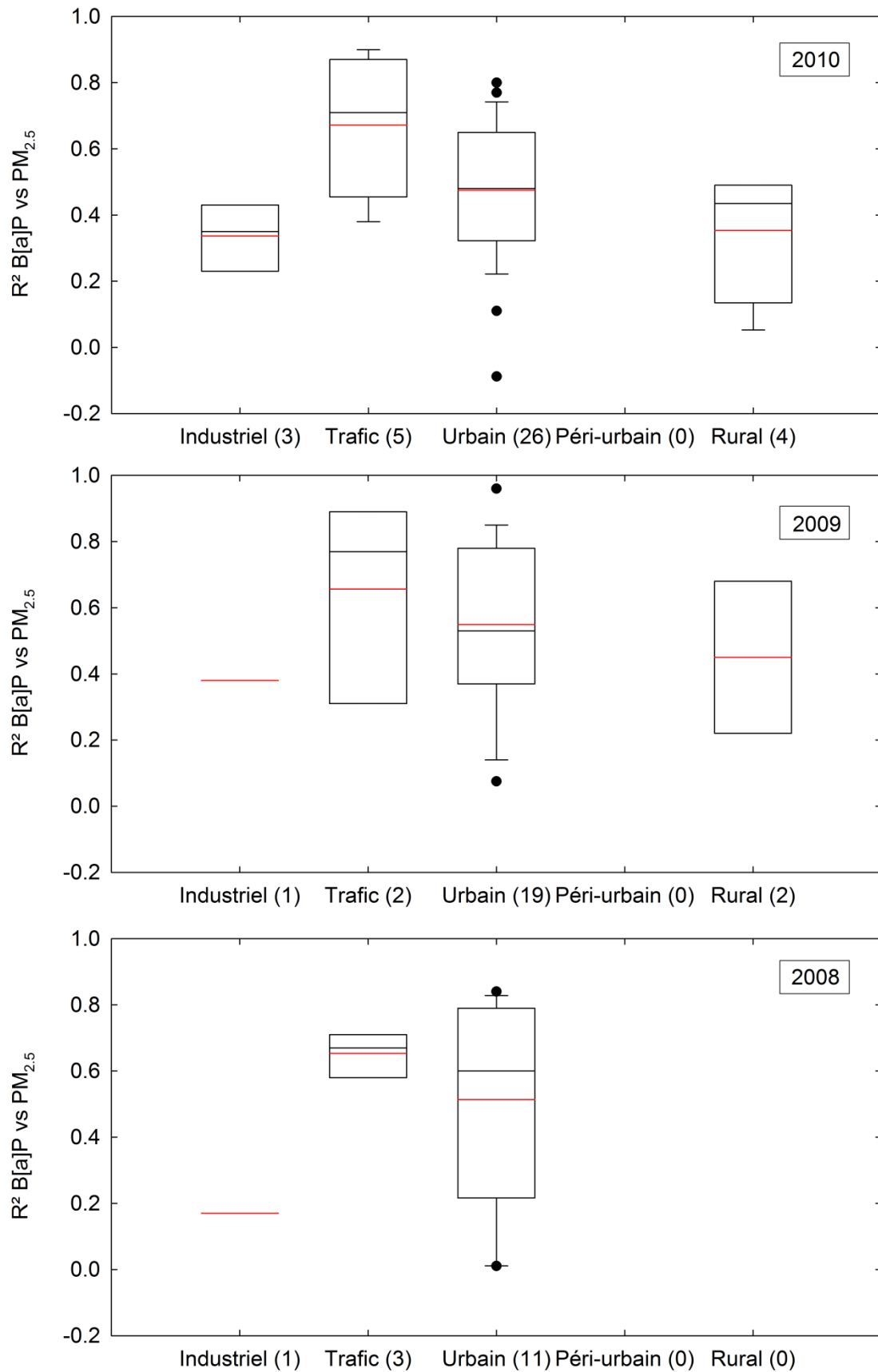


Figure 12 : Boîtes à moustaches des corrélations moyennes annuelles B[a]P vs $PM_{2.5}$ pour 2008, 2009 et 2010 (nombre de sites). Le trait en rouge représente la valeur moyenne.

4. TENDANCES TEMPORELLES SUR LE LONG TERME

L'étude des tendances à long terme de la contribution du B[a]P aux PM₁₀ a pu être réalisée pour les sites permettant de disposer d'une série de données supérieure à 5 années consécutives et à condition qu'ils ne comportent qu'un nombre limité de valeurs manquantes. En France, c'est le cas de sites d'Airparif, Air Rhône-Alpes et Atmo Nord-Pas-de-Calais. Certains sites sont d'ailleurs instrumentés depuis 1998. Afin d'être statistiquement significatives, les analyses de tendance ont été réalisées à partir des séries de données mensuelles.

Un problème se pose néanmoins pour cette analyse de tendance à long terme compte tenu du changement de méthode de mesure de la masse des PM en France en 2007 afin de prendre en compte la fraction semi-volatile des particules dans la mesure de leur masse (effectif sur toute la France au 01/01/2007). A partir de 2007 un ajustement des concentrations déterminées avec les anciennes technologies de mesure (e.g. TEOM 50) a été mis en place en se basant sur des sites de référence équipés d'instruments permettant la prise en compte de la fraction volatile des particules (e.g. TEOM-FDMS). Le remplacement des instruments et la généralisation de la mesure de la fraction semi-volatile des PM a été mise en place de façon progressive sur l'ensemble du territoire (Aymoz et al., 2008; Bessagnet et al., 2008; Malherbe and Bessagnet, 2009). La prise en compte de la fraction semi-volatile des particules a engendré un changement brutal des valeurs des masses des PM mesurée avec des plus faibles concentrations avant 2007. Dans les autres pays européens, les données antérieures au changement de méthode de mesure ont été corrigées en adoptant généralement un facteur de conversion constant de 1,3. Celui-ci reste discutable étant donné la variabilité de part semi-volatile des PM au cours de l'année et en fonction des typologies des sites en lien avec les sources prépondérantes des PM. En France, des travaux ont été menés par le LCSQA afin de définir un modèle de correction des données PM avant 2007 (Bessagnet, 2006; Malherbe and Bessagnet, 2009) mais les données n'ont pas été corrigées.

Ainsi, l'étude sur une longue période du ratio B[a]P/PM₁₀ s'en trouve à priori affectée. Afin d'évaluer l'impact du changement de technologie de mesure des PM sur les tendances à long terme de la contribution des HAP aux PM, une comparaison des ratios B[a]/PM₁₀, calculés en utilisant les données officielles des PM (non corrigées pour les données antérieures à 2007) et en utilisant en première approche les données « corrigées » de façon simple par un facteur 1,3 (communément appliqué par l'ensemble des pays européens), a été réalisée. Un exemple pour deux sites de Airparif (trafic et urbain) est présenté sur la Figure 13.

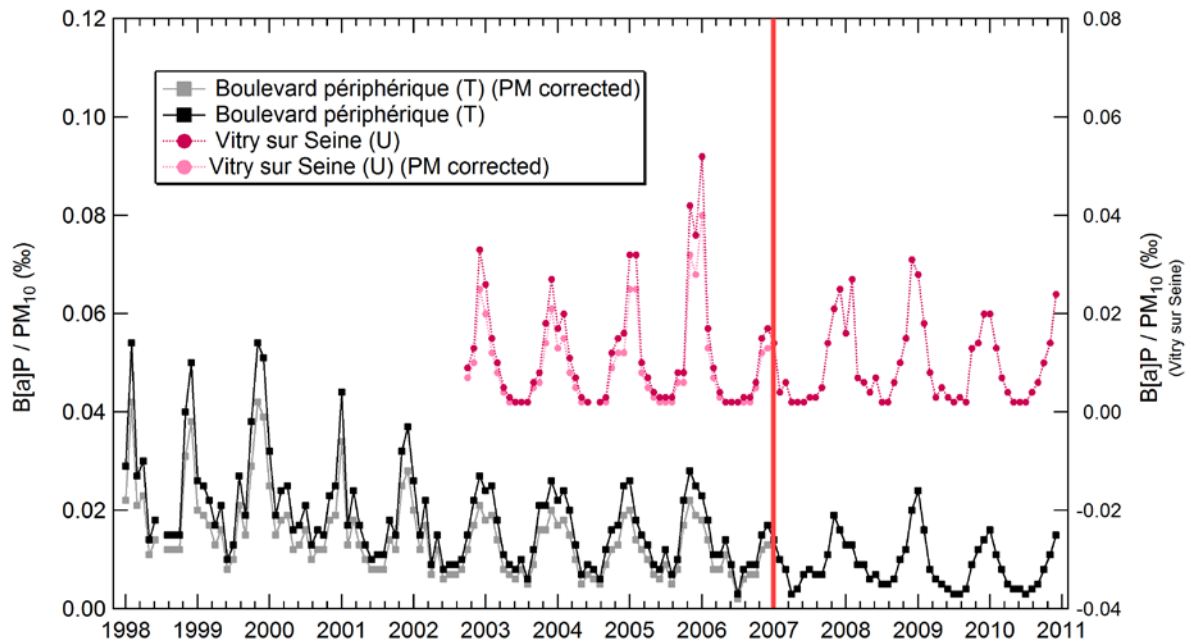


Figure 13 : Comparaison des évolutions temporelles des rapports moyens mensuels B[a]P/PM₁₀ pour deux sites en région Ile de France en prenant les valeurs de PM₁₀ originales et corrigées d'un facteur 1,3 pour la période avant le 01/01/2007.

Les résultats obtenus ne montrent pas de différences significatives des tendances à long terme selon que les séries de données des PM ont été corrigées ou non. En utilisant des données corrigées, il n'y a pas de rupture significative de tendance avant et après 2007, date du changement officiel de méthode de mesure des PM. Les mêmes observations et conclusions peuvent être faites pour l'ensemble des sites de prélèvement retenus pour cette étude de tendances à long terme.

Ainsi, pour la suite de l'étude, et afin de simplifier les calculs, les tendances à long terme ont été établies en appliquant pour les données d'avant 2007 un facteur correctif constant de 1,3 même si celui-ci est discutable.

Les séries de données temporelles retenues ([B[a]P/PM₁₀) 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**.

4.1 ILE DE FRANCE

Les évolutions temporelles (moyennes mensuelles) des contributions du B[a]P au PM₁₀ pour les sites d'Ile de France sont présentées sur la Figure 14. Airparif possède la base de données la plus étendue dans le temps avec 3 sites (1 trafic + 2 urbains) instrumentés pour la mesure combinée des HAP et des PM 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 78 % et généralement supérieur à 90 % (Tableau 1).

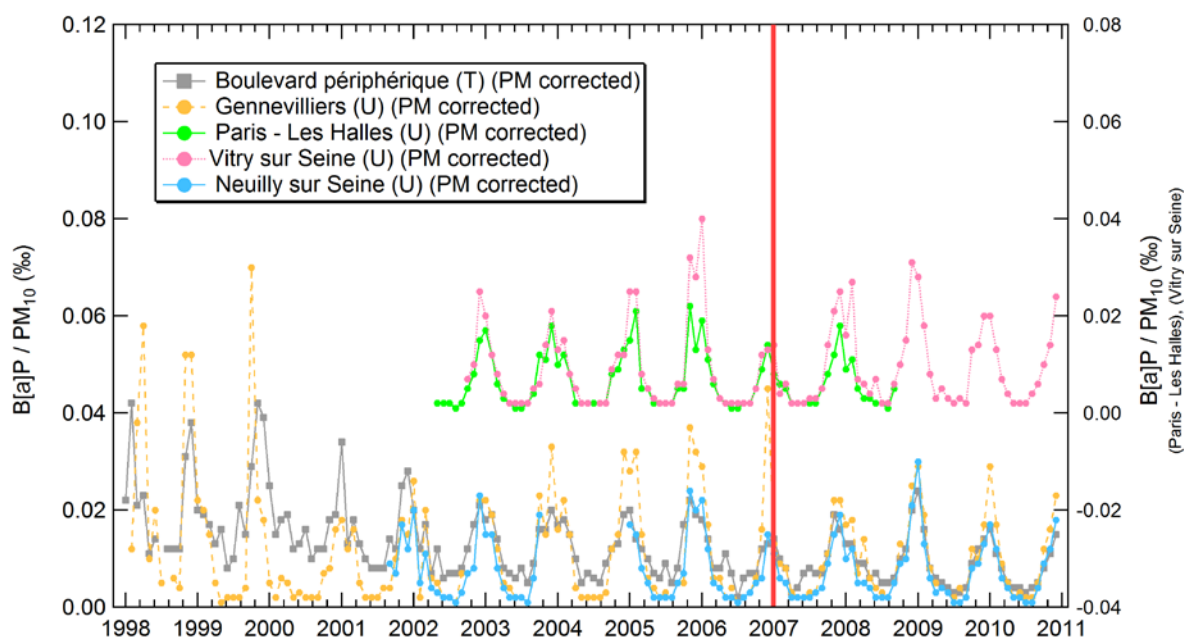


Figure 14 : Evolution temporelle des rapports moyens mensuels B[a]P/PM₁₀ en région Ile de France (Airparif).

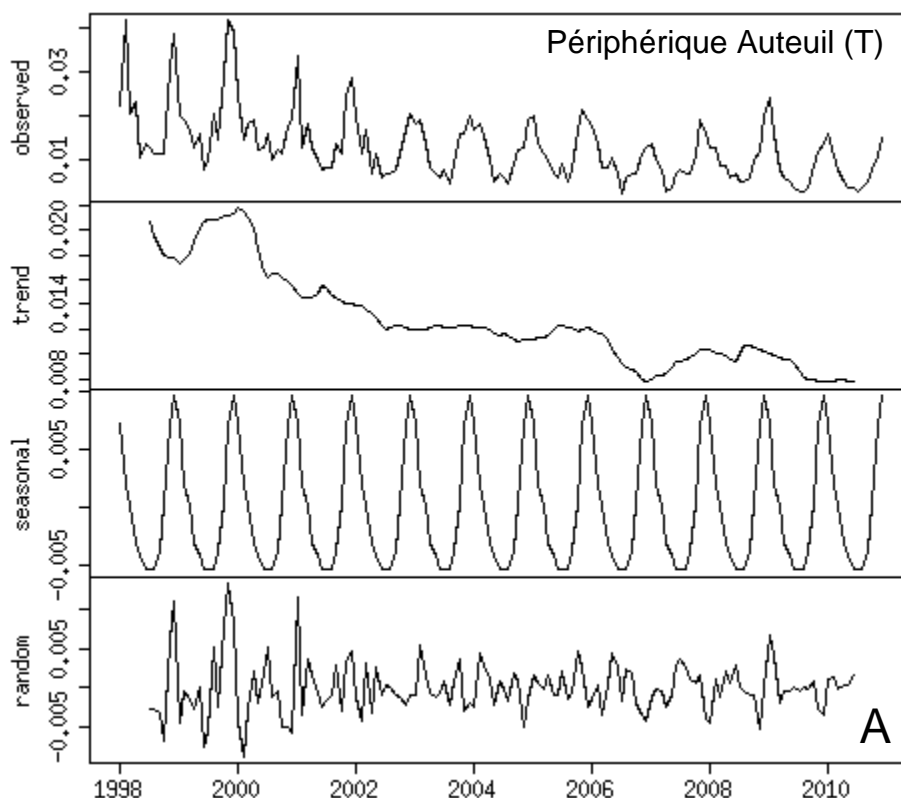
La décomposition des séries temporelles selon de modèle de l'équation 1 et les résultats de l'analyse statistique réalisée (test de Mann-Kendall « saisonnier ») sont présentés sur la Figure 15 [exemples des sites « Périphérique Auteuil » (trafic) et de « Gennevilliers » (urbain)] et dans le Tableau 1. Les résultats montrent une tendance clairement à la baisse de la contribution du B[a]P aux PM₁₀ sur le site trafic (environ -0,02 ‰ en 13 ans= environ 50 %), et donc une diminution de la toxicité liée au B[a]P (aux HAP) des particules émises majoritairement par le trafic tandis que pour le site urbain, aucune tendance n'est observée (p-values > 0,05) (Figure 15 et Tableau 1).

Sur l'IDF, sur les 4 sites urbains étudiés ici, 1 seul site présente une tendance significative à la baisse du ratio B[a]P/PM₁₀ (-50 % environ) montrant donc qu'au global, la toxicité intrinsèque des particules liée à la présence des HAP n'a pas diminuée sur ces 12 dernières années (de 1998 à 2010) malgré un baisse significative des concentrations en PM et en HAP (Albinet et al., 2012) et malgré la prise de conscience des problématiques de la qualité de l'air et la mise en place de politiques de gestion des émissions (évolution technologiques, normes d'émission).

Tableau 1 : Analyse statistique des séries temporelles du rapport B[a]P/PM₁₀ (‰) 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	0,00	Oui
Neuilly-sur-Seine (U)	2001 - 2010	78	0,06	Non
Gennevilliers (U)	1998 - 2010	99	0,94	Non
Paris Les Halles (U)	2002 - 2008	96	0,26	Non
Vitry-sur-Seine (U)	2002 - 2010	94	0,02	Oui

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



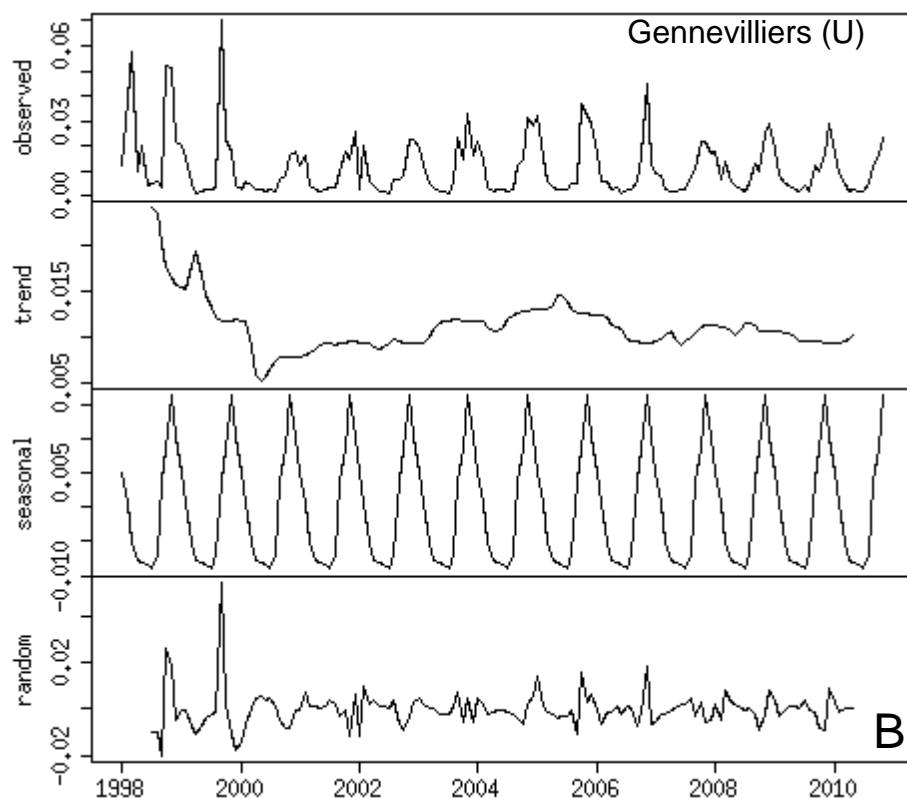


Figure 15 : Décomposition des séries temporelles du rapport B[a]P/PM₁₀ pour les sites du Périphérique Auteuil (T) – A et de Gennevilliers (U) - B.

4.2 RHÔNE-ALPES

Les séries pluriannuelles de ratios moyens mensuels B[a]P/PM₁₀ pour la région Rhône-Alpes sont présentées sur la Figure 16. Les résultats de décomposition et d'analyse statistique des séries temporelles sont présentés sur la Figure 17 [Grenoble Les Frênes (urbain) et Vénissieux Village (industriel)]. Pour l'ensemble des sites, les séries de données mensuelles affichent un taux de représentativité temporelle $\geq 99\%$ (Tableau 2).

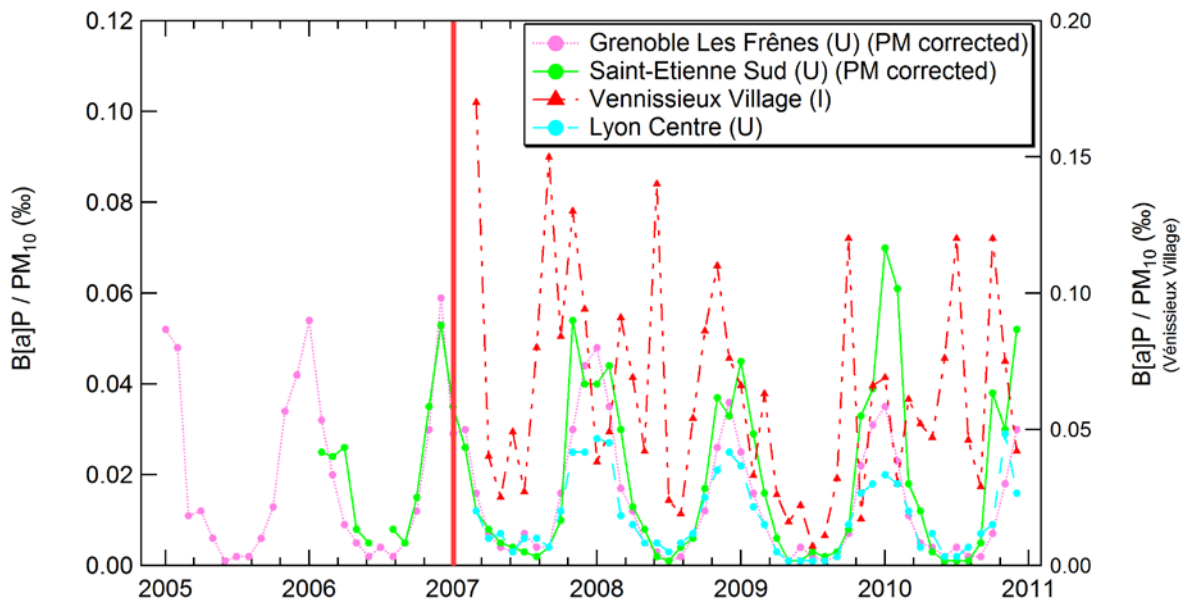


Figure 16 : Evolution temporelle des rapports moyens mensuels $B[a]P/PM_{10}$ en région Rhône-Alpes (Air Rhône-Alpes).

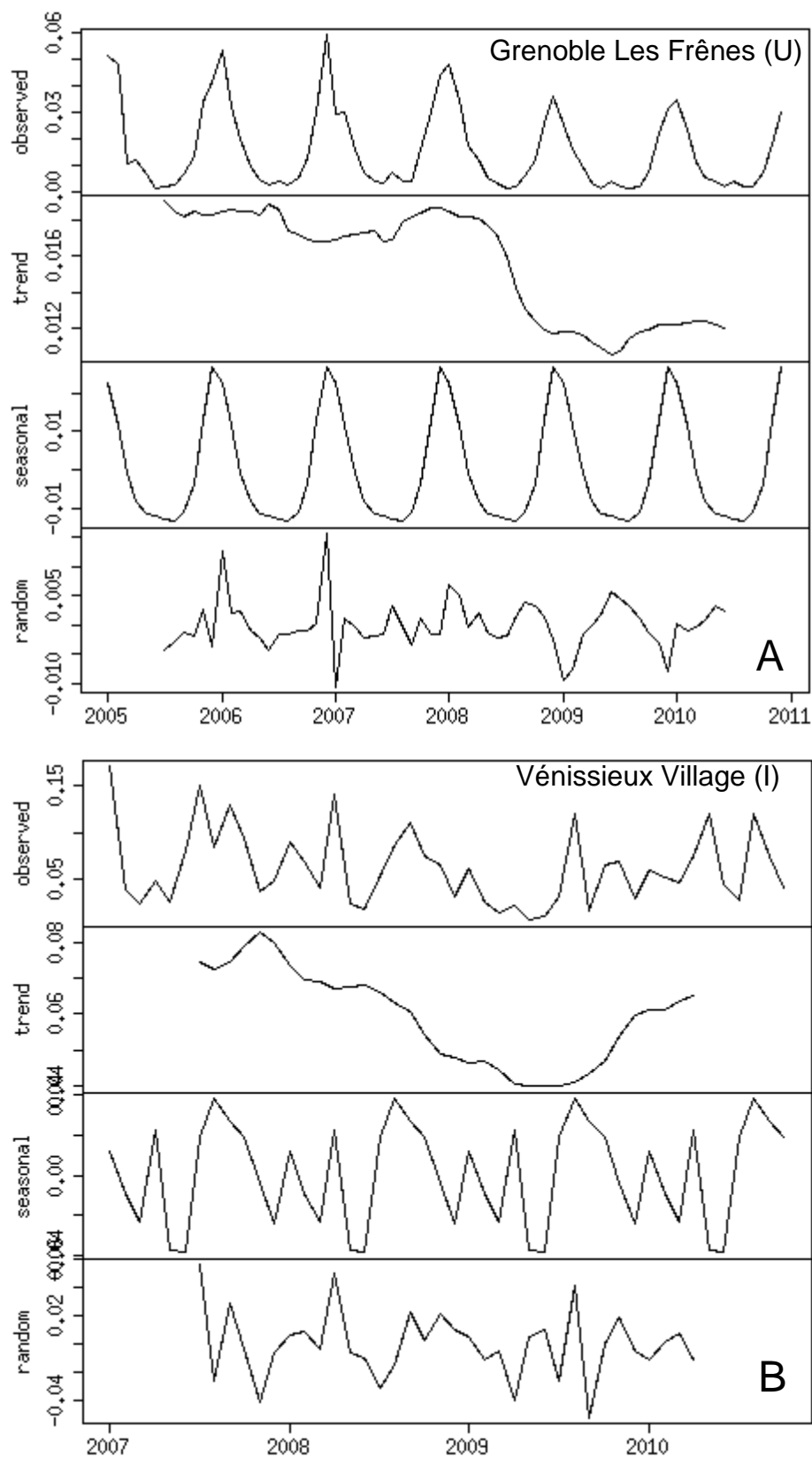


Figure 17 : Décomposition des séries temporelles du rapport B[a]P/PM₁₀ pour les sites Grenoble-les-Frênes (U) - A et Vénissieux Village (I) - B.

Tableau 2: Analyse statistique Mann-Kendall des séries temporelles du rapport B[a]P/PM₁₀ des sites d’Air Rhône-Alpes.

Site	Période de mesure	Taux de représentativité temporelle (%) *	p-value	Tendance ?
Vénissieux Village (I)	2007 - 2010	99	0,08	Non
Saint-Etienne Sud (U)	2006 - 2010	99	0,11	Non
Grenoble Les Frênes (U)	2005 - 2010	100	2,45×10 ⁻⁵	Oui
Lyon Centre (U)	2007 - 2010	99	0,01	Oui

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

Les résultats obtenus montrent que 2 des 3 sites urbains de Rhône-Alpes (Grenoble-Les Frênes et Lyon Centre, 5 à 6 ans de données, -50 et -30 %, respectivement) présentent une tendance significative à la baisse de leur contribution des HAP aux PM₁₀ (p-values = 2,45×10⁻⁵ et 0,01). A l’inverse, pour le site industriel (site industriel de Vénissieux Village), la contribution des HAP aux PM est restée constante depuis ces 5 dernières années (p-value = 0.08). L’influence quasi unique de l’usine à proximité en tant que source de HAP a été démontrée dans une étude précédente (Albinet and Balbiani, 2013). Les résultats obtenus ici montrent que la toxicité des particules liée aux HAP émises par celle ci n’a pas évoluée avec le temps.

4.3 NORD-PAS-DE-CALAIS

Dans la région Nord-Pas-de-Calais, 2 sites (trafic et urbain) ont bénéficié d’une surveillance combinée du B[a]P/PM sur une longue période (8 et 9 ans) (Figure 18) avec, en ce qui concerne les séries de données mensuelles, un taux de représentativité temporelle de plus de 99 %. Les composantes saisonnières sont très marquées dans les deux cas (amplitude de l’ordre de 0,02 ‰). La décomposition de la série temporelle et l’analyse statistique associée permettent de conclure à une décroissance significative (environ -70 % en 8 et 9 ans) des ratios B[a]P/PM₁₀ (p-values < 6 ×10⁻⁷) sur les deux sites (Figure 19 et Tableau 3). Sur ces deux sites, la diminution du potentiel cancérigène des particules dans le temps, lié à la présence des HAP, est donc significative, contrairement à ce qui a pu être observé pour les autres régions telles que l’Île de France et Rhône-Alpes où cette diminution est finalement peu évidente

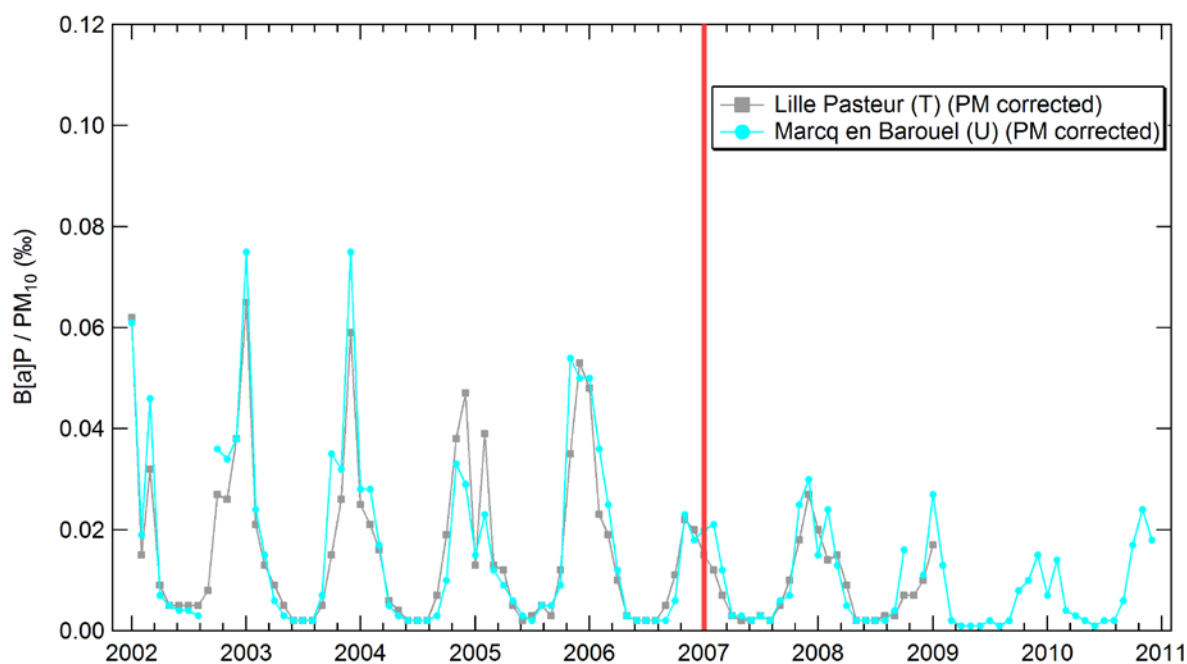


Figure 18 : Evolution temporelle des rapports moyens mensuels B[a]P/PM₁₀ en région Nord-Pas-de-Calais (Atmo Nord-Pas-de-Calais).

Tableau 3 : Analyse statistique des séries temporelles du rapport B[a]P/PM₁₀ 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)	2002 - 2008	100	$5,89 \times 10^{-7}$	Oui
Marcq-en-Barœul (U)	2002 - 2010	99	$7,89 \times 10^{-9}$	Oui

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

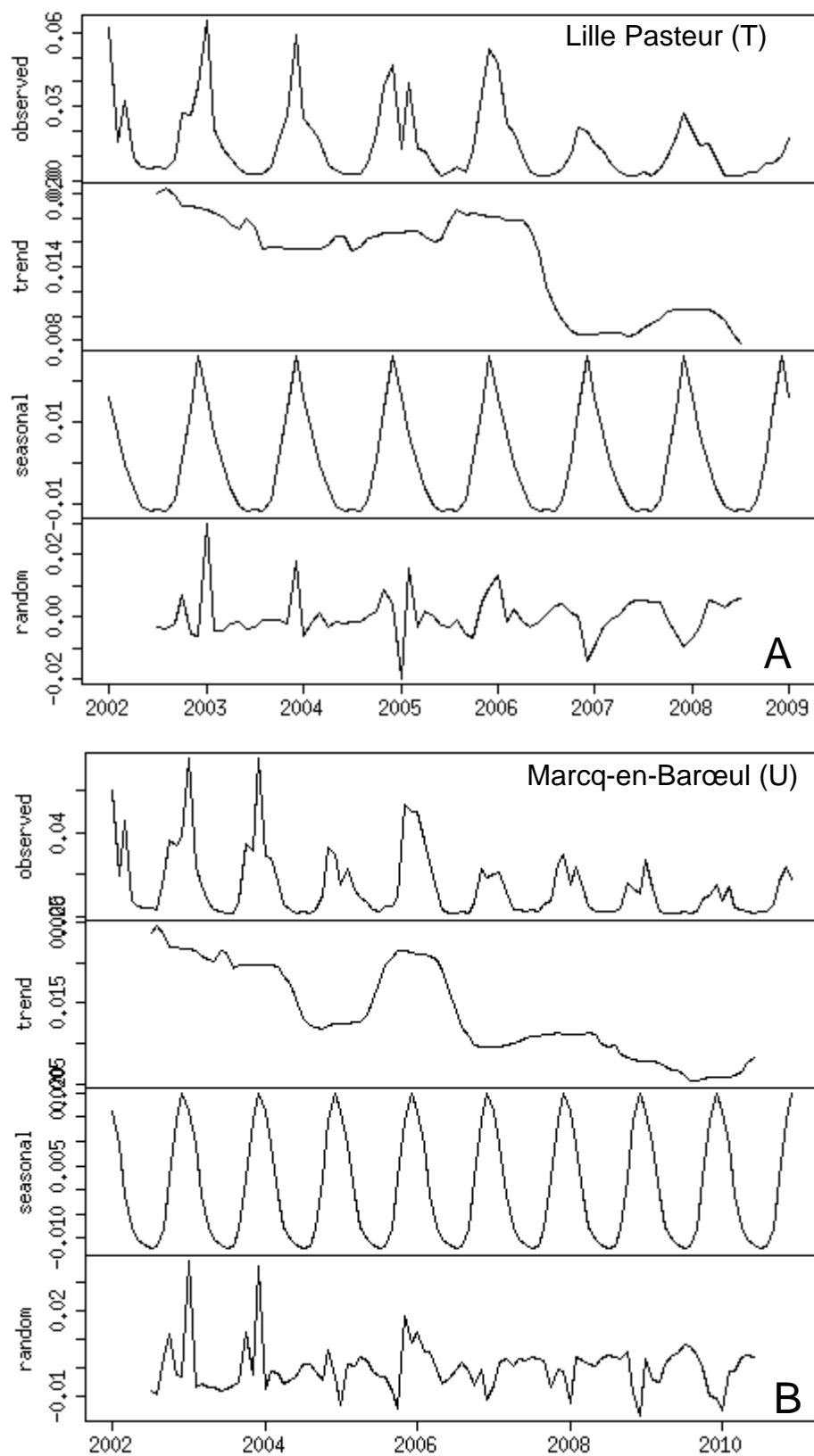


Figure 19 : Décomposition des séries temporelles du rapport B[a]P/PM₁₀ pour les sites Lille-Pasteur (T) - A et Marcq-en-Barœul (U) - B.

5. CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Le travail accompli a permis de réaliser la collecte et le traitement statistique d'un vaste ensemble de données relatif à la contribution des HAP aux PM (PM₁₀ et PM_{2,5}) à l'échelle nationale. Ce type d'étude n'a à notre connaissance jamais été reportée dans la littérature et donc ce travail est largement novateur compte tenu du nombre de données disponible et l'interprétation qui en est faite.

Les cartographies de 2008 à 2010 des ratios B[a]P/PM ont été établies et ont montré que, bien qu'il n'existe pas d'exigence réglementaire, de nombreuses régions restent « blanches » quant à une surveillance combinée des HAP et PM, et notamment des PM_{2,5}, alors qu'elle serait d'un intérêt majeur en termes d'évaluation de l'impact sanitaire des particules. En effet, même si les concentrations en particules sont à priori faibles, leur composition chimique peut avoir un rôle déterminant dans leur potentiel toxique. Ceci inclut la présence des composés cancérigènes et mutagènes tels que les HAP.

De façon globale, les contributions des HAP aux PM les plus élevées ont été observées sur les sites de typologie industrielle. Elles sont comparables pour les autres typologies de sites (urbains, trafics, ruraux, périurbains). D'un point de vue géographique, les valeurs des ratios B[a]P/PM₁₀ et B[a]P/PM_{2,5} les plus fortes sont observées sur des sites localisés en Rhône-Alpes (notamment Savoie et Haute-Savoie) et ce tous types de sites confondus. Les variations des contributions hivernales et estivales semblent moins marquées sur les sites industriels et trafic, et présentent plus d'amplitude sur les sites urbains, ruraux et périurbains. Ces résultats mettent en avant l'importance de la source résidentielle liée aux activités de chauffage, et notamment de chauffage au bois, sur la contribution des HAP aux PM et donc sur leur toxicité en période hivernale

Les corrélations des concentrations en HAP avec les PM sont apparues comme significatives sur les sites trafic (surtout avec les PM_{2,5}) ($r^2 > 0,7$) montrant que la source majoritaire des HAP particulière est liée au trafic sur ces sites. Elles sont plus faibles et plus variables sur les sites urbains, ruraux et périurbains ($0,4 < r^2 < 0,9$), et très peu significatives ($r^2 < 0,4$) sur les sites industriels. Ces résultats montrent que les variations des concentrations en HAP sur les sites industriels pris en compte dans cette étude n'ont pas de lien direct avec les concentrations massiques en particules sur ces sites. Les industries, prises en compte dans cette étude, semblent donc de forts émetteurs de HAP mais de faibles émetteurs et contributeurs à la masse de particules (émission de particules très fines). Les particules émises sont par contre très fortement toxiques en lien avec les fortes contributions des HAP aux PM observées.

L'analyse statistique des tendances à long terme de l'évolution de la contribution du B[a]P aux PM₁₀ a pu être réalisée sur les sites permettant de disposer d'un jeu de données de plus de 5 années consécutives. Cette étude a été réalisée en corrigeant les concentrations en PM₁₀ avant 2007 (prise en compte systématique de la part semi-volatile dans la masse des PM) par un facteur unique de 1,3 qui peut être discutable mais qui ne semble pas impacter les résultats et les conclusions faites lors de ce travail. L'étude statistique a ainsi permis de mettre en évidence une baisse significative (-50 %) de la contribution du B[a]P aux PM₁₀ sur

les deux sites urbains du Nord Pas de Calais entre 2002 et 2010. De la même manière, 2 des 3 sites urbains de la région Rhône-Alpes (Grenoble-Les Frênes et Lyon Centre) et seulement sur 1 seul des 4 sites urbains de l'IDF (Vitry sur Seine) montrent une tendance similaire à la baisse (-30 à -50 % en 5 à 8 ans). Le site trafic de l'Île-de-France (Périphérique Auteuil) présente aussi clairement une tendance à la baisse (depuis 1998 à 2010, -50 %). Pour le site industriel de Vénissieux Village (Rhône-Alpes) et comme pour les autres sites urbains, la contribution des HAP aux PM est restée constante depuis ces 5 à 12 dernières années (selon le site, entre 1998 et 2010). Ces résultats montrent que même si les émissions globales de HAP ont diminué en France sur ces 12 dernières années, leur contribution à la masse des particules, sur la moitié des sites retenus dans ce travail, a globalement peu évolué. Le potentiel toxique (cancérigène) des particules lié aux HAP n'a pas évolué mais surtout il n'a pas baissé malgré la mise en place des politiques de gestion de qualité de l'air et les avancées technologiques des processus et traitements des combustions ayant eu lieu dans le même temps.

Ce travail devra être mis à jour dans 5 à 6 ans afin de prendre en compte les résultats des mesures réalisées depuis 2010. De plus, l'ensemble des évaluations préliminaires auront été réalisées et donc le jeu de données disponible sera le plus complet possible sur l'ensemble du territoire. De plus, à cette date, les acteurs de la surveillance de la qualité de l'air et notamment les AASQA auront eu connaissance de l'intérêt de la mesure combinée des HAP et des PM ainsi que de la mesure de l'ensemble des 7 HAP de la Directive 2004/107/CE (Albinet et al., 2012; European Official Journal, 2004) ce qui permettra de disposer de longues séries de données sur un nombre plus important de point de mesures et de typologies de sites. L'étude statistique et les conclusions qui pourront en être faites n'en seront que renforcées. A ce titre, cette étude et la précédente (Albinet et al., 2012) ont mis en avant la nécessité de l'instrumentation et de la mesure des HAP (et des PM) sur les sites de typologie périurbaine compte tenu de l'impact potentiel important du chauffage résidentiel, dont le chauffage au bois, sur les concentrations en HAP, en PM et sur la toxicité de ces dernières. Enfin, le travail pourra être étendu en intégrant d'autres paramètres tels que les concentrations en NO_x, O₃ ou des données d'inventaires d'émission, de l'INS relatives à la population, au type de chauffage, etc. Ce travail devra être également mis à disposition de la commission européenne pour les discussions à venir sur la mise à jour de la Directive européenne.

6. REFERENCES

Albinet, A., Balbiani, J., 2013. Mise en oeuvre d'une méthodologie d'estimation des sources de HAP par modèle récepteur. Application de la Positive Matrix Factorization (PMF). LCSQA.

Albinet, A., Beauchamp, M., Harel, G., Malherbe, L., 2012. Surveillance des HAP - Concentrations atmosphériques des HAP au niveau national (France): cartographie et tendances sur le long terme. LCSQA.

Albinet, A., Leoz-Garziandia, E., Budzinski, H., Villenave, E., 2006. Simultaneous analysis of oxygenated and nitrated polycyclic aromatic hydrocarbons on standard reference material 1649a (urban dust) and on natural ambient air samples by gas chromatography-mass spectrometry with negative ion chemical ionisation. *J. Chromatogr. A* 1121, 106-113.

Albinet, A., Leoz-Garziandia, E., Budzinski, H., Villenave, E., Jaffrezo, J.L., 2008a. Nitrated and oxygenated derivatives of polycyclic aromatic hydrocarbons in the ambient air of two French alpine valleys. Part 1: Concentrations, sources and gas/particle partitioning. *Atmos. Environ.* 42, 43-54.

Albinet, A., Leoz-Garziandia, E., Budzinski, H., Villenave, E., Jaffrezo, J.L., 2008b. Nitrated and oxygenated derivatives of polycyclic aromatic hydrocarbons in the ambient air of two French alpine valleys. Part 2: Particle size distribution. *Atmos. Environ.* 42, 55-64.

Aymoz, G., Ustache, A., Le Bihan, O., 2008. Accompagnement au déploiement des modules FDMS. LCSQA.

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

Bessagnet, B., 2006. Correction des données TEOM en France pour l'année 2004 : validation de la méthode par la modélisation. LCSQA.

Bessagnet, B., Malherbe, L., Aymoz, G., 2008. Bilan de la 1ère année de mesure des PM₁₀ ajustées en France et évaluation des outils de modélisation. LCSQA.

CITEPA, 2014. 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), Paris.

European Official Journal, 2004. 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., *Official Journal*, pp. 3-16.

European Official Journal, 2005. 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., *Official Journal*, pp. 3-16.

IARC, 2010. Some non-heterocyclic polycyclic aromatic hydrocarbons and some related exposures, IARC Monographs on the Evaluation of Carcinogenic Risks to Humans, Lyon (France).

Malherbe, L., Bessagnet, B., 2009. Bilan des deux premières années de mesure des PM₁₀ ajustées en France et évaluation des outils de modélisation. LCSQA.

Marchand, N., Besombes, J.L., Chevron, N., Masclet, P., Aymoz, G., Jaffrezo, J.L., 2004. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in the atmospheres of two French alpine valleys: sources and temporal patterns. *Atmos. Chem. Phys.* 4, 1167-1181.

Ravindra, K., Sokhi, R., Van Grieken, R., 2008. Atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons: source attribution, emission factors and regulation. *Atmos. Environ.* 42, 2895-2921.