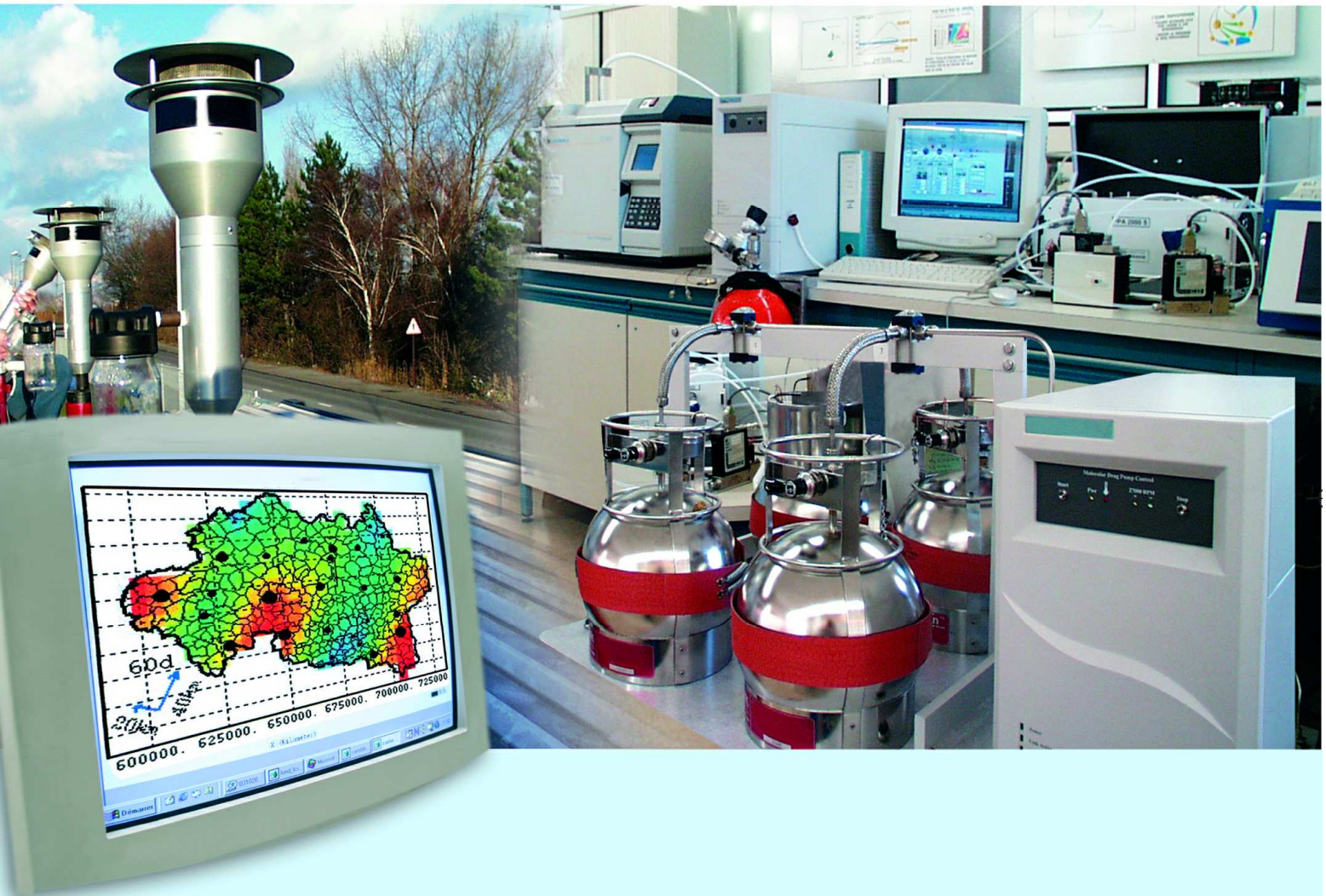




## Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air



Etude : Surveillance des HAP

(Rapport 1/2)

### **Caractérisation des zones non couvertes par le programme pilote HAP : campagne hivernale en Isère**

Novembre 2005 Version finale

Convention: 05000051

Eva LEOZ-GARZIANDIA



## 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'Ecole 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 des Préventions des Pollutions et des Risques du Ministère de l'Ecologie et du Développement Durable 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.**



Ministère de l'Ecologie  
et du Développement Durable

# **Caractérisation des zones non couvertes par le programme pilote HAP : Campagne hivernale en Isère**

Laboratoire Central de Surveillance  
de la Qualité de l'Air

## **Etude : Surveillance des HAP**

**Convention 05000051**

**Financée par la Direction des Préventions des Pollutions et des Risques  
(DPPR)**

Novembre 2005 Version finale

**N.GUILLAUMET, E.LEOZ-GARZIANDIA, ASCOPARG**

**N.BOCQUET**

Ce document comporte 24 pages (hors couverture et annexes).

	<b>Rédaction</b>	<b>Vérification</b>	<b>Approbation</b>
<b>NOM</b>	N.BOCQUET	E.LEOZ GARZIANDIA	M.RAMEL
<b>Qualité</b>	Unité Qualité de l'Air Direction des Risques Chroniques	Unité Qualité de l'Air Direction des Risques Chroniques	Responsable LCSQA/INERIS Direction des Risques Chroniques
<b>Visa</b>			



## TABLE DES MATIERES

<b>1. RESUMÉ.....</b>	<b>2</b>
<b>2. INTRODUCTION .....</b>	<b>3</b>
<b>3. CAMPAGNE DE PRÉLÈVEMENT À MEAUDRE.....</b>	<b>4</b>
3.1 Site de prélèvement .....	4
3.2 Déroulement de la campagne .....	4
3.3 Méthode analytique .....	5
3.4 Résultats .....	5
3.4.1 Influence de la température .....	8
3.4.2 Etude de contributions relatives.....	9
3.5 Les HAP oxygénés.....	11
3.6 Conclusion .....	12
<b>4. CAMPAGNE RÉALISÉE À GRENOBLE .....</b>	<b>13</b>
4.1 Sites de prelevement.....	13
4.2 Déroulement de la campagne .....	15
4.3 Méthode analytique .....	15
4.4 Résultats .....	15
4.4.1 Résultats de Grenoble: comparaison entre rondeau et frênes .....	15
4.4.2 Comparaison avec les résultats du programme pilote .....	20
4.4.3 Comparaison entre Grenoble et Méaudre .....	22
<b>5. CONCLUSION.....</b>	<b>24</b>
<b>6. LISTE DES ANNEXES .....</b>	<b>24</b>

## **1. RESUME**

Fin 2004 une campagne de prélèvement visant le chauffage domestique au bois s'est déroulée dans un village de l'Isère en collaboration avec ASCOPARG.

Cette campagne a été menée par l'INERIS sur une période de sept jours puis ASCOPARG a continué les prélèvements en réalisant huit prélèvements entre le 29 novembre 2004 et le 21 janvier 2005. Les concentrations mesurées sur cette période assez longue nous ont permis de mettre en évidence une influence véhiculaire diesel mais aussi une augmentation significative des concentrations des HAP en fonction de la baisse de la température (jusqu'à -15°C), que l'on peut attribuer à l'augmentation de la contribution de la source "chauffage domestique". Les concentrations rencontrées sont représentatives d'une zone urbaine alors que le site est considéré comme "rural" et la concentration moyenne en B(a)P dépasse la valeur cible de la IV<sup>ème</sup> directive fille concernant les HAP (1 ng/m<sup>3</sup> en moyenne annuelle).

Parallèlement à la campagne de l'Isère, ASCOPARG a réalisé un suivi des concentrations en HAP sur deux sites de Grenoble: un site trafic (étudié lors du programme pilote) et un site urbain de fond. Les données recueillies confirment les données issues du programme pilote. Les concentrations en HAP mesurées sur le site trafic et le site urbain de Grenoble ne nous permettent pas de mettre en évidence une réelle différence entre les deux sites. Il serait raisonnable de faire une étude sur toutes les saisons afin d'établir une moyenne annuelle de chaque site (les données sont déjà disponibles pour le site trafic). En période hivernale, il apparaît que les 2 sites de Grenoble présentent un dépassement de la valeur cible de la IV<sup>ème</sup> directive fille concernant les HAP (1 ng/m<sup>3</sup> en moyenne annuelle).

## **2. INTRODUCTION**

En 2004, les campagnes HAP du LCSQA sur les zones non couvertes par le programme pilote national de surveillance des HAP nous ont amenés à étudier l'influence du chauffage au bois sur les concentrations en HAP.

En juin 2004, une première campagne dans le Haut-Rhin à proximité d'une chaufferie à bois a été réalisée (Cf. INERIS DRC/AIRE-04-55268/NBo-n°1001). A la suite de cette campagne, nous n'avons pas pu déceler d'influence de la chaufferie sur les concentrations de HAP mesurées.

En novembre 2004, nous avons réalisé une campagne de prélèvement en étroite collaboration avec ASCOPARG dans le but d'étudier le chauffage domestique au bois. Les prélèvements ont eu lieu sur un site rural, dans la commune de Méaudre.

Parallèlement à cette campagne, ASCOPARG a mené une étude plus longue dans la continuité du programme pilote des HAP en investiguant 2 sites de Grenoble (trafic et urbain de fond).

Les résultats d'ASCOPARG nous ont été communiqués afin d'étudier les concentrations en HAP sur les 3 sites et de les comparer à celles observées lors du programme pilote.

### **3. CAMPAGNE DE PRELEVEMENT A MEAUDRE**

La campagne a été réalisée à Méaudre (Isère) en collaboration avec ASCOPARG. Ce site a été retenu suite à une enquête menée par ASCOPARG dans laquelle une forte utilisation du chauffage domestique au bois par la population a été mise en évidence.

#### **3.1 SITE DE PRELEVEMENT**

ASCOPARG a mis à notre disposition un de ses moyens mobiles afin d'y entreposer notre appareil. Une de leur remorque a été déposée sur une aire de jeu de la municipalité, située en contrebas de la route principale de Méaudre (Cf. figure 1).



**Figure 1:** *site de Méaudre*

La remorque a été équipée d'un préleveur grand volume DA-80 DIGITEL qui nous a permis de prélever les phases gazeuse et particulaire des HAP. Cet appareil a fonctionné à un débit de  $30\text{m}^3/\text{h}$  et était équipé d'une tête PM10. Les prélèvements ont duré 24 heures, les filtres et les mousses étaient changés en fin de chaque prélèvement.

#### **3.2 DEROULEMENT DE LA CAMPAGNE**

Dans un premier temps, l'INERIS a réalisé une campagne de 7 jours consécutifs. Dans un second temps, ASCOPARG a réalisé un prélèvement par semaine. Des problèmes techniques ont amené ASCOPARG à ne pas pouvoir maintenir ce planning. Malgré cela, il y a eu 8 prélèvements réalisés entre le 29 novembre 2004 et le 21 janvier 2005.



Sur l'ensemble de la période, le temps était ensoleillé, excepté un épisode pluvieux le 19 novembre.

### 3.3 METHODE ANALYTIQUE

La totalité des analyses de la première période d'investigation correspondant aux prélèvements journaliers des HAP et des HAP oxygénés a été réalisée à l'INERIS. Les autres analyses (du 29 novembre 2004 au 21 janvier 2005) ont été réalisées par le laboratoire travaillant avec ASCOPARG et ayant participé au programme pilote, qui nous a transmis les résultats.

La méthode analytique utilisée par l'INERIS a été la suivante:

- tous les filtres et les mousses (PUF) ont été extraits par ASE (Accelerate Solvent Extraction) avec du dichlorométhane.
- la concentration de l'extrait a été effectuée sous flux d'azote, avec reprise par volume connu d'acétonitrile.
  
- Analyse des HAP :

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

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

La limite de quantification dans les conditions d'analyse pour cette campagne, est de l'ordre de 1 et 10 ng/ml selon les composés, soit entre 0.002 à 0.02 ng/m<sup>3</sup>.

- Analyse des HAP oxygénés :

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

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

La limite de quantification dans les conditions d'analyse pour ces campagnes, est de l'ordre de 2.5 à 8 ng/ml, soit entre 0.008 à 0.025 ng/m<sup>3</sup>.

Des blancs de laboratoire et des blancs de terrain ont été effectués.

### 3.4 RESULTATS

Tous les résultats obtenus sont présentés en annexe 1.

Dans les graphiques suivants, sont présentés:

- les résultats obtenus pour les HAP totaux (phase gazeuse et particulaire) par prélèvement individuel; sur le graphique 1, les HAP les plus légers, et sur le graphique 2, les HAP les plus lourds.

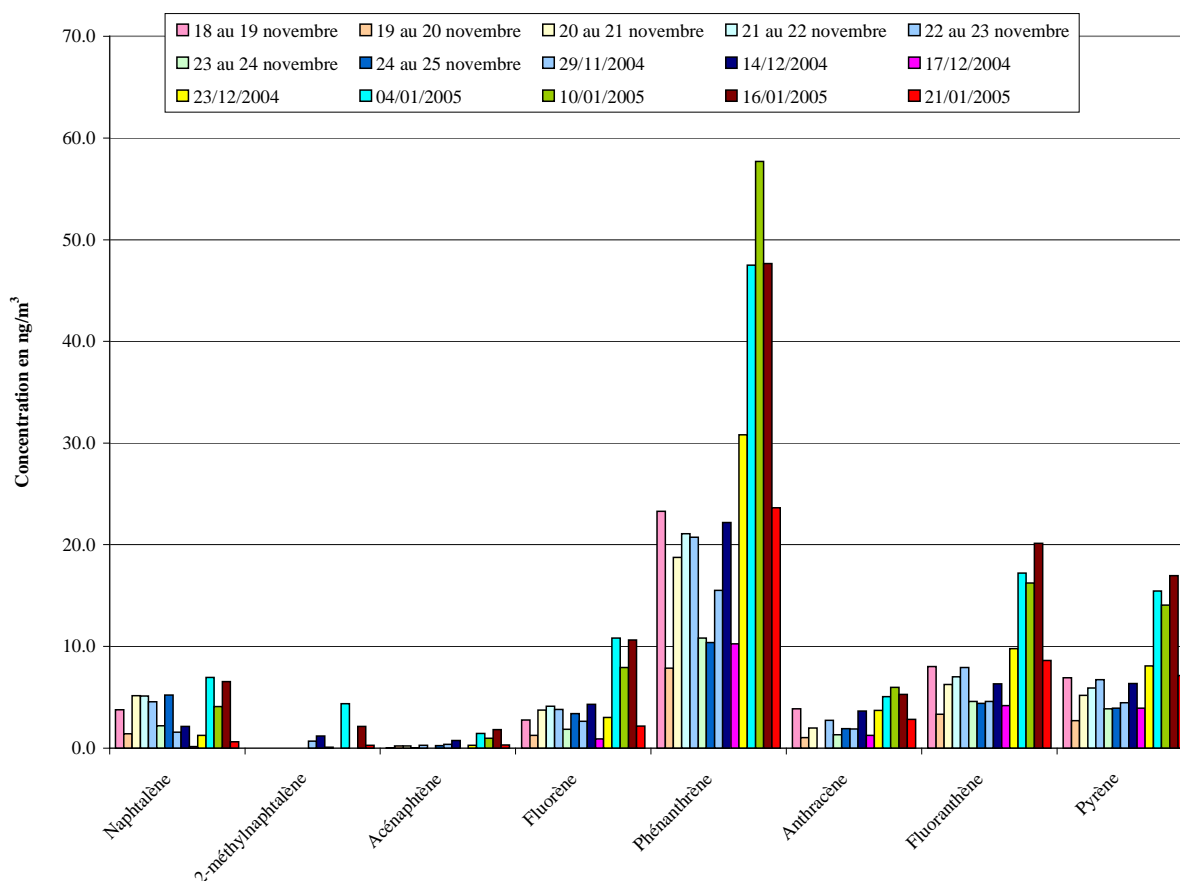
Sur ces deux graphiques, trois prélèvements se détachent nettement:

- Le 4/01/05
- Le 10/01/05
- Le 16/01/05

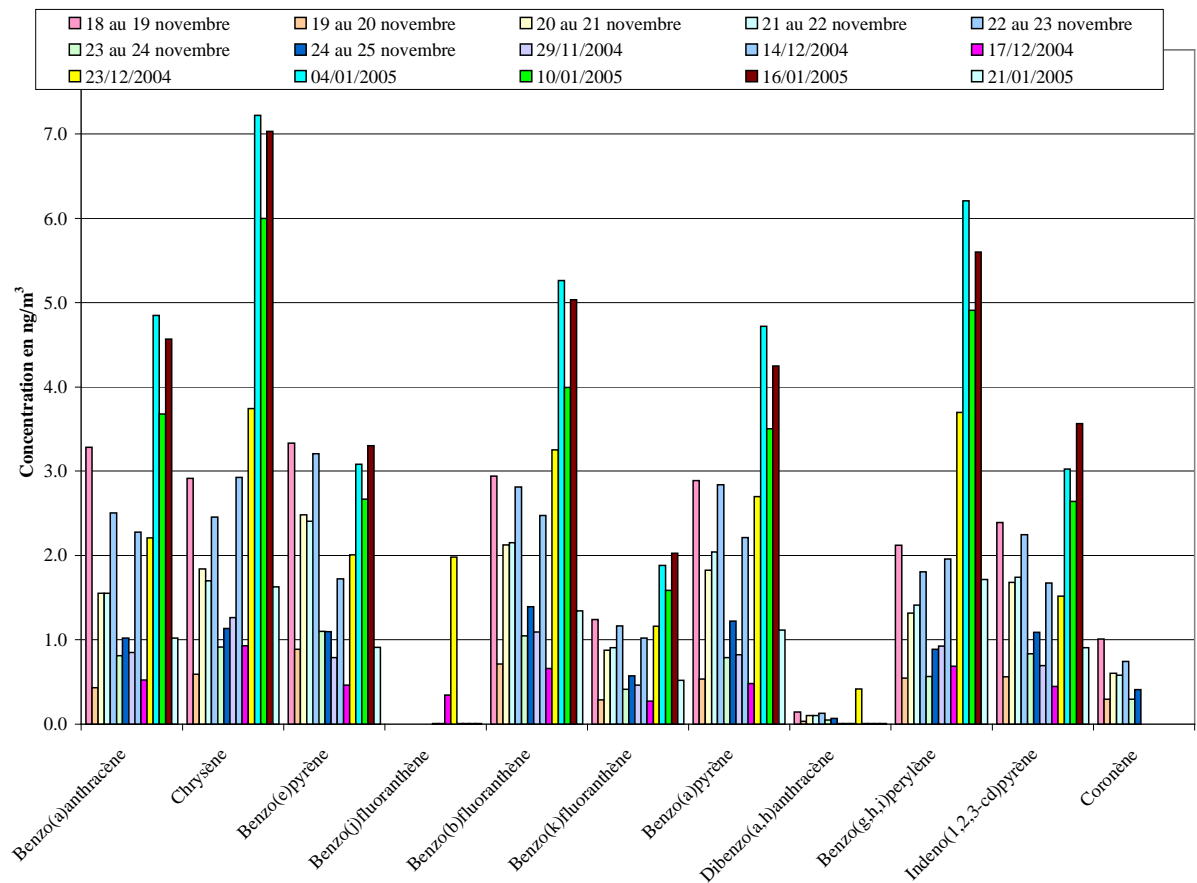
- les valeurs moyennes, sur toute la durée de la campagne (HAP totaux), pour les composés légers (graphique 3) et les composés lourds (graphique 4).

Les concentrations les plus élevées en composés légers sont observées pour le PHE puis pour le FL et enfin pour le PY.

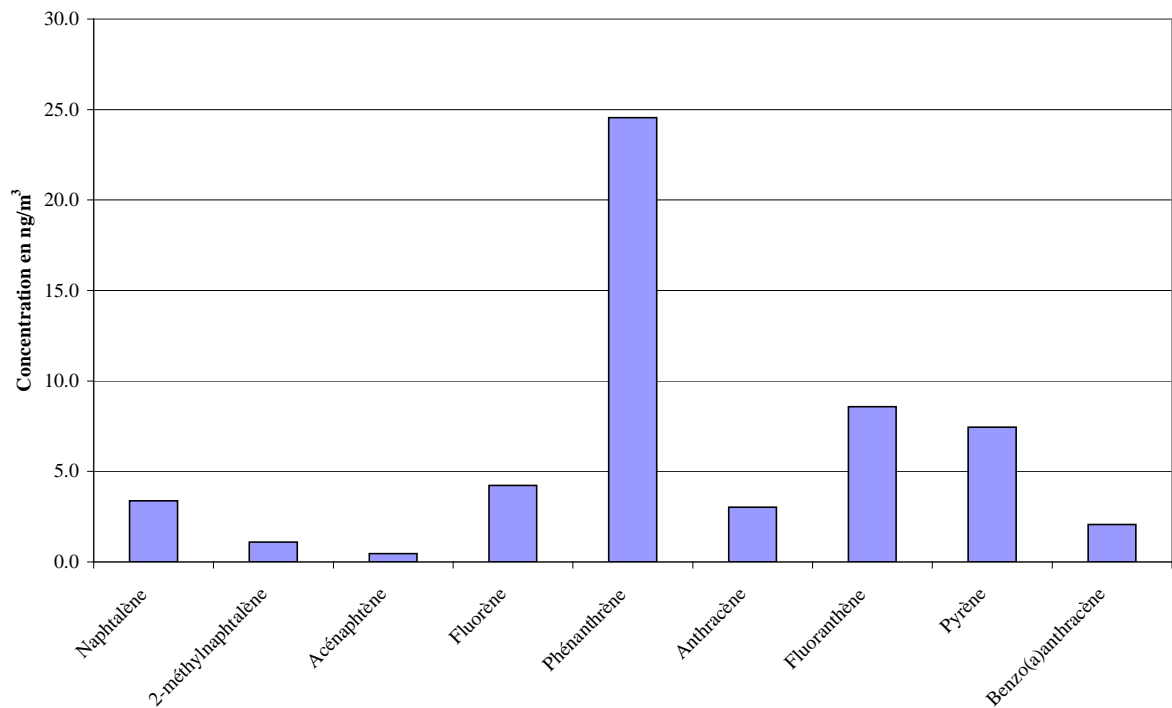
Les concentrations en composés lourds sont relativement homogènes. Il apparaît que la concentration moyenne en B(a)P (2,13 ng/m<sup>3</sup> sur la période d'étude) est supérieure à la valeur préconisée dans la directive européenne (1 ng/m<sup>3</sup> en moyenne annuelle, Directive 2004/107 concernant les HAP et les métaux lourds dans l'air ambiant)



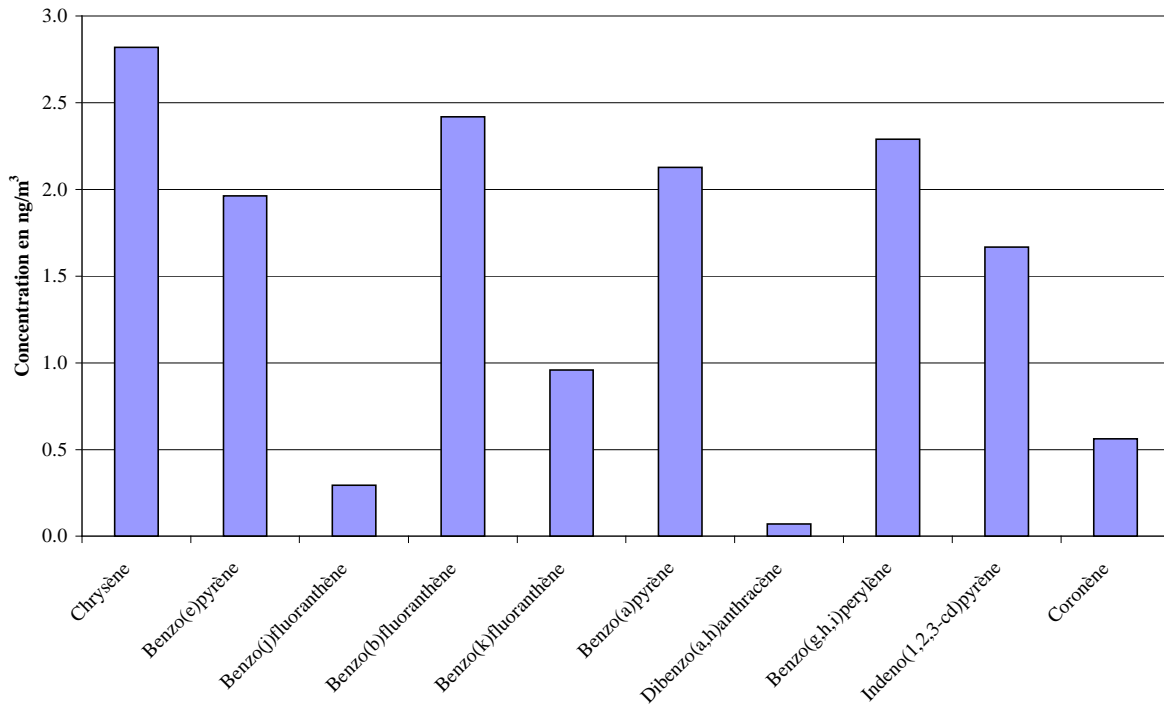
**Graphique 1: Concentration en HAP totaux en ng/m<sup>3</sup>**



**Graphique 2: Concentration en HAP totaux en ng/m<sup>3</sup>**



**Graphique 3: Moyennes des composés légers en ng/m<sup>3</sup>**



**Graphique 4: Moyenne des composés lourds en ng/m<sup>3</sup>**

### 3.4.1 INFLUENCE DE LA TEMPERATURE

Le graphique 5 présente l'évolution de la température ainsi que la somme des HAP pour chaque prélèvement. On peut noter une très bonne corrélation entre la chute des températures observées entre le 4 et le 16 janvier 2005 et la hausse des HAP totaux sur la même période.

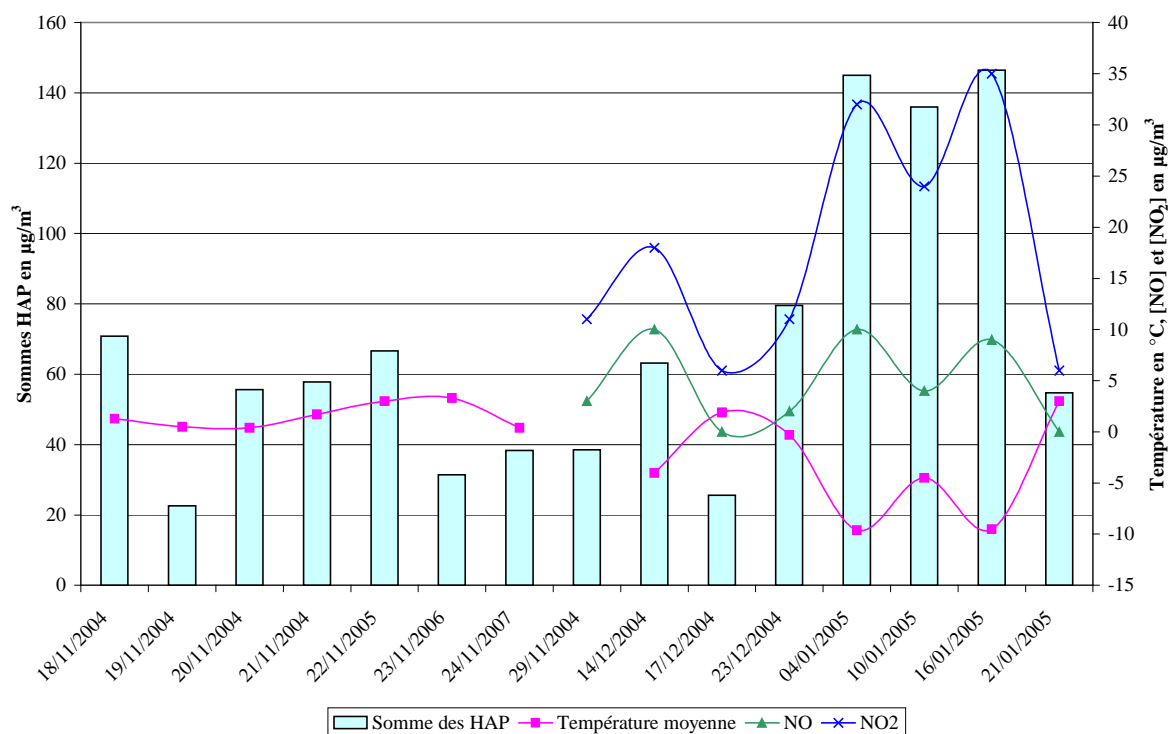
Compte tenu de la configuration du site (site rural), l'augmentation de la concentration des HAP corrélée à la baisse de la température ambiante peut être attribuée à l'augmentation du chauffage domestique.

De plus, la corrélation entre le chrysène (CHR), HAP considéré comme traceur de la combustion du bois, et la température ambiante est élevée et tend à augmenter lors de la période la plus froide.

- $R^2 = 0.80$  sur toute la période
- $R^2 = 0.85$  entre le 14 décembre 2004 et le 21 janvier 2005

Le graphique du suivi de la température entre le 1<sup>er</sup> décembre 2004 et le 21 janvier 2005 (Cf. annexe 2) nous montre qu'à partir du 21 décembre, la température a commencé à chuter. Lorsqu'on regarde plus en détail la température entre le 3 et le 21 janvier (Cf. annexe 2) on constate que les températures étaient particulièrement basses, avec des minima pouvant atteindre:

- 4 janvier: -14°C
- 10 janvier: -8°C
- 16 janvier: -15°C



**Graphique 5:** Evolution de la température, de la somme des HAP, du NO et du NO<sub>2</sub> pour chaque prélèvement

### 3.4.2 ETUDE DE CONTRIBUTIONS RELATIVES

Certains HAP sont indicateurs de sources. On trouve dans le tableau 1 les HAP indicateurs d'émissions des véhicules essence, diesel et du chauffage au bois.

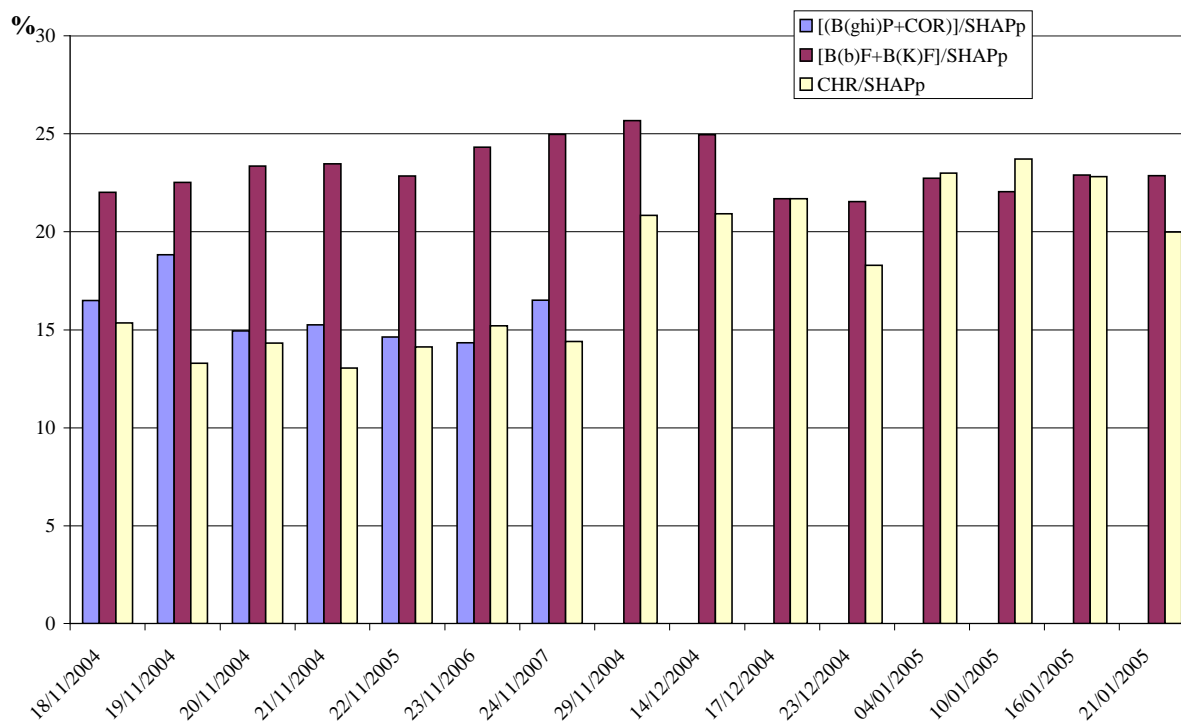
Les HAP en caractères gras sont prédominants pour les sources indiquées.

HAP	Sources
<b>B(ghi)P, COR, IND</b>	Véhicules essence
<b>B(b)F, B(k)F, CHR</b>	Véhicules diesel
<b>CHR, B(b)F, B(k)F</b>	Combustion bois

**Tableau 1:** Indicateurs de sources (d'après Aceves, 1994; Rossell i Melè, 1989)

L'étude des rapports suivants permet d'émettre des hypothèses quant à l'origine des HAP mesurés lors de cette campagne.

- $[B(ghi)P+COR] / \Sigma HAP_p$
- $[B(b)F+B(k)F] / \Sigma HAP_p$
- $CHR / \Sigma HAP_p$



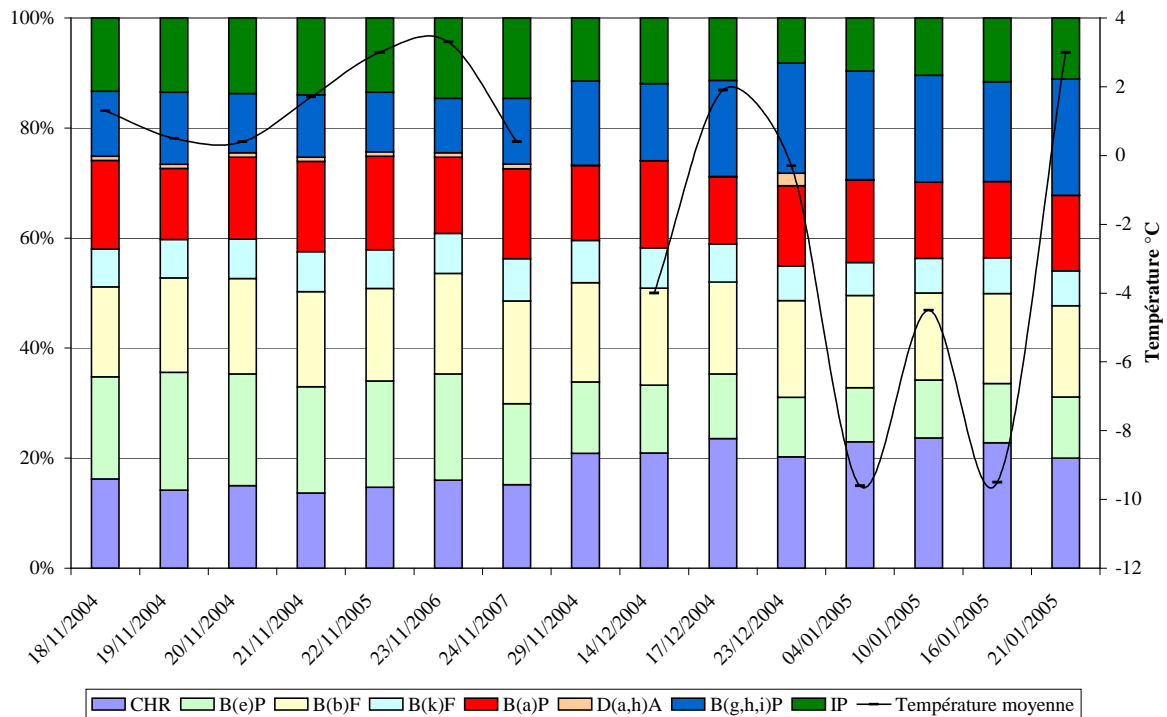
**Graphique 6:** Représentation de la contribution relative des HAP indicateurs de source par rapport à la somme des HAP particulaires

Les 3 rapports ne sont disponibles que pour la première partie des essais. Nous ne disposons pas des données pour le COR lors des essais de la seconde phase.

Dans la première partie de l'étude (du 18 au 25 novembre 2004), on note une nette prépondérance du rapport  $[B(b)F+B(k)F] / \Sigma HAPp$ . L'influence du trafic véhiculaire diesel paraît donc majoritaire.

Dans la seconde partie de l'étude (à partir 29 novembre 2004) on peut noter des évolutions dans les rapports représentés sur le graphique 6.

On observe une stabilité du rapport  $[B(b)F+B(k)F] / \Sigma HAPp$  et une nette augmentation du rapport  $CHR / \Sigma HAPp$ . On peut supposer que le trafic véhiculaire diesel ne varie pas et que c'est le chauffage domestique au bois qui augmente.



**Graphique 7: Contribution relative des HAP particuliers**

Sur le graphique 7 sont représentées les contributions relatives des HAP particuliers communs aux prélèvements, à l'exception du COR qui n'a pas été mesuré pas ASCOPARG.

Le B(a)P, le B(k)F et le B(b)F ont des abondances relativement homogènes sur les deux périodes étudiées.

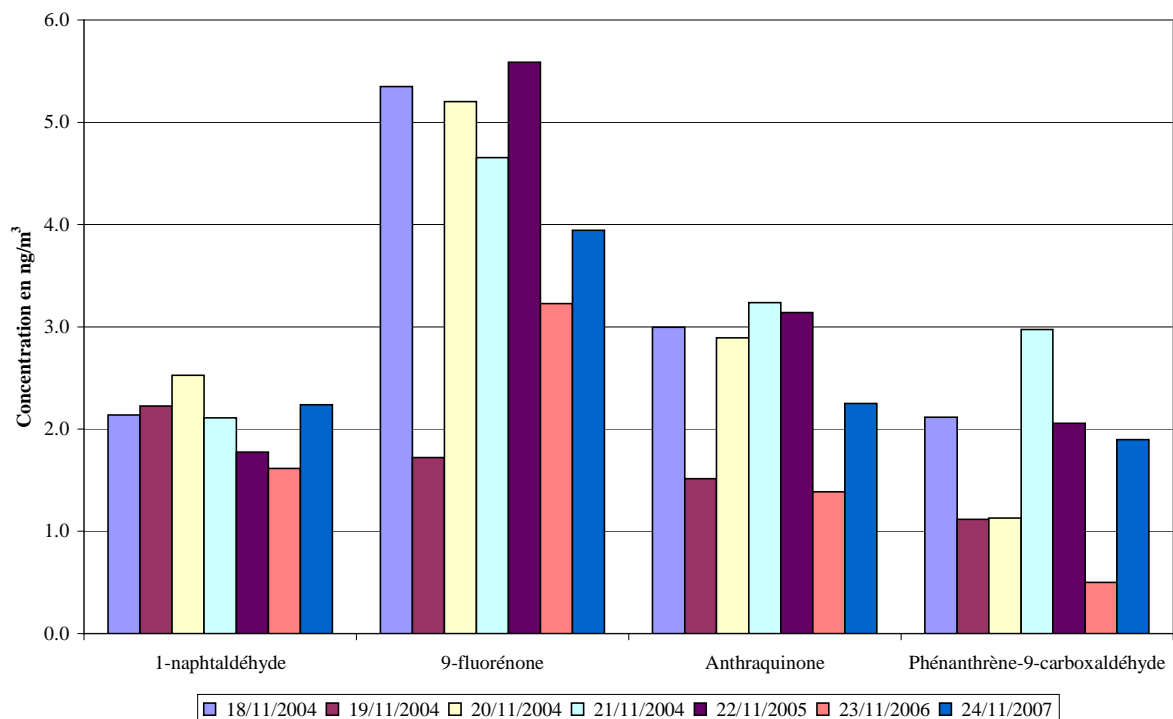
On note une nette évolution des abondances pour les autres composés en fonction des températures: IP et B(e)P diminuent fortement quand les températures moyennes baissent alors que B(ghi)P et CHR augmentent.

### 3.5 LES HAP OXYGENES

En ce qui concerne les HAP oxygénés, le graphique présente les résultats obtenus à Méaudre du 18 au 25 novembre 2004.

La fluorénone est le composé majoritaire pour chaque échantillon.

Le prélèvement du 19 au 20 novembre présente des concentrations faibles pour chaque composé recherché, ce qui peut être expliqué par la forte pluviométrie observée le 19 novembre.



**Graphique 8: Concentrations des HAP oxygénés à Méaudre**

Dans le tableau 2 sont regroupés les concentrations moyennes des HAP oxygénés mesurées par l'INERIS sur différents types de sites au cours de ces dernières années.

	Industriel 2002	Méaudre 2004	Faux industriel 2003	Faux industriel 2002	Trafic 2002	Urbain 2002	Fond 2002
NAPal	5.13	2.09	0.58	0.262	0.370	0.411	0.038
FLNone	7.70	4.24	3.54	1.868	1.471	1.486	0.729
ANTqnone	6.66	2.49	1.09	0.640	0.949	1.184	0.083
PHEcaral	3.423	1.69	0.125	0.109	0.087	0.058	0.113

La dénomination "faux industriel" s'applique ici à des sites visant à caractériser des fonderies. Les prélèvements ne se sont pas déroulés directement sur les sites industriels mais aux alentours, sous les vents dominants.

Le composé majoritaire est systématiquement la fluorénone quel que soit le site. Les concentrations en HAP oxygénés mesurées sur le site de Méaudre sont inférieures à celles mesurées sur le site industriel mais elles sont systématiquement supérieures aux concentrations mesurées sur les autres types de sites, notamment sur le site de fond.

### 3.6 CONCLUSION

Lors de cette campagne, nous avons observé l'influence du trafic véhiculaire diesel sur une partie de nos prélèvements et nous avons pu mettre en évidence l'augmentation de la contribution de certains HAP au mélange total lors des



périodes les plus froides. Les caractéristiques du site de prélèvement ainsi que la nature des HAP observés:

- dominance du chauffage au bois (donnée fournie par la mairie)
- village de moyenne montagne ayant des températures pouvant atteindre -15°C sur la période concernée
- population peu importante (1140 habitants pour une superficie de 3387 ha).
- augmentation de la contribution du chrysène (marqueur de la combustion du bois)

confirment l' influence non négligeable du chauffage domestique au bois dans les concentrations observées lors de la période la plus froide.

Il serait intéressant de réaliser une étude sur une durée plus longue (couvrant plusieurs saisons) afin de réaliser des comparaisons plus pertinentes et de coupler les résultats obtenus avec des données telles que les particules, les NOx et l'ozone.

## **4. CAMPAGNE REALISEE A GRENOBLE**

Parallèlement à la campagne de Méaudre, une série de prélèvements a été réalisée à Grenoble sur deux sites (trafic et urbain).

### **4.1 SITES DE PRELEVEMENT**

ASCOPARG a réalisé une série de prélèvements sur 2 stations de mesure qui sont:

- Le Rondeau: site trafic (Cf. figure 2), site utilisé lors du programme pilote national HAP, situé à proximité d'autoroutes
- Les Frênes: site urbain de fond (Cf. figure 3), situé dans une zone piétonne, au-dessus d'une école, entourée d'immeubles d'habitation.



**Figure 2:** *site du Rondeau*



**Figure 3:** *Site de Frêne*

Un DA 80 Digital a été installé dans la station trafic du Rondeau et un autre DA 80 a été installé sur le toit de l'école maternelle qui abrite la station Les Frênes.

Ces deux appareils étaient équipés d'une tête PM10 et prélevaient à 30m<sup>3</sup>/h les phases gazeuse et particulaire des HAP. Les prélèvements ont duré 24 heures; les filtres et mousses étaient changés à la fin de chaque prélèvement

## 4.2 DEROULEMENT DE LA CAMPAGNE

Dix prélèvements ont eu lieu entre le 22 novembre 2004 et le 10 janvier 2005. Les deux premiers prélèvements se sont déroulés durant la semaine 48 (la semaine où l'INERIS est intervenu à Méaudre); les prélèvements suivants ont eu lieu à raison d'un prélèvement par semaine, tous les 6 jours.

## 4.3 METHODE ANALYTIQUE

Les deux premiers prélèvements ont été analysés à l'INERIS (Cf. 3.3) et les prélèvements suivants ont été analysés par CARSO, le laboratoire travaillant habituellement avec ASCOPARG et ayant participé au programme pilote. Les résultats des analyses ont été donnés globalement sans distinction entre la phase gazeuse et la phase particulaire.

La méthode analytique utilisée par CARSO a été la suivante:

- tous les filtres et les mousses (PUF) ont été extraits par ASE (Accelerate Solvent Extraction) avec du dichlorométhane.
- la concentration de l'extrait a été effectuée sous flux d'azote, avec reprise par volume connu d'acétonitrile.
- Analyse des HAP :

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

19 HAP ont été analysés : *naphtalène (NAP)*, *2-méthylnaphtalène (2MeNAP)*, *acénaphène (AC)*, *fluorène (FLN)*, *phénanthrène (PHE)*, *anthracène (ANT)*, *fluoranthène (FL)*, *pyrène (PY)*, *2-méthylfluoranthène (2MeF)*, *benzo(a)anthracène (B(a)A)*, *chrysène (CHR)*, *benzo(e)pyrène (B(e)P)*, *benzo(b)fluoranthène (B(b)F)*, *benzo(k)fluoranthène (B(k)F)*, *benzo(J)fluoranthène (B(J)F)*, *benzo(a)pyrène (B(a)P)*, *dibenzo(a,h)anthracène (DB(ah)A)*, *benzo(g,h,i)perylène (B(ghi)P)*, et *indeno(1,2,3-cd)pyrène (IP)*.

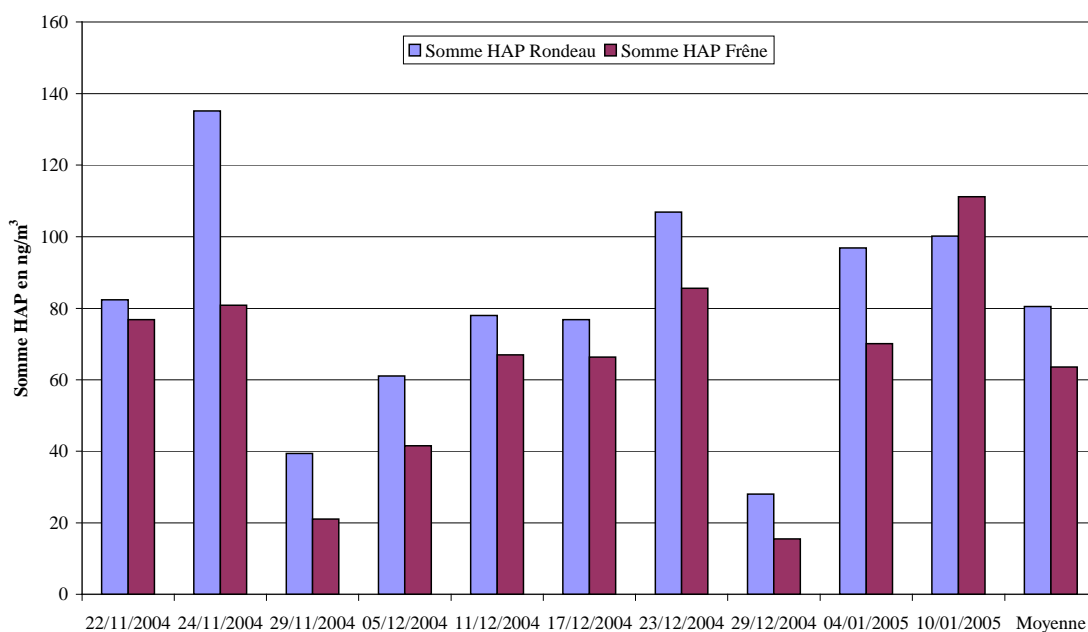
## 4.4 RESULTATS

Tous les résultats sont donnés en annexe 3.

### 4.4.1 RESULTATS DE GRENOBLE: COMPARAISON ENTRE RONDEAU ET FRENES

Sur le graphique 9, sont représentées en parallèle, pour les deux sites, les sommes des HAP de chacun des prélèvements.

Deux échantillons se distinguent des autres: les prélèvements du 29/11/04 et celui du 29/12/04.

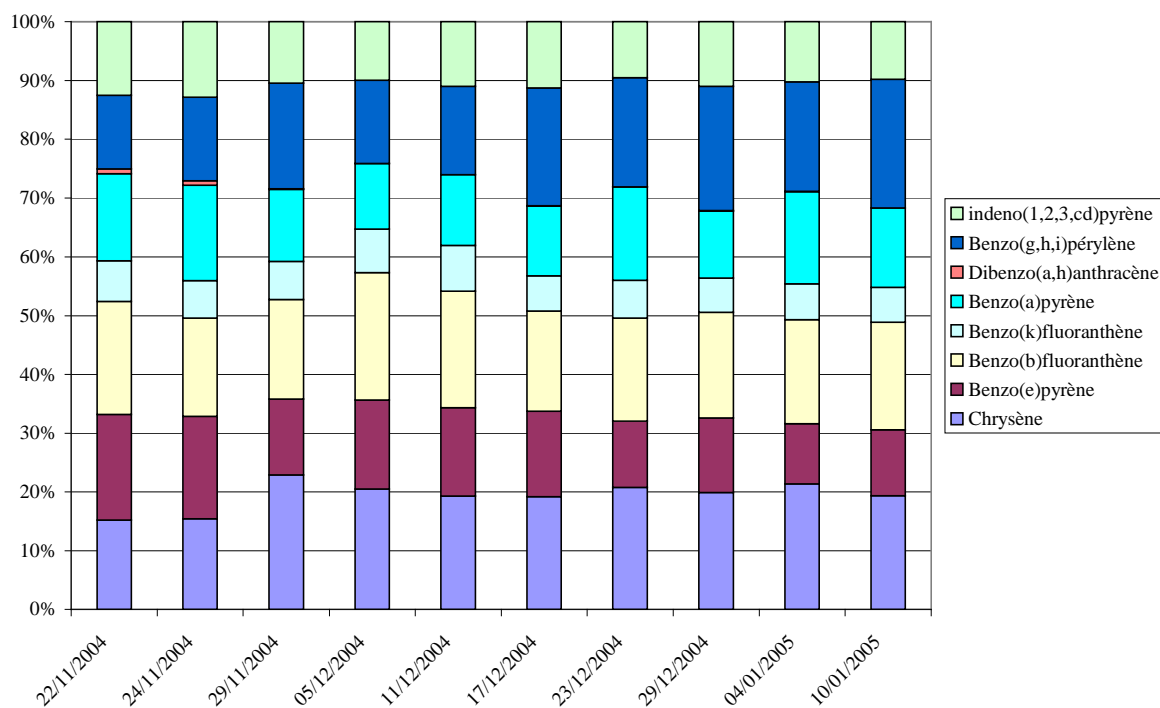


**Graphique 9:** Somme des HAP prélevés sur les deux sites de Grenoble

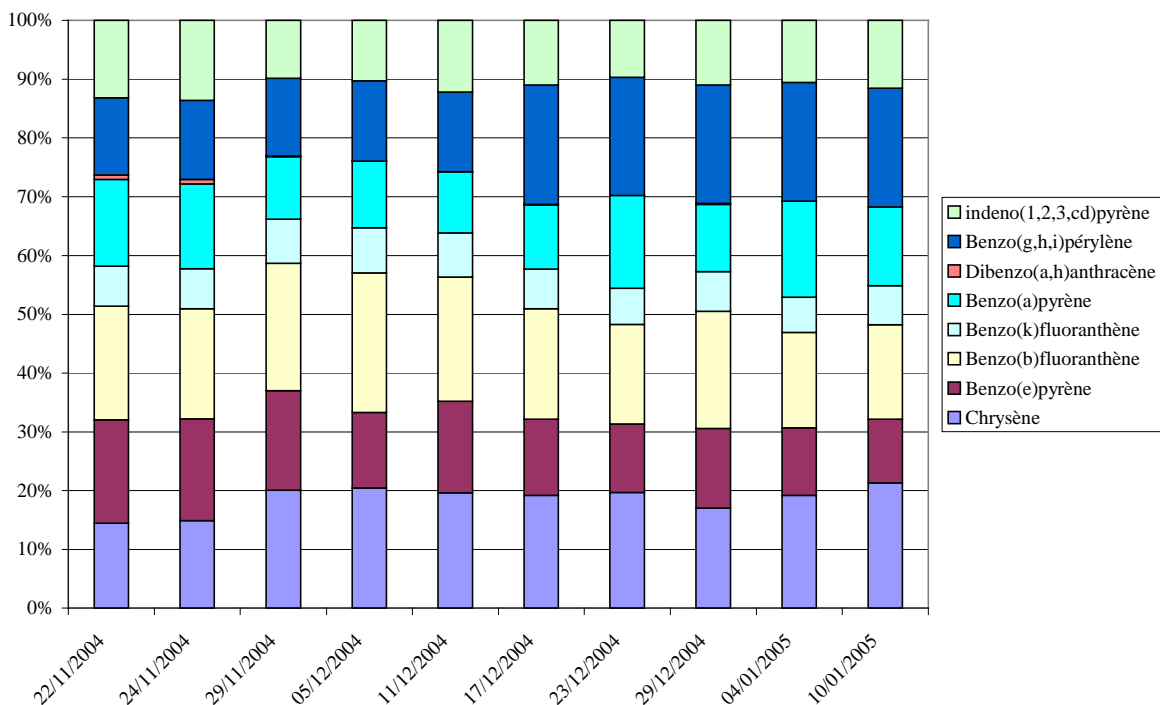
Les données météorologiques nous indiquent que la pluviométrie (Cf. annexe 5) enregistrée durant les prélèvements est très faible. Il n'a été mesuré que 3 jours de forte pluviométrie (les 29/11, 17/12 et 29/12 2004). La pluviométrie peut expliquer les faibles résultats obtenus les 29/11 et 29/12 2004. Le 17/12/2004 étant un jour de fort trafic du fait des départs en vacances, les concentrations en HAP auraient pu être beaucoup plus élevées que celles mesurées malgré la pluie enregistrée ce jour.

La différence observée entre les moyennes des deux sites ( $16 \text{ ng/m}^3$ ) ne paraît pas significative bien que les sites soient de typologie différente (trafic et urbain de fond).

Sur les graphiques 10 et 11, on peut voir les contributions relatives des HAP lourds pour les 2 sites. Les profils sont sensiblement identiques.

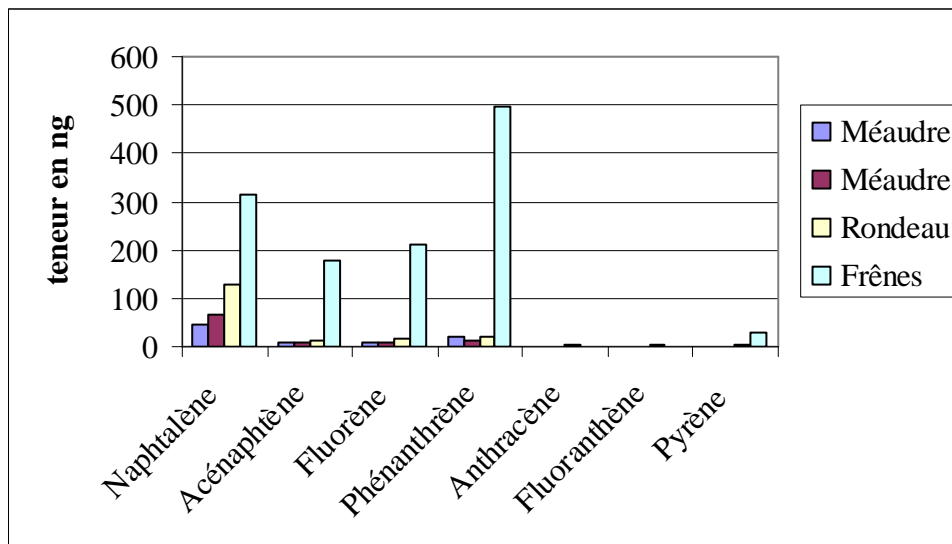


**Graphique 10 : Contributions relatives des HAP "lourds" sur le site du Rondeau**

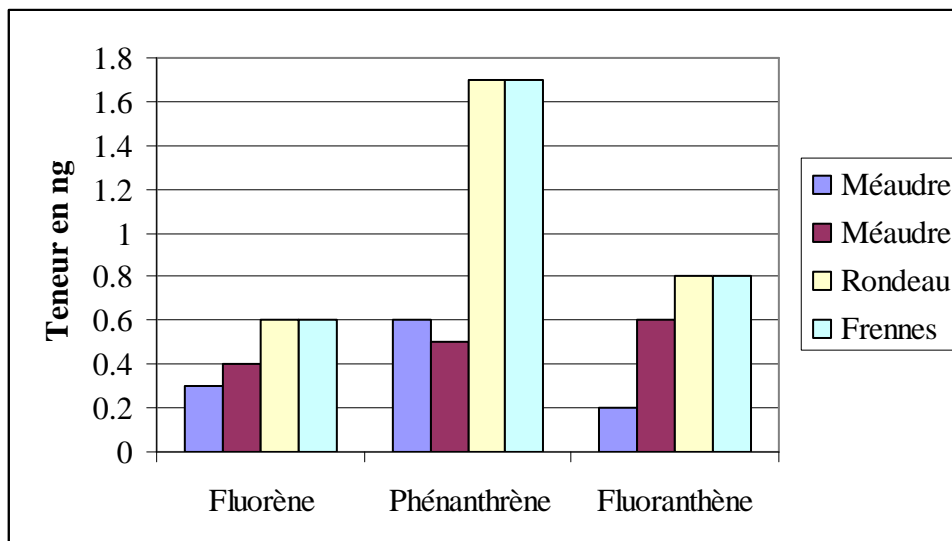


**Graphique 11: Contribution relative des HAP "lourds" sur le site de Frêne**

L'étude des blancs réalisée lors de ces prélèvements met en évidence une contamination des mousses sur le site de "Les Frênes" (Cf. graphique 12). En effet dans le document de recommandations concernant le prélèvement et analyse des HAP (rapport LCSQA 2004 INERIS-DRC/AIRE-05-55268-Ele-n°78), il est indiqué que les concentrations trouvées dans les blancs doivent être inférieures à 50ng pour le PHE et 5ng pour les autres HAP.



**Graphique 12:** Teneurs en HAP mesurées dans les blancs de mousse



**Graphique 13:** Teneurs en HAP mesurées dans les blancs de filtre

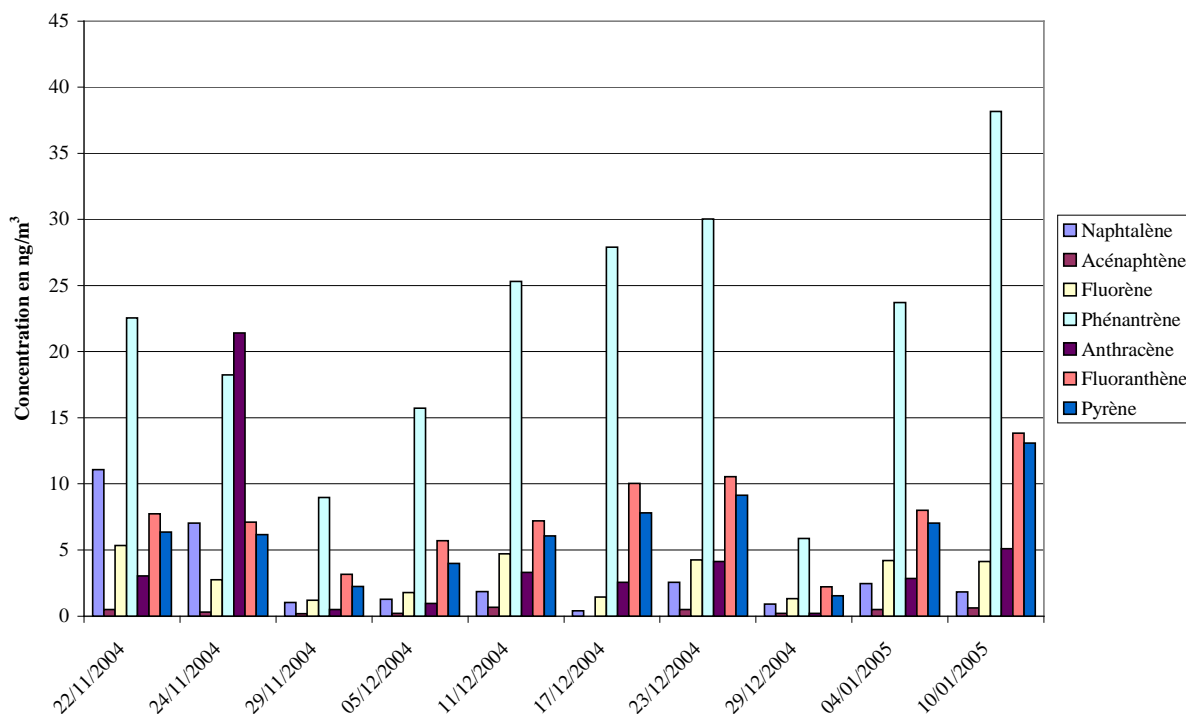
Il n'en est pas de même pour les blancs de filtres où les teneurs observées à Fresnes sont sensiblement du même ordre de grandeur que celles observées par ailleurs (graphique 13). Après recherche, nous n'avons pu identifier de cause probable de contamination. Nous avons décidé en commun accord avec

ASCOPARG de ne pas éliminer les échantillons dans la mesure où la pollution n'a été vue que sur le blanc de mousse.

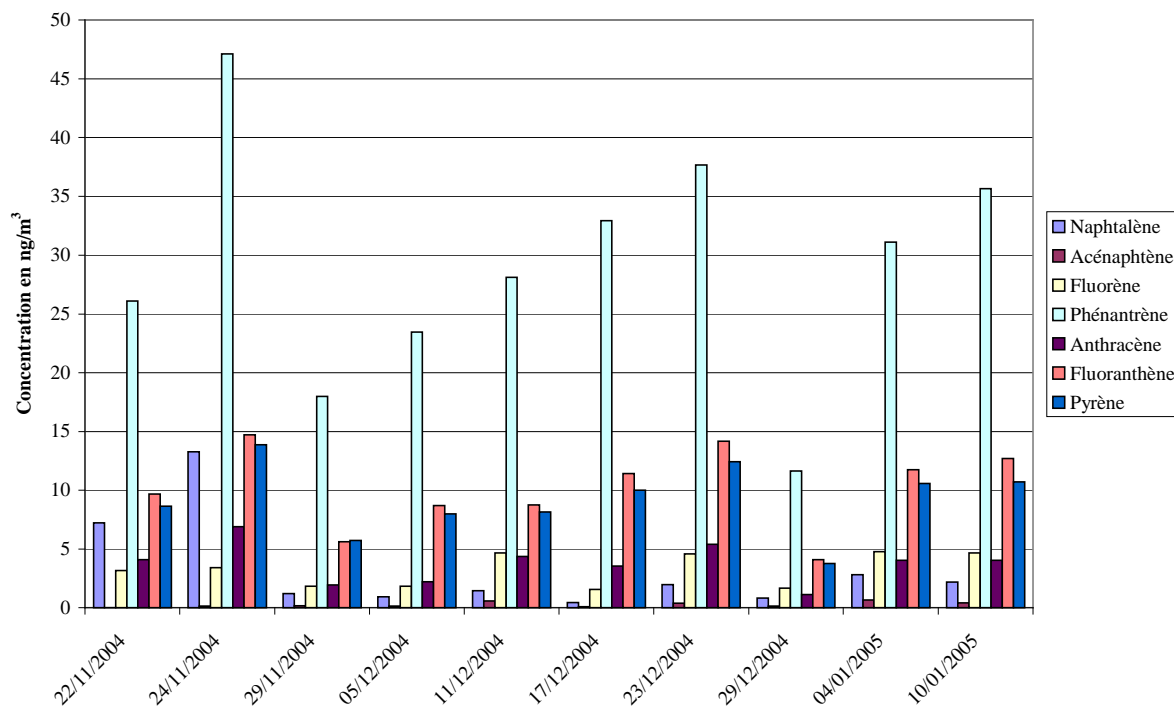
Comme on peut le voir sur les graphiques 14 et 15, le composé léger majoritaire est le PHE, suivi du FL et du PY (composés marqueurs des véhicules diesel).

On retrouve sur les deux sites le même profil de concentration alors que les sites sont différents, le PHE étant plus élevé au Rondeau (site trafic) qu'à Frênes (site urbain).

Les deux sites étudiés sont sous l'influence de sources multiples (trafic et chauffage domestique). L'étude de la contribution relative des HAP indicateurs de source par rapport à la somme des HAP particuliers n'a pas permis de mettre en évidence une source prédominante.



**Graphique 14:** Concentrations en HAP "légers" sur le site de Frênes



**Graphique 15:** Concentrations en HAP "légers" sur le site de Rondeau

#### 4.4.2 COMPARAISON AVEC LES RESULTATS DU PROGRAMME PILOTE

Lors du programme national de surveillance des HAP dans l'air ambiant, 5 sites trafic et 5 sites urbains ont été étudiés.

Il s'agit ici de comparer les sommes des HAP totaux mesurées sur chaque site aux sommes des HAP totaux mesurées à Grenoble.

##### Sites trafic

Dans le tableau 3 sont regroupées les données correspondantes aux mois de novembre, décembre et janvier pour chaque site impliqué.

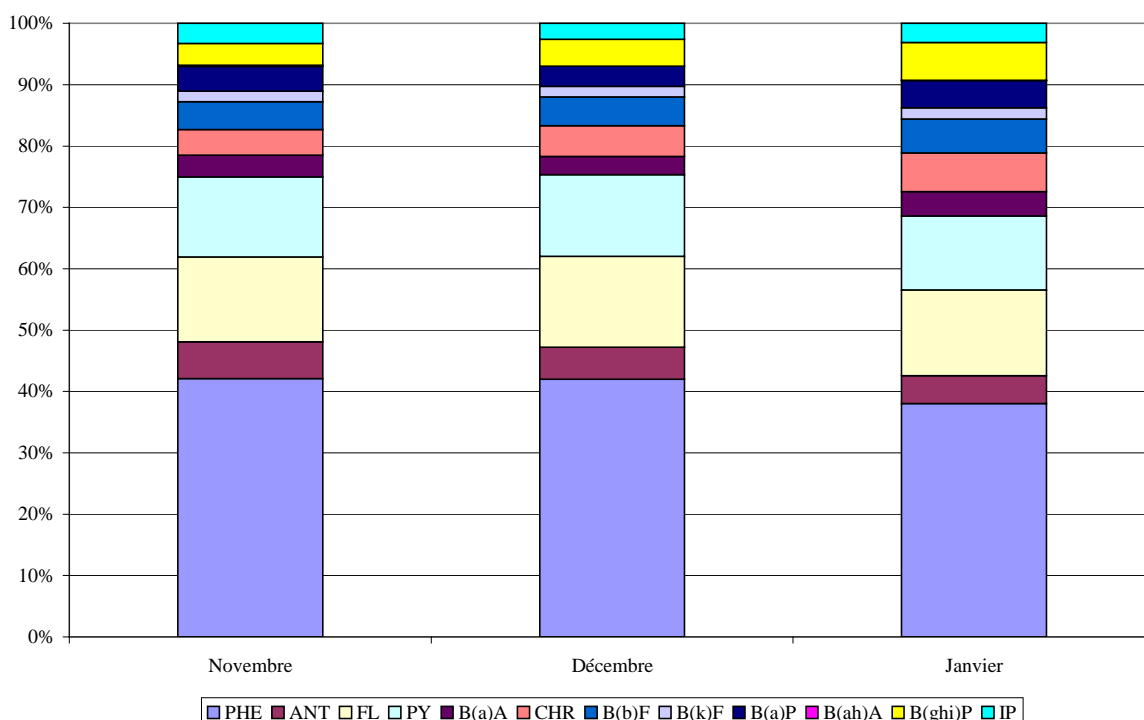
$\Sigma$ HAP totaux ng/m <sup>3</sup>	Novembre	Décembre	Janvier
<b>Rondeau (2004-2005)</b>	<b>72.22</b>	<b>63.71</b>	<b>87.87</b>
Rondeau (2001-2002)	37.99	65.38	79.69
Rondeau (2002-2003)	41.07	68.14	81.26
AIRCOM (2001-2002)	47.63	54.71	48.98
AirParif porte d'Auteuil (2002)	62.62		65.87
Arema LM Pasteur (2002-2003)	28.42	36.46	61.92
Coparly (2002-2003)	79.84	117.41	94.96

**Tableau 3:** Somme des HAP totaux sur les sites trafic (Phase pilote HAP)



Les concentrations mesurées lors de cette campagne sont en adéquation avec celles mesurées pendant le programme pilote. Comme lors de la conclusion du rapport "Programme pilote national de surveillance des HAP" ( E.LEOZ, INERIS, 2003), les concentrations en HAP totaux observées sur le site du Rondeau pour la campagne 2004-2005 sont les plus fortes, après celles de Coparly.

Dans le graphique 16 sont représentés les profils des HAP obtenus en réalisant une moyenne mensuelle des données. Les profils mensuels des 3 mois de mesures sont sensiblement les mêmes. On note une nette prépondérance des HAP légers (3 à 4 cycles) qui représentent entre 70 et 75% des HAP.



**Graphique 16:** Profils des HAP totaux sur le site le Rondeau

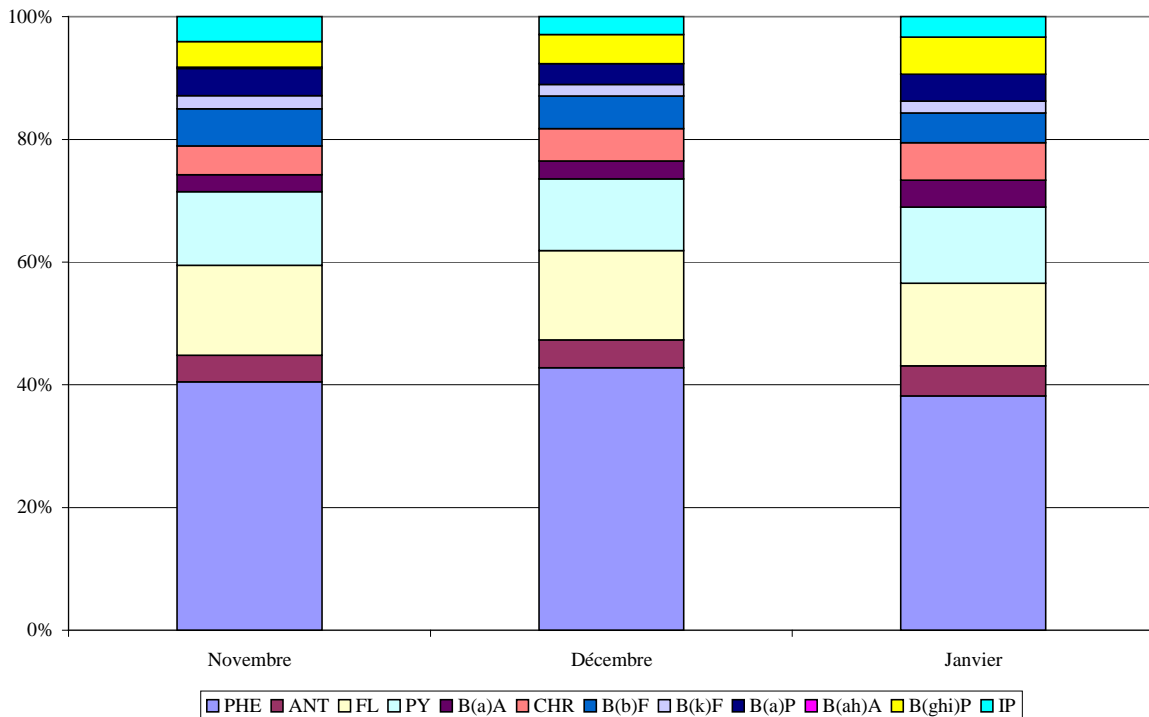
### Sites urbains

Dans le tableau 4 sont regroupées les données correspondantes aux mois de novembre, décembre et janvier pour chaque site impliqué.

$\Sigma$ HAP totaux ng/m <sup>3</sup>	Novembre	Décembre	Janvier
<b>Frênes (2004-2005)</b>	<b>47.53</b>	<b>49.02</b>	<b>81.06</b>
Airmaraix (2001-2002)	38.03	37.18	40.7
Air Paris les Halles (2002-2003)	24.27	32	27.36
Arema LM Marcq (2002-2003)	36.82	43.46	74.86
Atmo Poitou-Charentes (2001-2002)	30.99	23.01	10.81
Atmo Poitou-Charentes (2002-2003)	20.59	25.51	31.23

**Tableau 4:** Somme des HAP totaux sur les sites urbains (Phase pilote HAP)

Le site urbain de Grenoble a les concentrations les plus élevées des sites urbains étudiés.



**Graphique 17: Profils des HAP totaux sur le site Les Frênes**

Dans le graphique 17 sont représentés les profils des HAP obtenus en réalisant une moyenne mensuelle des données. Les profils mensuels des 3 mois de mesures sont sensiblement identiques. Comme pour le site trafic, les HAP à 3 ou 4 cycles représentent entre 70 et 75% des HAP.

#### 4.4.3 COMPARAISON ENTRE GRENOBLE ET MEAUDRE

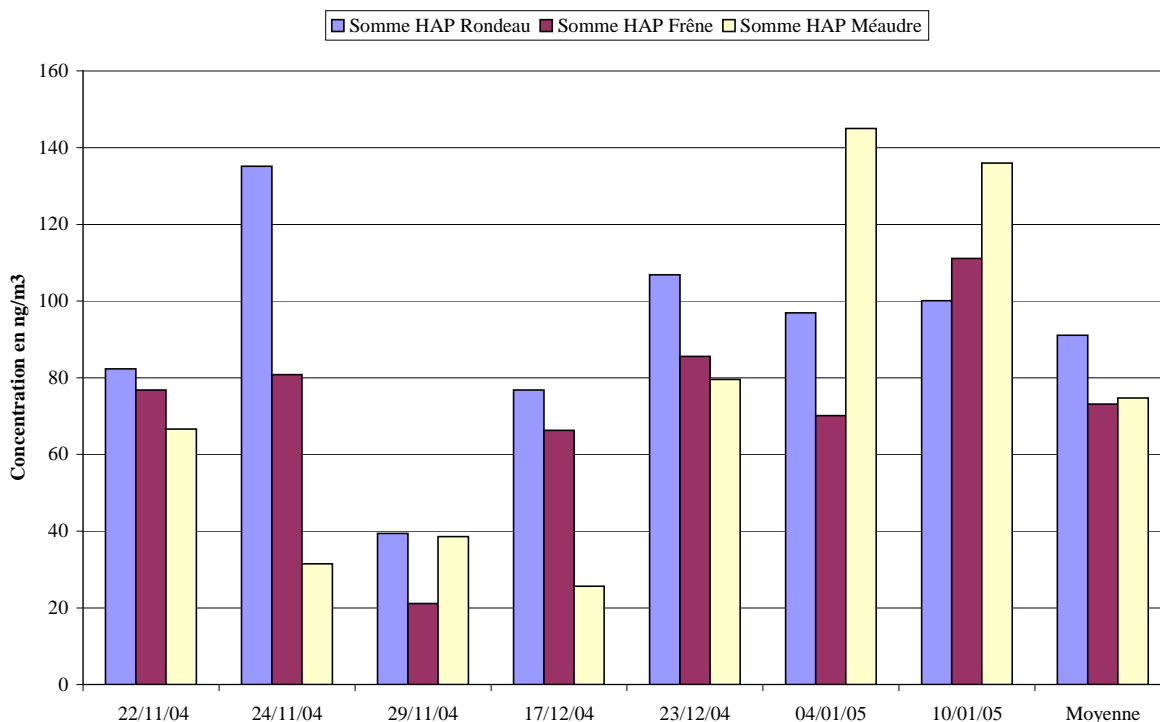
Nous avons vu précédemment que Méaudre, qui est un site rural, présentait des teneurs en HAP relativement élevées.

Le graphique 18 nous montre la comparaison des sommes des HAP totaux entre les 3 sites, rural, trafic et urbain de fond.

Les concentrations moyennes obtenues pendant la durée de cette étude montrent que la concentration moyenne en HAP totaux sur le site de Méaudre est proche des moyennes obtenues sur les sites trafic et urbain de Grenoble.

Les 5 premiers prélèvements indiquent que la concentration la plus élevée a été mesurée sur le site trafic et la concentration la plus faible a été mesurée sur le site rural. Les faibles valeurs trouvées le 29/11 sur les sites de Grenoble peuvent être imputées à la pluie.

Les deux derniers prélèvements montrent une très forte concentration sur le site rural. Compte tenu de ce qu'il a déjà été dit dans le chapitre 3.6, l'augmentation de la concentration en HAP ne peut pas être attribuée qu'au seul trafic mais à d'autres sources telles que le chauffage domestique.



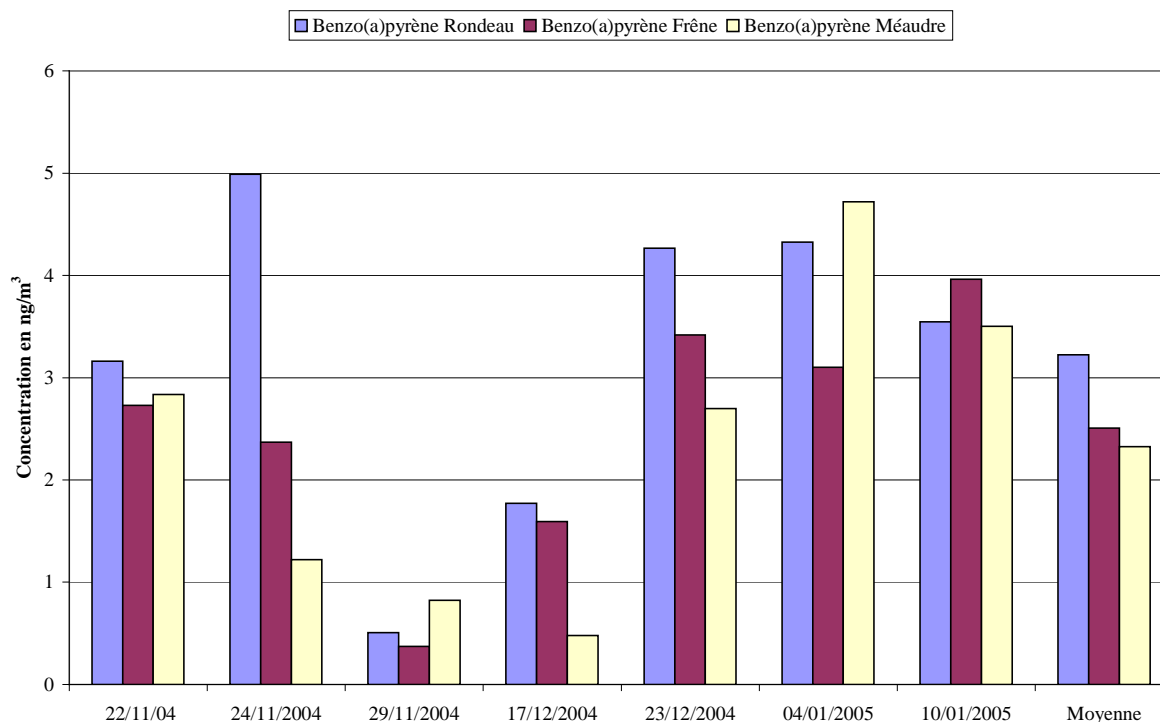
**Graphique 18: Somme des HAP totaux sur les 3 sites**

Le graphique 19 nous montre la comparaison des concentrations en B(a)P entre les 3 sites, rural, trafic et urbain de fond.

**Les concentrations moyennes** obtenues pendant la durée de cette étude montrent que la concentration moyenne en B(a)P sur le site de Méaudre est similaire à la moyenne obtenue sur le site urbain de Grenoble. La concentration moyenne mesurée sur le site trafic reste plus élevée que celle mesurée sur les deux autres sites.

La concentration la plus élevée a été mesurée pour le site trafic lors des cinq premiers prélèvements. Lors du prélèvement du 4 janvier 2005, le site rural présente la concentration la plus importante.

Pour les résultats obtenus lors des prélèvements de janvier, on observe que le site rural présente des concentrations similaires aux sites urbains et trafic. Il apparaît donc que des sources telles que le chauffage domestique peuvent générer des concentrations en HAP du même ordre de grandeur que celles dues au trafic automobile.



**Graphique 19:** Comparaison du B(a)P entre les 2 sites de Grenoble et le site rural de Méaudre

## **5. CONCLUSION**

En comparant les prélèvements réalisés sur les sites trafic, urbain et rural, sur les mêmes journées, on s'aperçoit que, en moyenne, le site trafic présente la valeur de B(a)P la plus élevée mais que le site urbain et le site rural ne sont pas significativement différents ( respectivement 2.5 et 2.3 ng/m<sup>3</sup>).

## **6. LISTE DES ANNEXES**

<b>Repère</b>	<b>Désignation</b>	<b>Nbre de pages</b>
Annexe 1	Concentrations des HAP mesurées à Méaudre	1
Annexe 2	Températures enregistrées à Méaudre	1
Annexe 3	Concentrations des HAP mesurées au Rondeau à aux Frênes	1
Annexe 4	Concentrations mesurées dans les blancs	1
Annexe 5	Pluviométrie mesurée à Grenoble	1
Annexe 6	Travaux prévus pour 2005 (fiche technique)	3

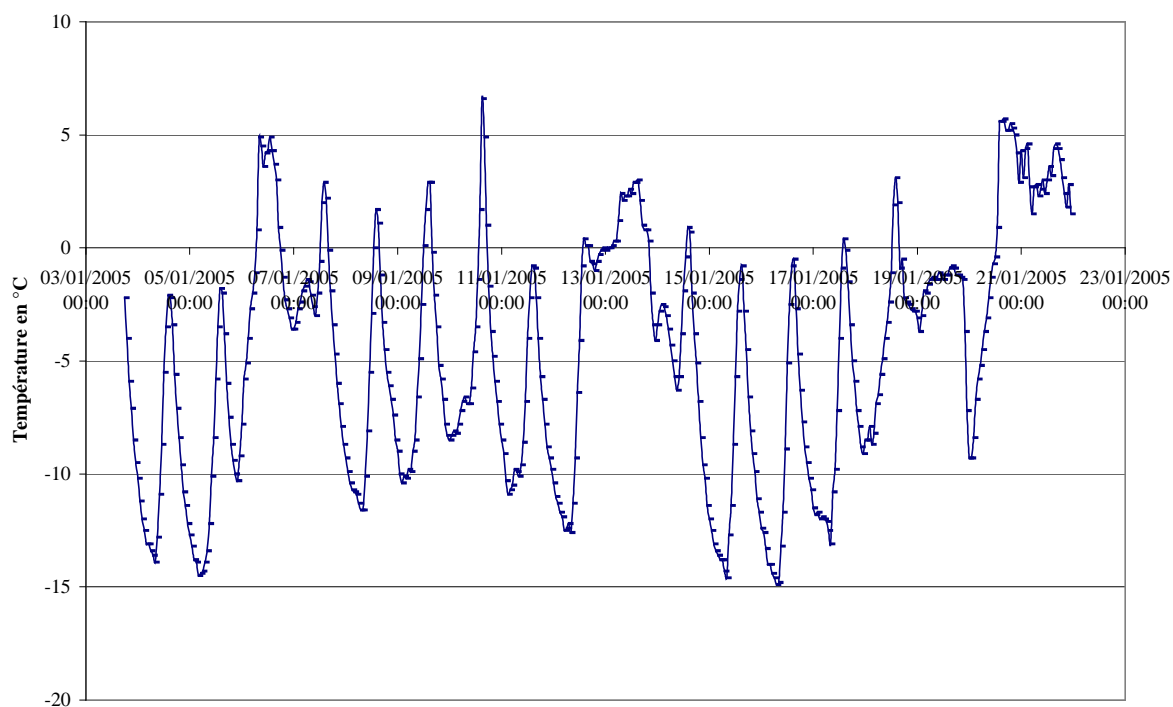
## Annexe 1

MEAUDRE mousse + filtre								
ng/m3	18 au 19 novembre	19 au 20 novembre	20 au 21 novembre	21 au 22 novembre	22 au 23 novembre	23 au 24 novembre	24 au 25 novembre	
Naphtalène	3.77	1.39	5.13	5.12	4.57	2.21	5.23	
2-méthylnaphtalène								
Acénaphthène	0.03	0.21	0.23	0.01	0.28	0.01	0.24	
Fluorène	2.75	1.24	3.74	4.12	3.78	1.85	3.37	
Phénanthrène	23.27	7.87	18.75	21.09	20.75	10.82	10.38	
Anthracène	3.86	1.02	1.97		2.73	1.31	1.91	
Fluoranthène	8.01	3.34	6.26	7.02	7.91	4.60	4.39	
Pyrène	6.92	2.71	5.17	5.89	6.72	3.87	3.90	
Benzo(a)anthracène	3.29	0.43	1.55	1.55	2.50	0.81	1.02	
Chrysène	2.92	0.59	1.84	1.70	2.46	0.91	1.13	
Benzo(e)pyrène	3.33	0.89	2.48	2.41	3.21	1.10	1.10	
Benzo(j)fluoranthène								
Benzo(b)fluoranthène	2.94	0.71	2.12	2.15	2.81	1.04	1.39	
Benzo(k)fluoranthène	1.24	0.29	0.88	0.91	1.16	0.41	0.57	
Benzo(a)pyrène	2.89	0.53	1.82	2.04	2.84	0.79	1.22	
Dibenzo(a,h)anthracène	0.14	0.03	0.10	0.10	0.13	0.05	0.06	
Benzo(g,h,i)perylène	2.12	0.54	1.32	1.41	1.81	0.56	0.89	
Indeno(1,2,3-cd)pyrène	2.39	0.56	1.68	1.74	2.25	0.83	1.09	
Coronène	1.01	0.29	0.60	0.58	0.74	0.30	0.41	
1-naphtaldéhyde	2.14	2.23	2.53	2.11	1.77	1.61	2.24	
9-fluorénone	5.35	1.72	5.20	4.65	5.59	3.23	3.94	
Anthraquinone	3.00	1.51	2.89	3.24	3.14	1.39	2.25	
Phénanthrène-9-carboxaldéhyde	2.12	1.12	1.13	2.98	2.06	0.50	1.90	

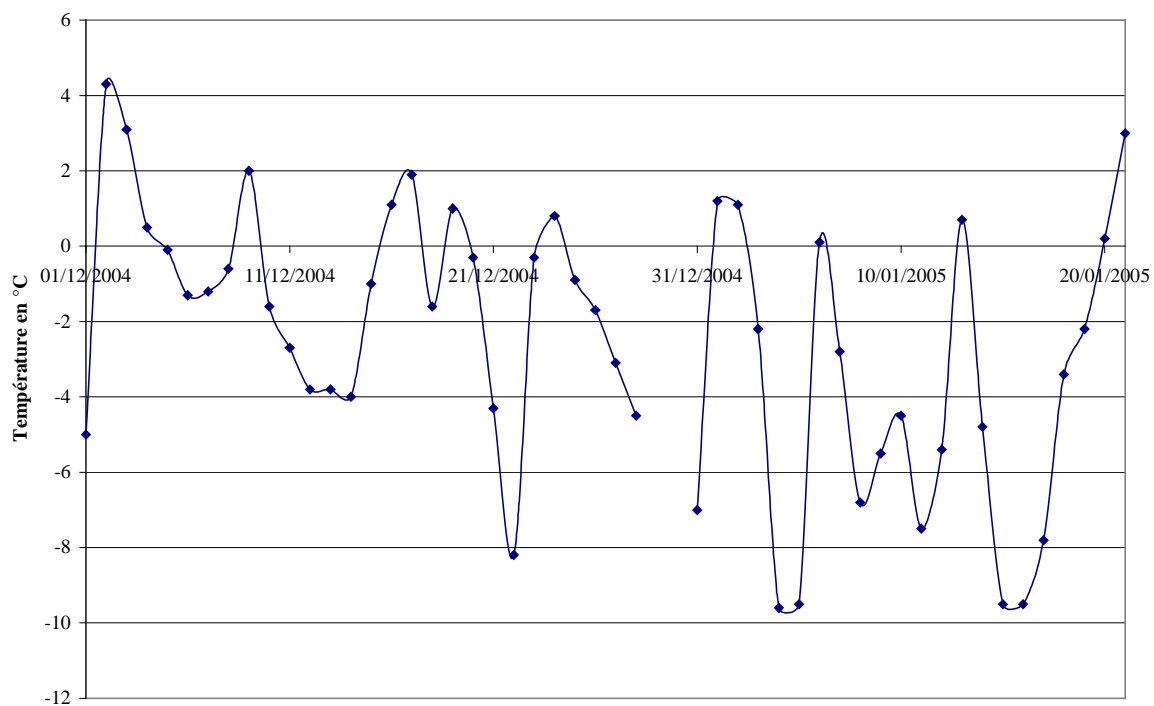
MEAUDRE mousse + filtre								
ng/m3	29/11/2004	14/12/2004	17/12/2004	23/12/2004	04/01/2005	10/01/2005	16/01/2005	21/01/2005
Naphtalène	1.58	2.12	0.16	1.25	6.95	4.07	6.53	0.61
2-méthylnaphtalène	0.66	1.19	0.10	0.00	4.35	0.00	2.13	0.28
Acénaphthène	0.36	0.74	0.00	0.27	1.43	0.97	1.82	0.32
Fluorène	2.64	4.30	0.90	3.02	10.82	7.94	10.63	2.14
Phénanthrène	15.52	22.19	10.26	30.81	47.51	57.71	47.63	23.63
Anthracène	1.87	3.64	1.26	3.71	5.04	5.96	5.29	2.82
Fluoranthène	4.59	6.32	4.17	9.79	17.21	16.22	20.14	8.62
Pyrène	4.46	6.37	3.93	8.06	15.44	14.08	16.97	7.14
Benzo(a)anthracène	0.85	2.28	0.52	2.21	4.85	3.68	4.57	1.02
Chrysène	1.26	2.93	0.93	3.74	7.22	6.00	7.03	1.63
Benzo(e)pyrène	0.79	1.72	0.46	2.01	3.08	2.67	3.30	0.91
Benzo(j)fluoranthène	0.00	0.00	0.34	1.98	0.00	0.00	0.00	0.00
Benzo(b)fluoranthène	1.09	2.47	0.66	3.25	5.26	4.00	5.03	1.34
Benzo(k)fluoranthène	0.46	1.02	0.27	1.16	1.88	1.59	2.03	0.52
Benzo(a)pyrène	0.82	2.21	0.48	2.70	4.72	3.50	4.25	1.12
Dibenzo(a,h)anthracène	0.00	0.00	0.00	0.42	0.00	0.00	0.00	0.00
Benzo(g,h,i)perylène	0.92	1.96	0.69	3.70	6.21	4.91	5.60	1.72
Indeno(1,2,3-cd)pyrène	0.69	1.67	0.45	1.52	3.03	2.64	3.56	0.90

*Concentrations mesurées sur le site de Méaudre*

## Annexe 2



*Températures enregistrées à Méaudre entre le 3 et le 21 janvier 2005*



*Températures enregistrées à Méaudre sur toute la période*



## Annexe 3

Filtre + Mousses ng/m<sup>3</sup>

FRENES	22 au 23 novembre	24 au 25 novembre	29/11/2004	05/12/2004	11/12/2004	17/12/2004	23/12/2004	29/12/2004	04/01/2005	10/01/2005
NAP	11.09	7.04	1.04	1.28	1.86	0.40	2.56	0.91	2.46	1.84
AC	0.49	0.30	0.19	0.21	0.65	0.01	0.49	0.20	0.50	0.62
FLN	5.34	2.75	1.20	1.79	4.71	1.45	4.25	1.31	4.20	4.13
PHE	22.55	18.25	8.99	15.73	25.31	27.90	30.04	5.86	23.72	38.15
ANT	3.04	21.42	0.50	0.96	3.30	2.55	4.14	0.20	2.85	5.10
FL	7.74	7.11	3.16	5.71	7.20	10.04	10.56	2.22	8.01	13.84
PY	6.36	6.15	2.23	3.99	6.07	7.82	9.14	1.55	7.04	13.08
B(a)A	1.67	1.39	0.31	0.90	1.71	1.59	2.74	0.19	2.34	4.79
CHR	2.67	2.45	0.70	2.25	3.18	2.78	4.26	0.52	3.65	6.31
B(e)P	3.25	2.85	0.59	1.42	2.51	1.89	2.52	0.41	2.19	3.20
B(b)F	3.57	3.07	0.76	2.62	3.41	2.73	3.68	0.61	3.08	4.76
B(k)F	1.26	1.12	0.26	0.85	1.22	0.98	1.33	0.20	1.15	1.96
B(a)P	2.73	2.37	0.37	1.24	1.68	1.59	3.42	0.35	3.10	3.96
B(ah)A	0.14	0.13	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00
B(ghi)P	2.42	2.21	0.46	1.50	2.19	2.95	4.35	0.61	3.85	5.98
IP	2.43	2.23	0.34	1.13	1.97	1.59	2.10	0.33	2.00	3.40

*Concentrations mesurées sur le site du Rondeau*

Filtre + Mousses ng/m<sup>3</sup>

RONDEAU	22 au 23 novembre	24 au 25 novembre	29/11/2004	05/12/2004	11/12/2004	17/12/2004	23/12/2004	29/12/2004	04/01/2005	10/01/2005
NAP	7.23	13.27	1.20	0.96	1.46	0.46	1.98	0.83	2.82	2.19
AC	0.01	0.16	0.17	0.16	0.60	0.08	0.39	0.16	0.65	0.43
FLN	3.18	3.40	1.84	1.84	4.66	1.56	4.59	1.67	4.78	4.66
PHE	26.11	47.13	17.99	23.44	28.11	32.96	37.67	11.64	31.11	35.67
ANT	4.08	6.91	1.95	2.21	4.38	3.56	5.41	1.11	4.04	4.04
FL	9.67	14.73	5.62	8.70	8.75	11.41	14.18	4.10	11.77	12.70
PY	8.63	13.88	5.73	7.99	8.15	9.99	12.44	3.76	10.59	10.71
B(a)A	2.11	4.93	0.73	1.44	2.24	1.85	3.39	0.56	3.59	3.38
CHR	3.24	4.75	0.95	2.94	3.78	2.88	5.58	0.84	5.89	5.11
B(e)P	3.83	5.34	0.53	2.18	2.94	2.17	3.01	0.54	2.82	2.95
B(b)F	4.10	5.15	0.70	3.11	3.88	2.55	4.71	0.76	4.88	4.83
B(k)F	1.47	1.95	0.27	1.06	1.52	0.90	1.73	0.25	1.69	1.57
B(a)P	3.16	4.99	0.51	1.60	2.35	1.77	4.27	0.48	4.33	3.55
B(ah)A	0.17	0.24	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
B(ghi)P	2.66	4.37	0.74	2.03	2.94	3.00	4.98	0.90	5.13	5.76
IP	2.67	3.94	0.43	1.43	2.15	1.69	2.56	0.47	2.82	2.59

*Concentrations mesurées sur le site des Frênes*

## Annexe 4

Résultats en ng	BLANCS MOUSSES			
	Méaudre	Méaudre	Rondeau	Frênes
Naphtalène	47	68	129	314
Acénaphène	7.3	8.5	12.4	176
Fluorène	7.5	9	14.8	209
Phénanthrène	20.2	14	21.6	497
Anthracène	1.3	1.2	2.1	>>
Fluoranthène	2	0.3	2.9	>>
Pyrène	0.5	0.9	3	30
Benzo(a)anthracène	Nd	Nd	Nd	Nd
Chrysène	Nd	Nd	Nd	Nd
Benzo(e)pyrène	Nd	Nd	Nd	Nd
Benzo(b)fluoranthène	Nd	Nd	Nd	Nd
Benzo(k)fluoranthène	Nd	Nd	Nd	Nd
Benzo(a)pyrène	Nd	Nd	Nd	Nd
Dibenzo(a,h)anthracène	Nd	Nd	Nd	Nd
Benzo(g,h,i)perylène	Nd	Nd	Nd	Nd
Indeno(1,2,3-cd)pyrène	Nd	Nd	Nd	Nd
Coronène	Nd	Nd	Nd	Nd
1-naphtaldéhyde	Nd	Nd	Nd	1198
9-fluorénone	Nd	Nd	Nd	60
Anthraquinone	307	277	331	575
Phénanthrène-9-carboxaldéhyde	Nd	Nd	Nd	Nd

Nd: Non détecté

*Concentrations des blancs de mousses en ng*

Résultats en ng	BLANCS FILTRES			
	Méaudre	Méaudre	Rondeau	Frênes
Fluorène	0.3	0.4	0.6	0.6
Phénanthrène	0.6	0.5	1.7	1.7
Anthracène	Nd	Nd	Nd	Nd
Fluoranthène	0.2	0.6	0.8	0.8
Pyrène	<1	<1	<1	

*Concentrations des blancs de filtres en ng*

## Annexe 5

Date	Hauteur d'eau (mm)
22/11/04	0.0
23/11/04	0.3
24/11/04	0.0
25/11/04	0.3
<b>29/11/04</b>	<b>20.1</b>
05/12/04	0.0
11/12/04	0.0
<b>17/12/04</b>	<b>15.2</b>
23/12/04	0.0
<b>29/12/04</b>	<b>7.1</b>
04/01/05	0.0
10/01/05	0.0

**Tableau 2:** *Hauteur d'eau tombée sur la station d'Echirolles*

## Annexe 6

## **THEME : MESURES DES POLLUANTS VISES PAR LA 4<sup>EME</sup> DIRECTIVE FILLE**

### **Surveillance des HAP**

#### **CONTEXTE ET OBJECTIFS**

Depuis 1997, l'INERIS réalise des travaux de développement et d'appui technique en vue de l'application de 4<sup>ème</sup> Directive fille « Métaux – HAP ».

En 2004, le texte de la Directive a beaucoup évolué, pour finalement être adopté en fin d'année. Le principal objectif des travaux sera, maintenant, de préparer l'extension de la surveillance des HAP, à l'ensemble du territoire, conformément à la directive et de contribuer à l'élaboration de la norme CEN pour le prélèvement et l'analyse du B(a)P.

#### **TRAVAUX EN COURS**

Au cours de l'année 2004, les travaux sur les HAP ont porté sur :

- la participation au groupe de normalisation CEN WG 21 sur le prélèvement et l'analyse du B(a)P dans l'air ambiant
- l'assistance aux AASQA et l'ADEME dans le cadre du programme pilote de surveillance des HAP, en particulier la finalisation de la seconde campagne d'inter comparaison des laboratoires d'analyse (exploitation des données, rédaction et diffusion du rapport final).
- La rédaction d'un document de synthèse complémentaire sur le programme pilote de surveillance des HAP,
- La rédaction d'un document de recommandations pour la surveillance des HAP, en application de la dernière version de la Directive
- la réalisation d'une campagne de prélèvement à proximité d'une chaufferie à bois en collaboration avec l'ASPA
- la réalisation d'une campagne de prélèvement en zone rurale où le chauffage au bois est prédominant en collaboration avec ASCOPARG
- les études préliminaires sur les artéfacts de prélèvement dus à l'ozone et sur la mesure des HAP dans les dépôts
- l'appui au MEDD concernant la directive « métaux et HAP » (suivi des différentes versions du texte discutées par les états membres).

En ce qui concerne les travaux européens, la dernière réunion du groupe CEN 264 WG 21 sur le B(a)P s'est tenu au mois de novembre à Cologne.



## **TRAVAUX PROPOSES POUR 2005**

Nous proposons, pour 2005, le programme suivant :

### **1. Participation au GT "nouveaux polluants":**

Une des priorités de ce nouveau GT portera sur les modalités d'application de la Directive fille, en France. L'INERIS animera les travaux consacrés plus spécifiquement aux HAP.

### **2. Poursuite de l'action d'assistance aux AASQA et l'ADEME :**

L'assistance aux AASQA qui démarreront la mesure des HAP dans l'air ambiant sera maintenue : choix des appareils, des supports de prélèvement...

### **3. Organisation d'un exercice d'inter-comparaison**

Un exercice d'inter-comparaison des laboratoires associés sera proposé en 2005, afin d'élargir, si besoin, les laboratoires candidats à la mesure des HAP, dans le cadre de l'extension de la surveillance.

### **4. Approche méthodologique de la surveillance des sources ponctuelles, en application de la Directive**

La caractérisation de sites suspectés d'avoir de fortes concentrations en HAP, est préconisée dans la version finale de la Directive (voisinage de sites industriels). L'objectif des travaux est de proposer une démarche adaptée, alternative ou complémentaire des campagnes ponctuelles seules qui s'avèrent lourdes et parfois peu informatives (variations des concentrations dans le temps en fonction des conditions météo...).

Pour ce faire, nous proposons de réaliser :

- un retour d'expérience à partir, d'une part des campagnes déjà réalisées dans ce cadre (informations apportées et limites), et d'autre part, des travaux de l'équipe « émissions » de l'INERIS sur les sites émetteurs,
- un examen de l'apport de la modélisation (dispersion) sur un site suspecté, pour répondre aux besoins réglementaires,
- une campagne de calage du modèle, couplée, si possible, avec une campagne de caractérisation des émissions.

### **5. Etude des artefacts de prélèvement dus à l'ozone : test de l'appareil Spéciation :**

Suite à l'étude préliminaire réalisée en 2004 sur les artefacts de prélèvement dus à l'ozone, nous proposons, en accord avec le groupe de travail du CEN, la réalisation d'une étude sur l'inter-comparaison entre le DA-80 (Megatec) et l'appareil Partisol Spéciation (Ecomesure) qui sera muni ou non d'un filtre à ozone.

Cette étude comprendra les étapes suivantes :

- campagnes de mesure sur site réel, en période estivale
- extraction et analyse des échantillons, interprétation des résultats obtenus

Par ailleurs, le suivi et la synthèse des différents travaux français et européens sur ce sujet seront réalisés.

## **6. Etude de la faisabilité et la pertinence de la mesure des HAP dans les dépôts:**

Suite aux essais de faisabilité du dosage des HAP dans les retombées atmosphériques totales réalisés en 2004, nous proposons d'élaborer un protocole de mesure des HAP dans les dépôts. Il s'agira de réaliser des mesures de concentration des HAP dans les dépôts secs et humides prélevés sur les sites EMEP. On suivra bien entendu en parallèle les travaux du CEN sur ce sujet, qui devraient commencer en 2005.

## **7. Contribution aux travaux européens de Normalisation :**

Activité intégrée et développée dans l'étude « Normalisation et directives européennes », citée ici pour mémoire.

Nous continuerons à participer au groupe CEN WG 21 pour la France réalisera des campagnes sur le terrain en hiver, et qui auront comme but :

- de comparer et de choisir la méthode analytique la plus adaptée pour la mesure du B(a)P
- de comparer différents appareils de prélèvement

## **COLLABORATIONS**

ADEME, AASQA

## **DUREE DES TRAVAUX**

Travaux pluriannuels