

Comparaison de la teneur de 14 hydrocarbures aromatiques polycycliques dans les poussières sédimentées et en suspension dans l'air, le long de secteurs d'autoroute à revêtement bitumineux et cimenté (autoroute Lausanne-Genève)

S. Neukomm, T. Vu Duc et C. Barblan

Institut universitaire de médecine sociale et préventive (Dir.: Prof. A. Delachaux)

Laboratoires de recherches expérimentales (Méd.-chef: Dr S. Neukomm, P. D.)

Introduction

Les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) sont largement diffusés dans notre environnement. De tels composés ont été identifiés dans la fumée, les gaz d'échappement de moteurs à essence et diesel, la suie, les produits de combustion des huiles de chauffage, la fumée de tabac, les aliments fumés et bien d'autres sources. Les abords des grands axes routiers sont particulièrement exposés à la pollution par les HAP; des essais biologiques entrepris dans nos laboratoires ont montré que les poussières sédimentées en bordure d'autoroute avaient un pouvoir néoplasiant sur le triton quel que soit le revêtement du secteur étudié et que les poussières provenant des revêtements bitumineux étaient apparemment plus actives que les poussières provenant des revêtements cimentés [1]. Il fallait compléter cette étude par l'analyse chimique quantitative des HAP contenus dans ces poussières.

Dans le cas qui nous intéresse, 2 sources de HAP sont à considérer: d'une part, les gaz d'échappement de voitures adsorbés par les poussières provenant du revêtement routier, d'autre part, le bitume utilisé pour le revêtement.

La détermination d'un seul composé, tel que le benzo(a)pyrène, ne donne qu'une indication incomplète sur la pollution par ce type de substances. En effet, d'une part le benzo(a)pyrène n'est pas le seul HAP cancérigène et, d'autre part, le dosage d'autres HAP tels que le benzo(e)pyrène et le coronène, par exemple, bien que non cancérigènes, peut donner des renseignements quant à la source de pollution [2]; enfin, il est nécessaire de doser les HAP qui, comme le benzo(k)fluoranthène, interfèrent lors du dosage du benzo(a)pyrène [2].

Nous avons choisi la méthode de Grimmer qui permet de doser 14 HAP [3]: anthracène, phénanthrène, fluoranthène, pyrène, chrysène, benzo(a)anthracène, benzo(e)pyrène, benzo(a)pyrène, benzo(k)fluoranthène, pérylène, benzo(ghi)pérylène, anthanthrène, dibenzo(a,h)anthracène et coronène. Parmi ces 14 HAP figurent les 6 substances dont le dosage est recommandé par l'OMS: benzo(a)anthracène, benzo(e)pyrène, benzo(a)pyrène, benzo(k)fluoranthène, benzo(ghi)pérylène, coronène.

Matériel et méthodes

L'appareil de prélèvement pour les poussières en suspension dans l'air est du type Gravicon Sartorius SM 167 13.

Tous les solvants utilisés sont de qualités Merck pour analysi. Le cyclohexane est purifié sur charbon actif [4] afin d'obtenir une qualité spectroscopiquement pure.

Les échantillons de poussières sédimentées ont été tamisés à 0,315 mm, puis extraits au soxhlet durant 16 heures par du cyclohexane.

Le dosage de 14 hydrocarbures aromatiques polycycliques dans les poussières sédimentées et en suspension dans l'air au bord d'une autoroute révèle un même «profil» qui démontre que la source de ces polluants est principalement le gaz d'échappement des voitures automobiles.

Une quantité d'extrait correspondant à 10 g de poussières sédimentées est dissoute dans 100 ml de cyclohexane puis agitée avec 100 ml du mélange méthanol-eau (4:1). La phase cyclohexane est recueillie puis réduite à un volume de 30 ml par évaporation. Elle est ensuite agitée avec 60 ml de mélange N,N-diméthylformamide-eau (9:1) pour extraire les HAP du cyclohexane. La phase diméthylformamide est recueillie et agitée avec 60 ml d'eau et 120 ml de cyclohexane. De cette manière on réextrait les HAP de la diméthylformamide. On recueille la phase cyclohexane qui est lavée à l'eau puis séchée. Cette technique d'extractions liquide-liquide successives permet de purifier considérablement l'extrait de poussières.

Le filtre ayant recueilli les poussières en suspension dans l'air est extrait au soxhlet pendant 16 heures par du cyclohexane. Une partie aliquote de l'extrait est soumise aux mêmes purifications que les extraits des poussières sédimentées.

La purification sur colonne de gel de silice, la séparation sur colonne d'alumine et la détermination quantitative au spectrophotomètre se font selon la méthode décrite par Grimmer [3].

Expérimentation

Les tests biologiques ayant été effectués sur des extraits de poussières sédimentées au bord de l'autoroute du Léman, nous avons procédé à l'analyse de ces mêmes poussières prélevées sur les lieux suivants:

1) à l'air libre, sur un secteur à revêtement cimenté (Gland - km 35,7)

2) à l'air libre, sur un secteur à revêtement bitumineux (Morges - km 58,6)

3) dans l'air confiné d'un tunnel routier à revêtement bitumineux (au milieu du tunnel aval de Glion).

Nous avons divisé chaque extrait en deux parties dont l'une a été évaporée, l'autre lyophilisée, afin de savoir si l'évaporation entraînait des pertes de HAP. Le tableau 1 montre qu'il n'y a pas de différence significative.

Les poussières en suspension dans l'air ont été recueillies sur filtre Sartorius en fibre de verre de porosité 5-8 μ à une hauteur de 1,50 m. Le lieu de prélèvement est le lieu dit «Champ du Grand Chêne» sur l'autoroute de ceinture à Lausanne dans une zone à forte densité de trafic, sur revêtement bitumineux.

Résultats

Toutes les valeurs trouvées dans les poussières sédimentées sont données dans le tableau 1.

Tableau 1

Teneurs en HAP des poussières sédimentées en bordure de l'auto-route du Léman

	Tunnel Glion		Morges		Gland	
	Lyoph. $\mu\text{g/g}$	Evap. $\mu\text{g/g}$	Lyoph. $\mu\text{g/g}$	Evap. $\mu\text{g/g}$	Lyoph. $\mu\text{g/g}$	Evap. $\mu\text{g/g}$
Anthracène	0,6 ⁹	0,6 ⁹	0,3 ⁴	0,3 ⁵	0,2 ⁹	0,2 ¹
Phénanthrène	6,0 ⁴	4,9 ⁸	2,3 ⁷	2,3 ³	1,6 ⁶	1,8 ¹
Fluoranthène	7,0 ¹	6,8 ⁹	3,9 ⁹	3,8 ¹	2,7 ¹	1,8 ¹
Pyrène	4,4 ⁷	4,5 ⁹	2,6 ⁷	2,7 ³	2,0 ²	1,9 ⁵
Chrysène	3,4 ⁴	2,7 ⁹	1,5 ⁷	1,2 ⁵	1,1 ⁴	1,2 ⁵
Benzo(a)anthracène	3,1 ⁴	2,8 ⁴	1,5 ⁵	1,2 ³	1,1 ⁴	1,1 ⁹
Benzo(e)pyrène	3,9 ⁸	2,8 ⁹	1,4 ²	1,3 ³	1,4 ⁴	1,4 ⁴
Benzo(a)pyrène	2,5 ²	2,3 ⁷	1,4 ⁶	1,2 ⁷	1,2 ²	1,2 ⁶
Pérylène	0,4 ⁴	0,4 ⁵	0,2 ⁸	0,1 ⁸	0,2 ⁹	0,2 ³
Benzo(k)fluoranthène	1,2 ⁵	1,0 ⁹	0,6 ²	0,4 ¹	0,4 ⁵	0,4 ⁸
Benzo(ghi)pérylène	2,0 ¹	1,5 ⁵	1,0 ¹	1,0 ⁵	1,0 ⁹	1,0 ³
Anthanthrène	0,2 ⁷	0,2 ⁵	0,1 ⁷	0,1 ³	0,1 ⁴	0,1 ³
Dibenzo(a,h)-anthracène	0,8 ⁹	0,7 ¹	0,2 ⁹	0,2 ⁴	0,3 ⁹	0,3 ³
Coronène	0,7 ²	0,6 ⁸	0,3 ³	0,3 ³	0,3 ⁹	0,3 ⁹

Elles représentent les moyennes de trois déterminations et sont exprimées en concentrations d'HAP en microgrammes par gramme de poussières sédimentées ou tamisées.

Dans le tableau 2, on donne les résultats obtenus par analyse des poussières prélevées à 1,50 m de hauteur au lieu dit «Champ du Grand Chêne».

Tableau 2

Teneur en HAP de poussières en suspension dans l'air recueillies sur filtre en bordure de l'auto-route de ceinture à Lausanne (lieu dit: «Champ du Grand Chêne»)

Poussières en suspension	$\mu\text{g}/1000 \text{ m}^3$		$\mu\text{g/g}$
Anthracène	7,1	10,5	
Phénanthrène	36,3	53,5	
Fluoranthène	75,2	110,8	
Pyrène	51,6	76,1	
Chrysène	28,8	42,4	
Benzo(a)anthracène	25,2	38,8	
Benzo(e)pyrène	22,6	33,4	
Benzo(a)pyrène	22,2	32,6	
Pérylène	3,7	5,4	
Benzo(k)fluoranthène	11,0	16,0	
Benzo(ghi)pérylène	27,7	40,7	
Anthanthrène	3,9	5,7	
Dibenzo(a,h)anthracène	5,5	8,1	
Coronène	6,2	9,1	

Les quantités d'HAP sont exprimées de deux manières différentes

- 1) en microgrammes par 1000 m³ d'air,
- 2) en microgrammes par gramme de poussières

recueillies sur filtre.

Ces valeurs sont également les moyennes de 3 déterminations.

Discussion

Poussières sédimentées

Les teneurs en HAP sont environ 2 fois plus élevées dans les poussières prélevées dans le tunnel de Glion que dans les deux autres situations. Cette différence est probablement due à l'air confiné qui caractérise ce lieu de prélèvement. D'autre part, aucune différence importante des teneurs en HAP n'est décelée entre les poussières prélevées en secteur à revêtement bitumineux et celles prélevées en secteur à revêtement cimenté. Ce résultat est en accord avec les travaux de Just et coll. [5] qui, en ne dosant que le benzo(a)pyrène, ont montré que la nature du revêtement bitumineux n'influait pas le taux par rapport à un revêtement cimenté.

Il est intéressant de comparer graphiquement ces trois situations (fig. 1). On constate que les quantités absolues varient d'une situation à l'autre; par contre, les quantités relatives expriment un «profil» de HAP semblable dans les trois cas, ce qui indique une même source de pollution.

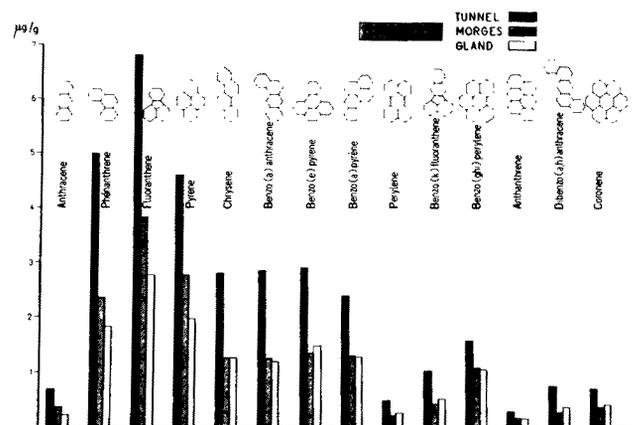


Figure 1

Profils des HAP dans 3 situations (cf. texte) le long de l'auto-route. Poussière sédimentée.

Poussières en suspension dans l'air

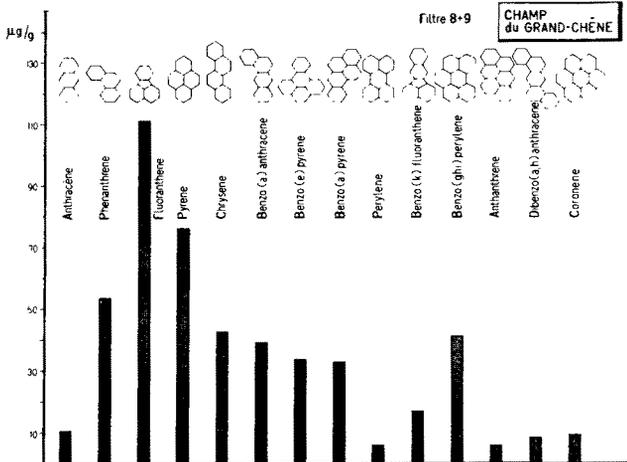
Les quantités d'HAP par gramme de poussière recueillie sont 10 à 20 fois supérieures à celles que l'on a trouvées dans les poussières sédimentées. Cette augmentation de la teneur en HAP peut être expliquée par le fait que la poussière en suspension, de granulométrie plus fine que la poussière sédimentée, a une surface d'adsorption considérablement augmentée.

La représentation graphique des résultats du tableau 2 montrent un profil d'HAP semblable à ceux des poussières sédimentées (fig. 2).

Tableau 3

Proportion des différents HAP en pourcent de la teneur totale des 14 HAP

	Tunnel	Morges	Gland	Air
Anthracène	2	2	2	2
Phénanthrène	16	14	12	11
Fluoranthène	20	22	19	23
Pyrène	13	15	14	16
Chrysène	9	8	8	9
Benzo(a)anthracène	9	8	8	8
Benzo(e)pyrène	10	8	10	7
Benzo(a)pyrène	7	8	9	7
Pérylène	1	1	1	1
Benzo(k)fluoranthène	3	3	3	3
Benzo(ghi)perylène	5	6	7	8
Anthanthrène	1	1	1	1
Dibenzo(a,h)anthracène	2	2	3	2
Coronène	2	2	3	2
	100 %	100 %	100 %	100 %


 Figure 2
 Profil des HAP dans un quartier d'habitation en bordure de l'auto-
 route. Poussière en suspension.

Pour faciliter la comparaison des quatre profils, relatifs aux quatre types de poussières étudiées, on donne dans le tableau 3 les quantités d'HAP en pourcent de la teneur totale en ces 14 HAP. On constate à l'évidence que les proportions des divers HAP sont semblables dans les 4 types d'échantillons.

Conclusions

L'analyse des échantillons de poussières sédimentées ou en suspension dans l'air, prélevées en bordure d'autoroute, fournit dans les deux cas un même profil de HAP, les quantités totales pouvant varier d'une situation à l'autre. Ce profil est en accord avec celui qu'a obtenu Grimmer [6] avec des poussières prélevées en tunnel routier. Nos résultats analytiques montrent que la formation des HAP n'est pas plus importante sur les secteurs à revêtement bitumineux que sur ceux à revêtement cimenté, il faut veiller toutefois à ne pas con-

fondre bitume et «goudron»; seul ce dernier peut contenir des HAP en quantités appréciables (jusqu'à 1 % de benzo(a)pyrène [7]).

On peut donc conclure de notre étude que les gaz d'échappement de voiture constituent la source de pollution par les HAP de loin la plus importante le long des grands axes routiers.

Résumé

On dose 14 hydrocarbures aromatiques polycycliques dans des échantillons de poussières sédimentées et en suspension dans l'air recueillies en bordure d'autoroute. On compare 3 types de poussières sédimentées:

- 1) à l'air libre, sur revêtement cimenté
- 2) à l'air libre, sur revêtement bitumineux
- 3) dans l'air confiné d'un tunnel routier, sur revêtement bitumineux

On a effectué aussi l'analyse de poussières en suspension dans l'air sur un tronçon d'autoroute à forte densité de trafic.

Les profils d'hydrocarbures aromatiques polycycliques ont la même allure pour tous les échantillons, les quantités totales pouvant varier d'une situation à l'autre. La formation d'hydrocarbures n'est pas plus importante sur les secteurs à revêtement bitumineux que sur ceux à revêtement cimenté. Les gaz d'échappement sont la source de pollution par les hydrocarbures aromatiques polycycliques dans les 4 cas envisagés.

Zusammenfassung

Vergleich des Gehaltes von 14 polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen in Sediment- und Schwebestauben in der Nähe von Autobahnstrecken mit Bitumen- und Betonbelag zwischen Lausanne und Genf.

14 polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (paKW) haben wir im Sedimentstaub bestimmt, der auf dem Boden an 3 verschiedenen Stellen der Autobahn Genf-Villeneuve gesammelt wurde.

- 1) im Freien, auf einem Abschnitt mit Zementbelag
- 2) im Freien, auf einem Abschnitt mit Bitumenbelag
- 3) im geschlossenen Raum eines Strassentunnels mit Bitumenbelag

Schwebestaub, am Rand einer befahrenen Strecke der Autobahn gesammelt, haben wir auch analysiert.

Die vier Proben haben ziemlich ähnliche relative polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (paKW) Gehalt; absolute Werte ändern sich trotzdem in den verschiedenen Stellen. PaKW-Bildung ist nicht wichtiger auf den Abschnitten mit Bitumenbelag als auf den Abschnitten mit Zementbelag.

An den vier Stellen sind die Kraftfahrzeugabgase der Ursprung der Luftverunreinigung durch die paKW.

Summary

Comparison of the content in 14 polycyclic aromatic hydrocarbons in sedimented dust and suspended air particles collected along the bitumen and concrete coated stretches of highways between Lausanne and Geneva.

Fourteen polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) are determined in sedimented dust and suspended air particles collected along the highway.

3 types of sedimented particles are compared in the following situations:

- 1) in open atmosphere, on concrete sector of the road
- 2) in open atmosphere, on bitumen coated stretch
- 3) in the stuffy atmosphere of a road-tunnel, bitumen coated

Analyses are also carried out on suspended air particles of a high density traffic sector of the highway.

Quantities of PAH are of the same order in situations 1) and 2). The PAH profiles are identical but with variations in amplitude and suggest that automobile gas exhausts are the principal source of pollution by PAH.

Bibliographie

- [1] *Neukomm S., Fritschi S., Barblan C., Vu Duc T. et Guillemain M.*: Le test rapide de cancérisation du Triton appliqué à l'étude des poussières causées par les pneus à clous sur l'autoroute du Léman. *Revue de Méd. préventive* 17, 203-209 (1972).
- [2] *Rapport du Groupe de Travail sur l'Air de l'OMS, Genève*: Standardisation des prélèvements et des techniques analytiques pour l'évaluation des hydrocarbures aromatiques polycycliques dans l'environnement (1969).
- [3] *Grimmer G. et Hildebrandt A.*: Concentration and estimation of 14 polycyclic aromatic hydrocarbons at low levels in high-protein foods, oils and fats. *J. Ass. Off. Anal. Chem.* 55, 631-635 (1972).
- [4] *Intersociety Committee*: Tentative method of routine analysis for polynuclear aromatic hydrocarbon content of atmospheric particulate matter. *Health Lab. Sci.*, 7 Suppl. 45-46 (1970).
- [5] *Just J., Maziarka S., Misiakiewicz Z. et Wyszynska H.*: *Zakl. Hig. Kommum. Pnastw. Zakl. Warszawa Ronczn. Zak. Hig.* 22 (5) 545-551 (1971). Cité dans *Env. Health and Poll. Contr. (Excerpta)* 2 (8) no 3757 (1972).
- [6] *Grimmer G. et Hildebrandt A.*: Kohlenwasserstoffe in der Umgebung des Menschen. Mitt. einer Methode zur simultanen Bestimmung von dreizehn polycyclischen Kohlenwasserstoffen. *J. Chromatog.* 20, 89-99 (1965).
- [7] *Rondia D.*: La protection des conduites métalliques par vernis à base de brai et de bitume. Détection et dosage des composés cancérogènes. *Tribune du Cébédéau* 270, 220-226 (1966).

Adresse des auteurs

Dr méd. S. Neukomm. Institut universitaire de médecine sociale et préventive, Laboratoires de recherches expérimentales, Route de la Clochette, CH-1052 Le Mont s/Lausanne (Suisse).

RÖNTGENFILME
TYPOX RP

Typon Aktiengesellschaft
für Photographische Industrie
3400 Burgdorf/Schweiz
Telefon 054 22 15 22

typon