

Émissions de dioxyde d'azote de véhicules diesel

**Impact des technologies de post-traitement sur les émissions
de dioxyde d'azote de véhicules diesel
et aspects sanitaires associés**

- Avis de l'Afsset
- Rapport d'expertise collective



Le Directeur général

Maisons-Alfort, le 11 AOUT 2009

AVIS

de l'Agence française de sécurité sanitaire de l'environnement et du travail

Relatif à « Impact des technologies de post-traitement sur les émissions de NO₂ de véhicules diesel, et aspects sanitaires associés »

Saisine Afsset n°2006-009

L'Afsset a pour mission de contribuer à assurer la sécurité sanitaire dans le domaine de l'environnement et du travail et d'évaluer les risques sanitaires qu'ils peuvent comporter. Elle fournit aux autorités compétentes toutes les informations sur ces risques ainsi que l'expertise et l'appui technique nécessaires à l'élaboration des dispositions législatives et réglementaires et à la mise en œuvre des mesures de gestion du risque.

Contexte

Différentes réglementations européennes, et notamment les réglementations Euro relatives aux émissions des véhicules particuliers et des poids lourds, fixent des limites d'émissions en particules pour les véhicules diesels. Ces limites entraîneront probablement une certaine généralisation des filtres à particules sur ces véhicules.

Les filtres à particules (FAP) permettent de réduire les émissions de particules en masse et en nombre.

Cependant, certaines technologies disponibles sur le marché associent la catalyse d'oxydation (catalyseur d'oxydation) au FAP et à l'heure actuelle, différentes conclusions d'études européennes et californiennes indiquent que les technologies incluant un catalyseur d'oxydation entraînent une augmentation significative des émissions de dioxyde d'azote -NO₂ (traduite par un ratio NO₂/NO_x plus élevé) sans qu'un effet soit observable sur les émissions globales de NO_x. La question de l'impact d'une généralisation des filtres à particules équipant les véhicules diesels sur les émissions de NO₂ et sur la santé s'est alors posée.

Présentation de la question posée

Dans ce contexte, les ministères en charge de l'environnement, de la santé et du travail ont saisi l'Afsset, le 24 août 2006, sur la question de « l'évaluation des impacts sanitaires relatifs des émissions de particules et de dioxyde d'azote des véhicules diesel ». Suite aux échanges tenus avec les ministères, trois axes de travail ont été définis, traitant prioritairement des oxydes d'azote au vu du contexte :

- **Axe 1** : Analyser l'ensemble des données bibliographiques disponibles avec plus particulièrement :
 - Une analyse des données de pollution françaises et européennes (en situation de proximité et de fond) dans le but notamment d'identifier un signal sur les concentrations d'oxydes d'azote (NO_x et NO_2) ;
 - Une analyse des données publiées dans la littérature scientifique, relatives aux émissions des véhicules diesel, et en particulier à l'évolution des émissions de dioxyde d'azote (NO_2) ;
 - Une revue des données bibliographiques existantes relatives aux conditions de mesure des émissions de dioxyde d'azote (NO_2).
- **Axe 2** : Identifier les impacts différenciés des technologies de couplage de catalyseur d'oxydation et de filtre à particules (FAP) sur les émissions de NO_x et le ratio NO_2/NO_x .
- **Axe 3** : cet axe de travail est orienté vers des considérations d'ordre sanitaire, décomposées en deux points :
 - Identifier les aspects toxicologiques liés aux émissions de NO_2 associés aux différentes technologies de couplage de catalyseur d'oxydation et de filtre à particules. Identifier différents « scénarios types » d'exposition (dont des scénarios de type « travailleurs »), rechercher dans la littérature récente des données de concentration d'exposition pour ces scénarios et fournir à minima une évaluation qualitative du risque.
 - Etudier les relations entre les immissions¹ de NO_x , NO_2 et particules et des indicateurs sanitaires aigus et/ou chroniques (mortalité, pathologies cardiorespiratoires par exemple) au vu des éléments traités dans l'axe 1. Ce point ne pourra donc être abordé que si l'axe 1 met en évidence l'existence d'un signal particulier relatif aux oxydes d'azote et au ratio NO_2/NO_x .

Organisation de l'expertise

L'expertise a été réalisée dans le respect de la norme NF X 50-110 « Qualité en expertise – Prescriptions générales de compétence pour une expertise (mai 2003) » avec pour objectif de respecter les points suivants : compétence, indépendance, transparence, traçabilité.

L'Afsset a confié au Comité d'Experts Spécialisés (CES) « Evaluation des risques liés aux milieux aériens » l'instruction de cette saisine. Ce dernier a mandaté un groupe de travail pour la réalisation des travaux d'expertise.

Les travaux du groupe de travail ont été soumis régulièrement au CES (tant sur les aspects méthodologiques que scientifiques). Le groupe de travail s'est réuni à 12 reprises en séance plénière et à 4 reprises en sous-groupes dédiés, entre juin 2007 et février 2009, et le CES a débattu de ses résultats lors des séances des 27 mars 2008, 21 janvier et 5 mai 2009. Il a adopté lors de cette dernière séance les travaux du groupe de travail.

Ces travaux d'expertise sont ainsi issus d'un collectif d'experts aux compétences complémentaires.

Cet avis se base pour les aspects scientifiques sur le rapport final issu de cette expertise collective et a été rédigé par l'Afsset.

¹ Immission : Concentration d'une substance chimique dans l'air ambiant

Résultats

Les résultats de l'expertise collective mettent en avant que :

1) Concernant l'évolution des émissions d'oxydes d'azote (NO, NO₂ et NO_x) des véhicules diesels :

■ Préambule

De nombreuses espèces chimiques sont présentes dans les émissions issues d'un moteur diesel (particules -PM, oxydes d'azote -NO_x, hydrocarbures imbrûlés -HC, monoxyde de carbone -CO, hydrocarbures aromatiques polycycliques, aldéhydes, ...). Différentes technologies sont utilisées pour traiter ces émissions, notamment :

- Le catalyseur (sans filtre à particules) : participe surtout au traitement des CO et HC ;
- Le filtre à particules (FAP) : piège les PM. Les suies piégées doivent être brûlées pour régénérer le FAP et éviter une contre pression néfaste au moteur. Comme la combustion des PM s'effectue vers 550°C alors que la température des gaz d'échappement est très inférieure, des catalyseurs sont utilisés pour abaisser la température nécessaire à la combustion et procéder à une régénération périodique du FAP. Deux technologies sont couramment utilisées pour cela :
 - FAP catalysé : le FAP fait appel à un catalyseur d'oxydation, placé en amont du FAP, et dont l'une des fonctions consiste à accroître les concentrations de NO₂, mettant ainsi à profit son pouvoir oxydant pour la combustion des PM. Le catalyseur peut également être intégré dans le média du FAP.
 - FAP additivé : le catalyseur est incorporé dans le circuit carburant (ex : catalyseur à base de cérium), et ne fait pas appel à une augmentation des concentrations de NO₂ pour la combustion des PM.

■ Pour les émissions d'un véhicule léger diesel

- Les véhicules Euro 1 présentent des émissions de NO_x inférieures en moyenne à celles des véhicules Euro 2. En effet, seule la somme HC+NO_x est réglementée pour Euro 1 et Euro 2. L'utilisation d'un catalyseur d'oxydation rendue obligatoire par Euro 2, permet notamment d'atteindre les limites portant sur les émissions de CO et réduit les HC. En contrepartie, il augmente fortement les émissions de NO₂, et laisse la possibilité d'une augmentation des NO_x sans pour autant dépasser le plafond réglementaire Euro 2 portant sur le total HC+ NO_x.
- Le passage d'Euro 2 à Euro 3 se traduit bien par une baisse des émissions de NO_x sur cycles réels d'un facteur 2 à 3, sans réduction systématique des émissions de NO₂.
- La filtration proprement dite n'est pas génératrice d'une surémission de NO₂. En revanche, les technologies associant un renforcement de la catalyse d'oxydation au FAP pour gérer sa régénération (FAP catalysés) entraînent une augmentation des émissions de NO₂.
- La norme Euro 4 qui impose sur le cycle d'homologation une réduction de moitié des émissions de NO_x, ne présente pas d'évolution majeure sur des cycles réels par rapport à Euro 3. Les différentes configurations présentant un renforcement de la catalyse d'oxydation (notamment pour gérer la régénération du FAP), qu'il soit en amont ou sur le FAP, affichent les plus fortes émissions de NO₂.

- A noter que pour les véhicules Euro 3, les émissions de NO, NO₂ et NO_x obtenues avec FAP additivé présentent relativement peu d'écart avec la version sans FAP, le FAP additivé ne nécessitant pas de renforcement de la catalyse d'oxydation pour sa régénération.

- Pour les émissions d'un véhicule lourd diesel

Bien que les données disponibles soient moins nombreuses pour ce type de véhicules, les points suivants ont pu être identifiés :

- Le renforcement des premières générations de normes Euro ne s'est pas toujours traduit par des réductions des émissions de NO_x en conditions réelles de circulation (ce qui a également été observé sur les véhicules légers) ;
- La présence de catalyseur, avec ou sans FAP, conduit systématiquement à une augmentation des émissions de NO₂ ;
- Les émissions de NO_x et de NO₂ sont fortement conditionnées par la combinaison d'un grand nombre de paramètres parmi lesquels figurent le point de fonctionnement du moteur (régime et charge), la recirculation des gaz d'échappement et les technologies de post-traitement.

- Au final, si l'on s'intéresse à l'impact de ces évolutions sur les émissions du parc national de véhicules légers, il ressort des observations et modélisations effectuées (cf Annexe) que :

- Le ratio NO₂/NO_x à l'émission pour le parc de véhicules diesel légers évolue à la hausse depuis 1996, date à laquelle les catalyseurs d'oxydation ont été rendus obligatoires sur les véhicules neufs par la norme Euro 2, et ceci va perdurer.
- Toutefois, si le taux de pénétration des FAP additivés parmi l'ensemble des véhicules équipés de FAP dépassait 30% environ, les émissions globales de NO₂ dues aux véhicules légers devraient se réduire *a minima* jusqu'en 2014, plus ou moins rapidement selon les scénarii « favorable » et « modéré »² retenus par les experts.
- Au contraire, si ce taux était inférieur à 30% environ, on observerait à terme une augmentation du NO₂ émis par les véhicules légers.
- Depuis le début des années 2000, les émissions de NO₂ du parc sont principalement attribuables aux véhicules diesel catalysés d'Euro 2 à 4 (voire 5 avec les scénarii « modéré » et « défavorable »³).
- A l'heure actuelle, du fait de leur faible pénétration dans le parc, les véhicules équipés de FAP associés à un catalyseur d'oxydation ne contribuent que très peu aux émissions totales de NO₂. Cependant, cette contribution devrait augmenter à l'avenir.

Remarque : faute de données suffisantes dans la littérature scientifique, il n'est actuellement pas possible de réaliser le même type d'exercice pour les véhicules lourds.

2 Scénarios favorable et modéré : Part équivalente de FAP additivés et catalysés ; émissions unitaires de NO₂ des véhicules légers diesel Euro 5 réduites par rapport à Euro 4 dans la proportion prévue pour les NO_x par les limites réglementaires pour le scénario favorable, et augmentées de 10% par rapport à Euro 4 pour le scénario modéré.

3 Scénario défavorable : 20 % de FAP additivés et 80 % de FAP catalysés ; émissions unitaires de NO₂ des véhicules légers diesel Euro 5 augmentées de 10% par rapport à Euro 4.

2) Concernant l'évolution dans l'air ambiant des concentrations d'oxydes d'azote (NO, NO₂, NO_x) liés au trafic routier :

- Les situations sont variables en situation de proximité du trafic automobile avec des tendances à la stagnation ou à la hausse des niveaux de NO₂, que ce soit en France ou au niveau d'autres pays européens, et ce depuis le milieu des années 1990. La valeur limite annuelle⁴ de 40 µg/m³ fixée pour le dioxyde d'azote est dépassée sur nombre de ces sites.
- Deux facteurs peuvent expliquer ces tendances observées en proximité du trafic :
 - les processus photochimiques liés entre autres à l'évolution à la hausse des niveaux d'ozone qui peuvent jouer un rôle en réagissant avec le NO primaire émis par le trafic pour former du NO₂,
 - l'évolution à la hausse des émissions primaires de NO₂ du trafic en lien avec la progression de la part des véhicules diesel et leurs évolutions technologiques au sein du parc automobile.
- Enfin, les niveaux de NO₂ relevés dans le flux de circulation et notamment à l'intérieur de l'habitacle de véhicules sont largement supérieurs à ceux que l'on peut observer au niveau des stations de surveillance de proximité au trafic. L'un des paramètres majeurs influençant les niveaux de NO₂ dans l'habitacle est constitué par les émissions des véhicules avoisinant le véhicule considéré, en particulier celui le précédant immédiatement. Les concentrations dans l'habitacle du véhicule augmentent nettement lors des passages en tunnel. Il ne peut cependant être exclu que d'autres paramètres (typologie de l'axe routier emprunté, état de congestion du trafic, topographie des lieux, etc.) influencent également les concentrations à l'intérieur de l'habitacle.

3) Concernant les effets sanitaires du NO₂ :

- Les données toxicologiques montrent que le NO₂ induit des effets toxiques sur le système respiratoire. Ces effets sont décrits dans des études expérimentales à la suite d'expositions à des concentrations en NO₂ supérieures aux valeurs guides.
- Les études épidémiologiques relatives aux expositions au NO₂ sont limitées par leur incapacité à séparer les effets du NO₂ de ceux des autres polluants émis ou formés avec lui, bien que de nombreux travaux méthodologiques soient en cours à ce sujet. En particulier, le NO₂ a déjà été utilisé comme marqueur de la pollution émise par les combustions, notamment celle émise par la circulation routière.
- Les apports de l'approche épidémiologique semblent relativement limités, tant pour ce qui concerne la connaissance des effets sanitaires du NO₂ émis par les véhicules diesel proprement dits, que pour la réalisation d'une évaluation des impacts sanitaires associés à l'introduction de nouvelles technologies de post-traitement dans le parc de véhicules.

S'intéressant plus particulièrement aux études ayant ciblé les effets du NO₂ contenu dans les émissions diesel :

⁴ Directive 2008/50/CE du Parlement européen et du Conseil du 21 mai 2008 concernant la qualité de l'air ambiant et un air pur pour l'Europe

Il n'a pas été trouvé de publication relative à l'impact des dispositifs de post-traitement sur la toxicité des émissions diesel dans leur globalité (phases gazeuse et particulaire) incluant des mesures de NO₂. Les seuls résultats d'études expérimentales disponibles proviennent de travaux réalisés dans le cadre d'un programme de recherche Primequal/Predit⁵ et du programme MAAPHRI⁶, et dont les données ont fait l'objet d'une ré-analyse complète. Au final :

- Les expositions étudiées correspondent à des niveaux élevés par rapport à celles habituellement rencontrées en milieu ambiant.
- Les émissions de moteurs diesels, qu'elles soient ou non filtrées, semblent induire chez le rat des effets biologiques plus marqués lorsqu'elles sont traitées par catalyse d'oxydation (notamment : modulation de l'activité d'enzymes impliquées dans la défense anti-oxydante et inflammation systémique).
- La teneur en NO₂ de ces émissions constitue un traceur de leur traitement par catalyse d'oxydation et de leur potentiel oxydant.
- Tant les données épidémiologiques que les données toxicologiques ne permettent pas d'exclure le rôle d'autres espèces pro oxydantes émises conjointement.

Compte tenu de ces résultats, des niveaux d'exposition au NO₂ (actuels et prospectifs) ont été mis en perspective au regard de différentes valeurs de référence.

Ont été considérés :

- Comme milieu d'exposition : l'intérieur d'habitacle de véhicules légers (situation hors tunnel en agglomération, et en tunnel) ;
- Comme populations étudiées : la population générale et la population professionnelle correspondant aux professions exerçant la conduite d'un véhicule léger (4 et 8 heures par jour) ;
- Comme valeurs de référence :
 - Pour la population générale : 200 µg/m³ sur une heure⁷
 - Pour la population professionnelle : 110 µg/m³ sur 8 heures⁸
400 µg/m³ sur 8 heures⁹
1000 µg/m³ sur 15 minutes¹⁰
- Comme niveaux d'exposition :
 - Actuels : 130 à 560 µg/m³ en 2007 en situation hors tunnel
 - Prospectifs : 100 à 550 µg/m³ en 2014 en situation hors tunnel¹¹

5 Rapport mis en ligne sur le site de Primequal/Predit (<http://www.primequal.fr/files/doc/899185bb1ea1e50e.pdf>)

6 Morin J-P, et al. Prevalidation of in vitro continuous flow exposure systems as alternatives to in vivo inhalation safety evaluation experiments: Outcome from MAAPHRI-PCRD5 research program. Exp Toxicol Pathol (2008), doi:10.1016/j.etp.2008.01.007

7 Valeur sanitaire : Valeur guide de l'OMS

8 Valeur sanitaire : Valeur obtenue par l'ajustement de la valeur guide OMS de 200 µg/m³ sur une heure pour une durée d'exposition de 8 heures. Cet ajustement a été effectué en utilisant une relation générale concentration-temps-réponse dont est issue la loi de Haber.

9 Valeur de gestion : VLEP du SCOEL (Scientific Committee on Occupational Exposure Limits (ou comité scientifique en matière de limites d'exposition professionnelle à des agents chimiques), institué par la décision 95/320/CE de la Commission européenne)

10 Valeur de gestion : VLEP du SCOEL (Scientific Committee on Occupational Exposure Limits (ou comité scientifique en matière de limites d'exposition professionnelle à des agents chimiques), institué par la décision 95/320/CE de la Commission européenne)

Il ressort que dans la majeure partie des situations envisagées, les niveaux d'exposition au NO₂ projetés dépassent les valeurs de référence retenues. Les limites de cette analyse ne semblent pas à même de remettre en cause les conclusions qui peuvent en être tirées.

Actuellement, les niveaux de NO₂ auxquels sont exposés les usagers de véhicules légers en agglomérations, tant en population générale qu'en population professionnelle, peuvent induire des effets toxiques sur le système respiratoire, en particulier pour les populations sensibles (asthmatiques notamment). L'évolution de cette situation jusqu'en 2014 (entrée en vigueur de la norme Euro 6) dépendra de la répartition au sein du parc des technologies de dépollution parmi celles connues à ce jour et des mesures de gestion qui conditionnent les émissions du parc.

Autres points d'intérêt au niveau international

Deux voies ont été plus particulièrement investiguées :

- 1) la responsabilité des technologies de traitement des émissions (filtres à particules, catalyseurs d'oxydation, ...) dans l'évolution des concentrations de NO₂ et particules dans l'air ;
- 2) les mesures de gestion visant à réduire les émissions de particules tout en limitant les émissions de NO₂ des véhicules routiers équipés de technologies de traitement des émissions.

1) Des études anglaises menées par l'Institute for Transport Studies^{12/13} et une expertise de l'Air Quality Expert Group (AQEG)¹⁴ ont investigué la responsabilité des émissions primaires de NO₂ du trafic dans l'augmentation des concentrations de NO₂ mesurées dans l'air. Ces études ont montré particulièrement :

- une augmentation des concentrations de NO₂ dans l'air et surtout du rapport NO₂/NO_x de façon statistiquement significative à Londres ;
- que la mise en place de filtres à particules catalysés (CRT, continuously Regenerating Trap) sur les bus londoniens explique principalement ces résultats, leur proportion étant passée de 39% à 79% entre 2002 et 2004, ainsi que la réduction du trafic de véhicules particuliers par ailleurs ;
- une très forte diminution de la concentration des PM_{2,5} (particules fines < 2,5µm) et une diminution plus faible de la concentration des particules plus grossières, parallèlement aux observations précédentes¹³ ;
- que l'hypothèse de la responsabilité d'une augmentation de la concentration de fond de l'ozone a été éliminée¹³.

11 Trois scénarios (minorant, moyen, maximalisant) ont été retenus afin d'estimer les niveaux moyens de NO₂ dans l'habitacle d'un véhicule léger en fonction des émissions globales de NO₂ du parc automobile entre 2007 et 2014. Ils se basent d'une part sur la distribution des concentrations en NO₂ mesurées en 2007 dans des habitacles de véhicules légers, sur les agglomérations de Rouen et Paris, d'autre part sur des scénarios d'évolution des émissions du parc automobile.

12 Evidence of an increasing NO₂/NO_x emissions ratio from road traffic emissions. (D.C.Carslaw, 2005)

13 Detecting and characterising small changes in urban nitrogen dioxide concentrations (D C Carslaw, N Carslaw, 2007)

14 DEFRA draft report - Trends in Primary Nitrogen Dioxide in the UK (Air Quality Expert Group, 2006)

2) Il n'a pas été identifié, en France, de procédures testant la qualité des systèmes de filtres à particules pour les véhicules routiers, et tenant compte du NO₂. Ce type de procédures existe cependant à l'étranger (Suisse, Allemagne, Autriche, Etats-Unis, ...) :

- Tests de qualité VERT¹⁵
 - Basés notamment sur l'efficacité des systèmes de FAP concernant la rétention des particules ultrafines, la limitation des émissions secondaires (ex : NO₂) et la durabilité.
 - Aucune augmentation significative de produits de réaction pouvant nuire à l'environnement ou à la santé par rapport à l'état initial du moteur n'est admise dans les gaz d'échappement épurés en aval du filtre¹⁶. Cela vaut entre autres pour le NO₂. En outre, l'augmentation du rapport NO₂/NO_x, mesuré selon la norme SNR 277205, ne doit pas dépasser 30 % (valable depuis le 1^{er} janvier 2008).
 - Les systèmes de FAP ayant passé avec succès ces tests sont publiés et recommandés par l'Office fédéral suisse de l'environnement et la Suva pour l'équipement ultérieur de moteurs diesel. L'AKPF¹⁷ met à disposition un label « Filtres VERT ».
 - Contrairement aux engins de chantiers (construction, tunnels), l'application des tests de qualité VERT aux véhicules routiers ne constitue pas à ce jour une obligation réglementaire en Suisse.
 - L'évaluation de systèmes de FAP en vertu des tests de qualité VERT est appliquée par plusieurs organisations (OFEV, Suva, OFROU – Suisse ; AUVA, TIROL, Vienne – Autriche ; TBG, UBA, TRGS – Allemagne; CARB, MSHA – USA ; VROM – Pays-Bas ; SÜDTIROL – Italie ; CONAMA – Chili ; DTI – Danemark ; DEEP – Canada ; LEZ London – Angleterre).
- Procédure de vérification des technologies de *retrofit* (c'est à dire, en installation sur un moteur existant) mise en œuvre par l'US-EPA¹⁸
 - Protocoles établis pour la vérification des catalyseurs, des FAP, des modifications moteurs, et des technologies SCR.
 - Basés notamment sur l'efficacité des systèmes concernant la réduction des particules, CO, NO_x et HC, et sur la durabilité.
 - L'augmentation des émissions de NO₂ issues des technologies vérifiées est limitée à 20 % du niveau de base des émissions moteur de NO₂ (valable depuis le 1^{er} janvier 2009).

15 VERT: Verminderung der Emissionen von Realmaschinen im Tunnelbau (=réduction des émissions de machines réelles dans la construction de tunnels), un projet d'étude des possibilités techniques de minimiser les émissions de particules diesel des moteurs, (1994–1999). Projet commun de la Caisse nationale suisse d'assurance en cas d'accidents (Suva), du Österreichisches Unfallversicherungsanstalt (AUVA), de la Deutsche Tiefbauberufsgenossenschaft (TBG), de l'Office fédéral de l'environnement, des forêts et du paysage (OFEFP) suisse et du Umweltbundesamtes (UBA) allemand, ainsi que d'un grand groupe d'accompagnement de l'industrie (www.suva.ch).

16 Une émission secondaire de ce type est « significative » lorsque des concentrations de polluants mesurées dans l'effluent gazeux en aval du filtre sont plus de trois fois plus élevées que les émissions du moteur non équipé d'un système de filtre à particules. Sont en principe considérées comme émissions secondaires toutes les substances toxiques qui ne se trouvent pas dans les gaz d'échappement d'un moteur non équipé d'un filtre à particules ou qui s'y trouvent en concentration nettement plus faible.

17 AKPF : Groupe de travail des fabricants de filtres à particules (Arbeitskreis des Partikelfilter-System-Hersteller)

18 US-EPA : Agence américaine de protection de l'environnement (Environmental Protection Agency)

- Les technologies de *retrofit* dont la vérification a été approuvée sont publiées dans la liste « Verified Technologies ».
- Procédure de vérification des stratégies de contrôle des émissions diesel mise en œuvre par le CARB¹⁹
 - Procédure établie pour la vérification des catalyseurs d'oxydation, des FAP, des filtres « flow-through »²⁰ (forme de post-traitement hybride qui permet une réduction des particules grâce à une catalyse d'oxydation et une filtration), des technologies de contrôle des NO_x (EGR, technologies SCR, technologies de catalyse « lean-NO_x »), sur les moteurs diesel en service.
 - Basée notamment sur l'efficacité des systèmes concernant la réduction des particules et des NO_x, et sur la durabilité.
 - L'augmentation des émissions de NO₂ issues des technologies vérifiées est limitée à 20 % du niveau de base des émissions moteur de NO₂ (valable depuis le 1^{er} janvier 2009, auparavant limitée à 30 % depuis le 1^{er} janvier 2007).
 - Les stratégies de contrôle des émissions diesel dont la vérification a été approuvée sont publiées dans la liste « Currently verified ».
 - Procédure reprise dans la réglementation californienne (California Code of Regulations, Title 13, Division 3) et qui constitue une obligation réglementaire de conformité. La limite de 20 % d'augmentation de NO₂ (cf ci-dessus) est une limite réglementaire.

Ces trois procédures utilisées par des acteurs industriels à l'étranger ont montré leur opérationnalité.

Avis

→ En premier lieu, l'Afsset rappelle que la pollution atmosphérique reste une préoccupation de santé publique majeure. Dioxyde d'azote (NO₂) et particules fines sont connus pour être des indicateurs de la pollution atmosphérique. Ils sont particulièrement associés au trafic routier dans les agglomérations. Des effets à court et long termes sont rapportés pour ces deux polluants avec, pour les particules, un impact sanitaire à long terme dominant sur l'impact sanitaire à court terme.

Ces deux polluants sont à considérer conjointement dans les politiques de gestion de la pollution atmosphérique tant du fait de leurs effets sur la santé que de leur aptitude à être précurseur de polluants secondaires également néfastes (le NO₂ est en effet précurseur d'ozone, de particules secondaires, ...).

Enfin, l'Afsset rappelle que les émissions de moteurs diesel sont classées par l'International Agency for Research on Cancer (IARC) comme probablement cancérogènes pour l'homme (groupe 2A).

19 CARB : Californian Air Resources Board, conseil émanant de l'agence californienne de protection de l'environnement (Cal-EPA)

20 Filtres « flow-through » : forme de post-traitement hybride qui permet une réduction des particules grâce à une catalyse d'oxydation et une filtration.

Dans ce cadre, compte tenu des résultats de ces travaux et des évolutions possibles du parc national de véhicules légers dans les années à venir, l'Afsset estime que :

→ Un bénéfice sanitaire peut être attendu de la mise en œuvre de dispositifs de dépollution incluant un filtre à particules sur les véhicules diesel, du fait notamment de la forte réduction des émissions de particules dont les effets sanitaires sont reconnus. Cependant, lorsque la mise en œuvre de dispositifs de dépollution incluant un filtre à particules s'accompagne d'une surproduction de NO₂, les résultats des présents travaux montrent que la situation au regard de ce polluant demeure préoccupante notamment pour les occupants des véhicules légers en agglomérations. D'un point de vue sanitaire, les niveaux de NO₂ auxquels ils sont d'ores et déjà exposés indiquent, au regard des valeurs de référence, la possibilité de survenue d'effets sanitaires.

→ Ces éléments montrent l'utilité qu'il y aurait à mesurer systématiquement les émissions de NO₂ lors des cycles d'homologation en complément des mesures d'émission de NO_x, et de rendre accessibles les résultats de mesure. De fait, la norme Euro VI (véhicules lourds) impose la mesure des émissions de NO₂ et laisse la possibilité de la définition ultérieure d'une valeur limite portant sur ces émissions. Ce n'est en revanche pas le cas de la norme Euro 6 (véhicules légers).

→ La méthode de mesure à l'émission des NO et NO₂ qui apparaît la plus appropriée est la chimiluminescence en ligne chauffée avec déshumidificateur, afin d'éviter la conversion de NO en NO₂, la condensation, et la formation de HNO₃ non mesuré.

→ Les mesures de gestion qui viseraient à encourager la mise en place de filtres à particules, par exemple sur des flottes de véhicules captifs (bus, véhicules utilitaires, taxis, etc.), devront s'assurer de limiter tant que possible la génération de polluants additionnels, en particulier le dioxyde d'azote (NO₂).

→ Sur la base des connaissances disponibles, il n'est pas possible à l'heure actuelle d'estimer les impacts sanitaires respectifs des émissions de NO₂ et de particules induites par les différentes technologies de post-traitement des émissions diesel. En effet, les relations exposition-risque actuelles et issues des études épidémiologiques ne sont pas capables de séparer les effets sanitaires d'un polluant considéré de ceux des autres polluants émis ou formés avec lui, bien que de nombreux travaux méthodologiques soient en cours à ce sujet.

Recommandations

Concernant les normes portant sur les émissions des moteurs diesel :

→ l'Afsset recommande de systématiser dans les réglementations sur les émissions la prise en compte spécifique du NO₂ en complément des normes relatives aux NO_x totaux à l'émission. Sans attendre les révisions réglementaires, l'Afsset encourage que des recommandations officielles allant dans ce sens soient élaborées.

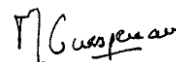
De plus, et considérant :

- les résultats de la présente expertise collective,
 - le taux de diésélisation particulièrement important du parc roulant français,
 - une certaine généralisation attendue des filtres à particules pouvant parfois être associés à une catalyse d'oxydation,
 - et l'existence de procédures testant la qualité des systèmes de filtres à particules pour les véhicules routiers, et tenant compte du NO₂ (utilisées notamment aux Etats-Unis, en Suisse, en Allemagne et en Autriche),
- l'Afsset préconise la mise en place d'un dispositif d'évaluation de l'efficacité des technologies de contrôle des émissions diesel (y compris FAP, catalyseurs d'oxydation, technologies de contrôle des NO_x) en s'appuyant sur les expériences de la Suisse, Allemagne, Autriche et des Etats-Unis. Le dispositif prendra notamment en compte la réduction des particules, la réduction des NO_x, la limitation des émissions de NO₂ et la durabilité des technologies.

Concernant l'amélioration des connaissances, l'Afsset recommande :

- de mieux documenter les niveaux des polluants émis par le trafic automobile à sa proximité immédiate²¹, et leurs déterminants (par exemple, influence de la position de l'échappement sur les niveaux mesurés dans le sillage), compte tenu de l'ampleur des populations concernées, et de l'identification dans les présents travaux de l'intérêt de ces milieux.
- de mieux documenter les émissions de NO₂ des véhicules ; en particulier pour les véhicules déjà en circulation et notamment les véhicules lourds, afin de mieux renseigner l'influence des technologies sur les émissions, mesurées sur cycle et en conditions réelles.
- de renforcer les connaissances dans le domaine de la toxicologie des émissions des véhicules diesels équipés de dispositifs de post-traitement. L'Afsset a constaté au cours de ses travaux la rareté des données disponibles concernant la toxicologie des émissions des véhicules diesels équipés de dispositifs de post-traitement. En particulier, il est préconisé de renforcer les travaux sur la toxicité des émissions considérées dans leur globalité (aérosols émis comprenant les phases gazeuse et particulaire).

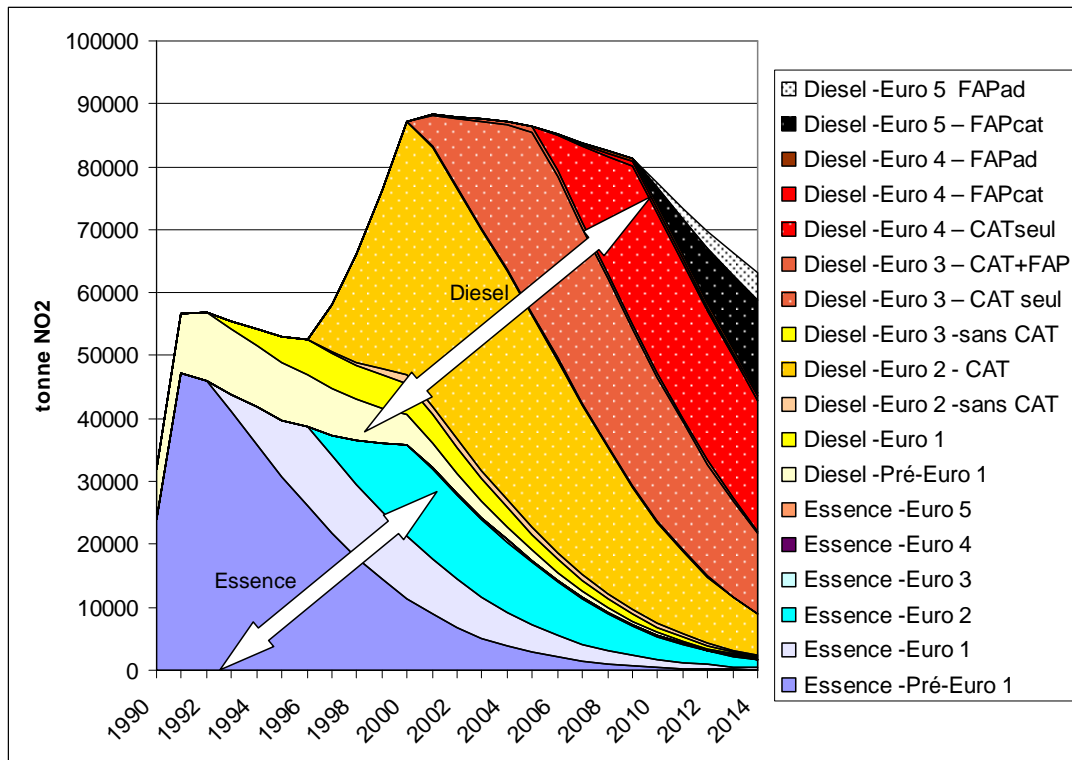
Le Directeur général



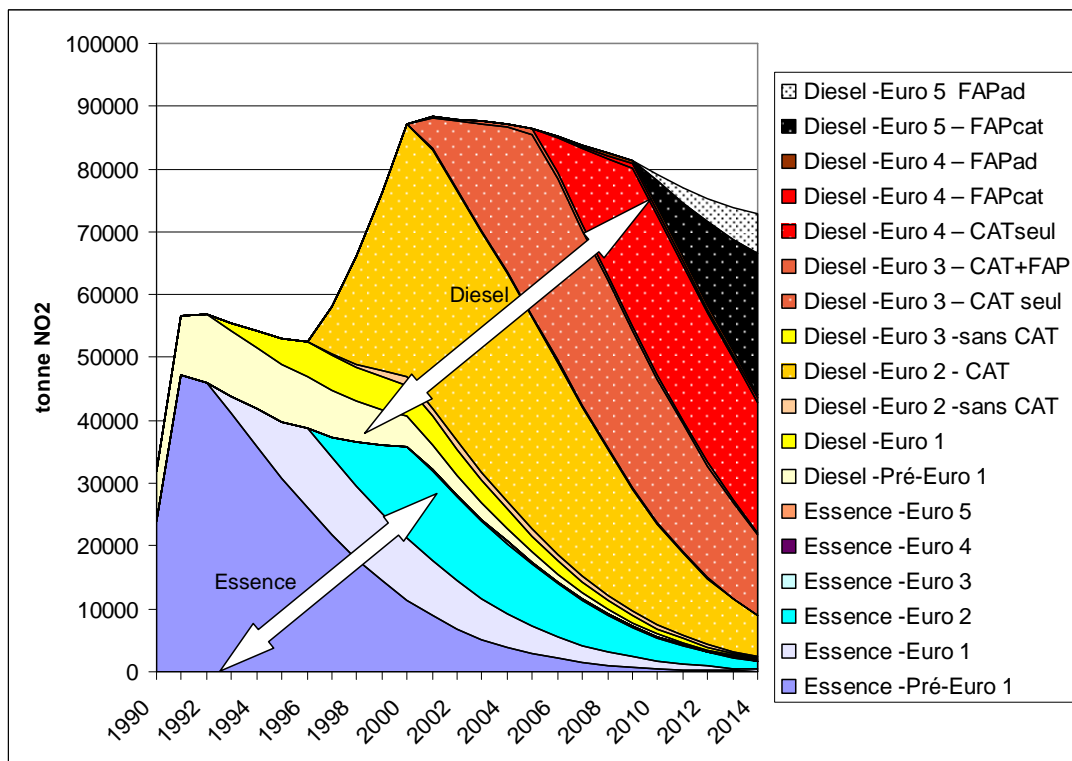
Martin GUESPEREAU

²¹ Proximité immédiate au trafic automobile : cette notion comprend l'ensemble des zones aériennes situées au plus proche du trafic automobile (plus proches que les zones d'implantation des stations fixes de surveillance de la qualité de l'air dites « de proximité au trafic », gérées par les associations agréées pour la surveillance de la qualité de l'air), où l'air est susceptible d'être respiré (ex : dans l'habitacle d'un véhicule inséré dans le trafic, dans le sillage d'un véhicule inséré dans le trafic, ...).

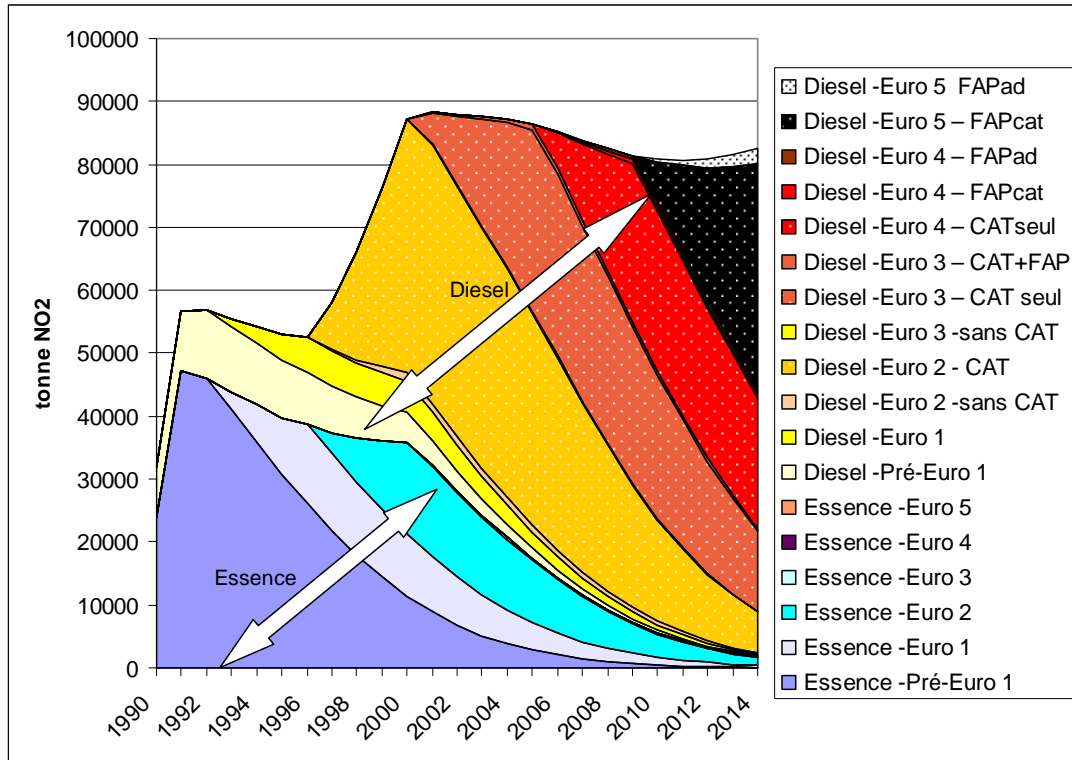
Annexe : Emissions de NO₂ du parc national de véhicules légers



Scénario « favorable »



Scénario « modéré »



Scénario « défavorable »



agence française de sécurité sanitaire de l'environnement et du travail

**Impact des technologies de post-traitement sur
les émissions de dioxyde d'azote de véhicules diesel,
et aspects sanitaires associés**

Saisine n°2006-009

**RAPPORT
d'expertise collective**

CES « Milieux aériens »

Groupe de travail « Dioxyde d'azote et véhicules diesel »

Mars 2009

GROUPE DE TRAVAIL :

Présidente :

Mme Agnès LEFRANC – Epidémiologiste et Adjointe au responsable du département santé-environnement (InVS) – Spécialités : Epidémiologie, Evaluation d'impact sanitaire.

Membres :

M. Alexandre ARMENGAUD – Ingénieur (ATMO PACA) – Spécialités : Surveillance et modélisation de la qualité de l'air.

Mme Armelle BAEZA – Maître de conférence (Université Paris Diderot) – Spécialités : Toxicologie cellulaire, Polluants particuliers.

M. Olivier BLANCHARD – Ingénieur de recherche (INERIS) – Spécialités : Evaluation des risques sanitaires, Pollution atmosphérique.

Mme Véronique DELMAS – Directrice (Air Normand) – Spécialités : Surveillance de la qualité de l'air.

M. Christian ELICHEGARAY – Chef du département « Surveillance de la qualité de l'Air » (ADEME) – Spécialités : Physico-chimie de l'atmosphère, Surveillance de la qualité de l'air.

M. Rémy LAGACHE – Directeur adjoint du Laboratoire Régional des Ponts et Chaussées de Lille (CETE Nord-Picardie) – Spécialités : Métrologie, modélisation des émissions dans l'environnement.

Mme Fabienne MARSEILLE – Ingénieur des travaux publics de l'Etat, chargée d'étude « Air et Santé » (CETE Lyon/CERTU) – Spécialités : ERS, pollution atmosphérique

M. Alain MORCHEOINE – Directeur « Air, Bruit et Efficacité énergétique » (ADEME) – Spécialités : Pollution atmosphérique, Transports.

M. Jean-Paul MORIN – Chargé de recherche (INSERM-U644) – Spécialités : Toxicologie des aérosols, Emissions des moteurs à combustion.

M. Gabriel PLASSAT – Ingénieur moteurs et carburants (ADEME) – Spécialités : Moteurs, Carburants, Systèmes de post-traitement des émissions, Métrologie.

Coordination et contribution scientifique :

Mme Valérie PERNELET-JOLY, chef d'unité – DESET - Afsset

M. Matteo REDAELLI, chef de projets scientifiques – DESET - Afsset

Secrétariat administratif :

Mme Véronique QUESNEL, DESET – Afsset

AUDITIONS DE PERSONNALITES EXTERIEURES :

Société TTM (Suisse)

M. MAYER, Ingénieur consultant

Association for Emissions Control by Catalyst (Belgique)

M. BOSTEELS, Directeur Général

Office Fédéral Allemand de l'Environnement (Allemagne)

M. FRIEDRICH, Chef de la section Transports

Au titre de consultant indépendant international

M. LEMAIRE, Consultant

AIRPARIF, Association Agréée de Surveillance de la Qualité de l'Air

M. LAMELOISE, Directeur

Mme MARFAING, Adjointe au directeur et responsable du service technique

AIRNORMAND, Association Agréée de Surveillance de la Qualité de l'Air

M. BOBBIA, Ingénieur chargé d'étude

Centre d'étude et de recherche technologique en aérothermique et moteurs (CERTAM)

M. GOURIOU, Ingénieur de recherche

Institut National de Recherche et de Sécurité pour la prévention des accidents du travail et des maladies professionnelles (INRS)

M. COURTOIS, Ingénieur chimiste

CONTRIBUTIONS EXTERIEURES AU GROUPE :

Extraction de données statistiques relatives aux oxydes d'azote (NO_x, NO, NO₂) au niveau national depuis la BDQA (*Ademe*)

Traitement de données relatif à l'évolution des concentrations d'oxydes d'azote (NO, NO₂) à proximité du trafic routier – Région Ile-de-France (*AIRPARIF*)

Traitement de données relatif à l'évolution des concentrations d'oxydes d'azote (NO, NO₂) à proximité du trafic routier – Région Alsace (*ASPA*)

Traitement de données relatif à l'évolution des concentrations d'oxydes d'azote (NO, NO₂) à proximité du trafic routier – Région PACA (*ATMO PACA*)

Traitement de données relatif à l'évolution des concentrations d'oxydes d'azote (NO, NO₂) à proximité du trafic routier – Région Haute Normandie (*AIR NORMAND*)

Traitement de données relatif à l'évolution des concentrations d'oxydes d'azote (NO, NO₂) à proximité du trafic routier – Région Rhône Alpes (*ATMO RhôneAlpes*)

Traitement de données relatif à l'évolution des concentrations d'oxydes d'azote (NO, NO₂) à proximité du trafic routier – Région Aquitaine (*AIRAQ*)

Traitement de données relatif à l'évolution des concentrations d'oxydes d'azote (NO, NO₂) à proximité du trafic routier – Région Nord-Pas de Calais (*ATMO Nord – Pas de Calais*)

Appui pour l'ajustement temporel de la valeur guide OMS du NO₂ établie sur une heure (200 µg/m³) pour une durée d'exposition de 8 heures (cf annexe 15) – M^{elle} Emel BELKEBIR (*Afsset*)

PRESENTATION DU RAPPORT :

Les travaux menés par le groupe de travail ont été présentés au CES « Evaluation des risques liés aux milieux aériens » lors des séances plénières des :

- 10 octobre 2007
- 6 février 2008
- 27 mars 2008
- 21 janvier 2009
- 5 mai 2009

Ce rapport préparé par le groupe de travail a été soumis pour commentaires puis pour adoption au CES « Evaluation des risques liés aux milieux aériens » lors de sa séance du 5 mai 2009. Le CES a adopté à l'unanimité les travaux repris dans ce rapport.

Ce rapport fait suite à un rapport intermédiaire soumis pour commentaires au CES lors de sa séance du 27 mars 2008. Le CES avait adopté à l'unanimité les conclusions intermédiaires présentées.

MOTS CLES :

dioxyde d'azote, effet santé, filtre particule, catalyseur, émission, oxyde d'azote, norme Euro, pollution atmosphérique, véhicule diesel, exposition automobile, habitacle

SOMMAIRE

EXPERTISE COLLECTIVE : SYNTHÈSE ET CONCLUSIONS	8
ABREVIATIONS	20
LISTE DES TABLEAUX.....	24
LISTE DES FIGURES	24
1 CONTEXTE, OBJET ET MODALITÉS DE TRAITEMENT DE LA SAISINE	30
1.1 <i>Introduction</i>	30
1.2 <i>La saisine</i>	30
1.3 <i>La démarche en réponse</i>	31
1.3.1 L'analyse préalable	31
1.3.2 Le groupe de travail (GT)	32
1.3.3 Axes de travail du GT	33
2 INFLUENCE DES TECHNOLOGIES ET DES NORMES SUR LES ÉMISSIONS D'OXYDES D'AZOTE (NO, NO₂ ET NO_x) DES VÉHICULES ROUTIERS	34
2.1 <i>Objectif</i>	34
2.2 <i>Analyse des résultats issus de la revue bibliographique</i>	34
2.2.1 Répartition des émissions NO _x par catégories de véhicules	34
2.2.2 Véhicules légers	35
2.2.3 Véhicules lourds	43
2.2.4 Conclusions.....	49
2.2.5 Perspectives	50
3 CONCENTRATIONS DANS L'AIR AMBIANT DES OXYDES D'AZOTE (NO, NO₂, NO_x) LIÉS AU TRAFIC ROUTIER	51
3.1 <i>Introduction</i>	51
3.2 <i>Analyse globale des données de surveillance françaises</i>	52
3.2.1 Introduction.....	52
3.2.2 Valeurs limites de qualité de l'air pour le NO ₂	53
3.2.3 Matériel et méthodes.....	53
3.2.4 Evolution des concentrations d'oxydes d'azote (NO, NO ₂ , NO _x) dans l'air ambiant et discussion	55
3.2.5 Evolution du ratio NO ₂ /NO _x dans l'air ambiant et discussion.....	57
3.2.6 Conclusion.....	61
3.3 <i>Analyse spécifique de données de surveillance françaises ciblées</i>	61
3.3.1 Le cas de l'agglomération parisienne	61
3.3.2 Observations au niveau d'autres agglomérations françaises	73
3.4 <i>Analyse de données de pollution européennes</i>	76
3.5 <i>Données de mesure dans le flux de circulation</i>	77
3.5.1 Introduction.....	77
3.5.2 Etude exploratoire menée en Ile-de-France par Airparif.....	77
3.5.3 Principaux résultats de mesures dynamiques embarquées en habitacle de véhicules insérés dans le trafic réalisées par l'Inserm et le Certam	81
3.5.4 Conclusions.....	84
4 ASPECTS SANITAIRES LIÉS AU NO₂, NOTAMMENT ASSOCIÉ AUX DIFFÉRENTES TECHNOLOGIES DE POST TRAITEMENT DES ÉMISSIONS DIESEL	85
4.1 <i>Synthèse des effets sanitaires du NO₂</i>	85
4.2 <i>Effets sanitaires du NO₂ contenu dans les émissions diesel</i>	87
4.2.1 Apport des études expérimentales d'exposition chez l'animal en chambre d'inhalation	87
4.2.2 Etude expérimentale in vitro	103
4.2.3 Conclusion	105
5 MISE EN PERSPECTIVE DE NIVEAUX D'EXPOSITION AU NO₂ (ACTUELS ET PROSPECTIFS) AU REGARD DE DIFFÉRENTES VALEURS DE RÉFÉRENCE (VTR, AQG, VLEP).....	107
5.1 <i>Introduction</i>	107
5.2 <i>Identification et sélection de valeurs « sanitaires » de référence (VTR, AQG, VLEP) pour le NO₂</i>	107
5.2.1 Méthode	107
5.2.2 Valeurs recensées.....	109
5.2.3 Valeurs retenues par le GT pour l'exercice de mise en perspective	112
5.3 <i>Identification des principaux déterminants de l'exposition</i>	113
5.3.1 Milieux d'exposition	113
5.3.2 Populations principalement exposées.....	113
5.3.3 Voie(s) d'exposition concernée(s)	114
5.3.4 Durées et fréquences d'exposition	114

5.4	<i>Estimation prospective des niveaux d'exposition dans l'habitacle d'un véhicule léger</i>	115
5.4.1	Objectif	115
5.4.2	Hypothèses.....	115
5.4.3	Outils et méthode de calcul.....	116
5.4.4	Résultats.....	118
5.5	<i>Mise en perspective des niveaux d'exposition estimés avec les valeurs de référence retenues (VTR, AQG, VLEP).</i>	120
5.5.1	Méthode	120
5.5.2	Résultats - Scénarios « hors tunnel »	120
5.5.3	Résultats - Scénarios « tunnel »	121
5.6	<i>Limites</i>	121
5.7	<i>Conclusion</i>	122
6	CONCLUSIONS	123
7	RECOMMANDATIONS.....	128
8	BIBLIOGRAPHIE	129
8.1	<i>Chapitre 2 : Influence des technologies et des normes sur les émissions d'oxydes d'azote (NO, NO₂ et NO_x) des véhicules routiers</i>	129
8.2	<i>Chapitre 3 : Concentrations dans l'air ambiant des oxydes d'azote (NO, NO₂, NO_x) liés au trafic routier</i>	130
8.3	<i>Chapitre 4 : Aspects sanitaires liés au NO₂, notamment associé aux différentes technologies de post traitement des émissions diesel</i>	132
8.4	<i>Chapitre 5 : Mise en perspective de niveaux d'exposition au NO₂ (actuels et prospectifs) au regard de différentes valeurs de référence (VTR, AQG, VLEP)</i>	138
ANNEXE 1 : LETTRE DE SAISINE		142
ANNEXE 2 : PRESENTATION DES POSITIONS DIVERGENTES		144
ANNEXE 3 : SYNTHÈSE DES DECLARATIONS PUBLIQUES D'INTERET		145
ANNEXE 4 : ÉLÉMENTS D'EXPLICATION CONCERNANT LES NORMES EURO		159
ANNEXE 5 : ÉLÉMENTS D'EXPLICATION CONCERNANT LES EMISSIONS MOTEUR ET LES TECHNOLOGIES DE REDUCTION DES EMISSIONS		165
	Le moteur à allumage commandé	165
	Le moteur Diesel	166
	Le catalyseur.....	166
	Systèmes de réduction des NO _x	168
	Systèmes de réduction des particules.....	184
ANNEXE 6 : ELEMENTS CONCERNANT LA METHODE DE MESURE DES EMISSIONS DE NO ET NO₂		191
ANNEXE 7 : DETAIL DES ANALYSES EFFECTUEES A PARTIR DES NIVEAUX DE POLLUANTS MESURES AU NIVEAU DE STATIONS DE PROXIMITE AU TRAFIC DANS 8 AGGLOMERATIONS FRANÇAISES		195
ANNEXE 8 : ÉVOLUTION DES NIVEAUX D'OXYDES D'AZOTE A PROXIMITE DU TRAFIC ROUTIER EN FONCTION DES NIVEAUX D'OZONE, SUR 3 SITES (MARSEILLE, VALENCE ET ROUEN)		204
ANNEXE 9 : ÉLÉMENTS CONCERNANT L'ÉVOLUTION DES CONCENTRATIONS D'OXYDE D'AZOTE DANS L'AIR AMBIANT EN EUROPE		213
	Evolution des concentrations d'oxydes d'azote (NO, NO ₂ , NO _x) dans l'air ambiant, en Europe	213
	Evolution des concentrations d'oxydes d'azote (NO, NO ₂ , NO _x) dans l'air ambiant de sites ciblés en Europe.....	217
	Synthèses d'études anglaises sur la responsabilité des émissions primaires de NO ₂ du trafic dans la pollution atmosphérique au NO ₂	222
ANNEXE 10 : EFFETS SANITAIRES DU DIOXYDE D'AZOTE		229
	Cinétique et métabolisme.....	229
	Synthèse d'études expérimentales (animal, tests in vitro).....	229
	Synthèse d'études d'exposition humaine contrôlée	234
	Synthèse d'études épidémiologiques	239

ANNEXE 11 : EFFETS A COURTS TERMES DU NO₂ : ETUDES EN POPULATIONS BASEES SUR L’AIR EXTERIEUR (OMS, 2006).....	244
ANNEXE 12 : EFFETS A LONGS TERMES DU NO₂ : ETUDES DE COHORTE SUR L’ASTHME, AFFECTIONS ET FONCTION RESPIRATOIRES (OMS, 2006).....	245
ANNEXE 13 : EFFETS A LONGS TERMES DU NO₂ : ETUDES SUR LES RISQUES DE CANCER (OMS, 2006).....	246
ANNEXE 14 : EFFETS A LONGS TERMES DU NO₂ : ETUDES RELATIVES AUX EFFETS SUR LE FETUS (OMS, 2006)	247
ANNEXE 15 : AJUSTEMENT TEMPOREL DE LA VALEUR GUIDE OMS DU NO₂ ETABLIE SUR UNE HEURE (200 µg/m³) POUR UNE DUREE D’EXPOSITION DE 8 HEURES	248

Expertise collective : synthèse et conclusions

EXPERTISE COLLECTIVE : SYNTHÈSE ET CONCLUSIONS

Relatif à « Impact des technologies de post-traitement sur les émissions de NO₂ de véhicules diesel, et aspects sanitaires associés »
Saisine Afsset n°« 2006-009 »

Ce document synthétise les travaux du groupe de travail et présente les éventuels compléments du Comité d'Experts Spécialisés (CES).

1	Contexte	9
2	Présentation de la question posée	9
3	Organisation de l'expertise	10
4	Description de la méthode	10
4.1	Influence des technologies et des normes sur les émissions d'oxydes d'azote (NO, NO ₂ et NO _x) des véhicules routiers	10
4.2	Concentrations dans l'air ambiant des oxydes d'azote (NO, NO ₂ , NO _x) liés au trafic routier	11
4.3	Aspects sanitaires liés au NO ₂ , notamment associé aux différentes technologies de post traitement des émissions diesel	11
4.4	Mise en perspective de niveaux d'exposition au NO ₂ (actuels et prospectifs) au regard de différentes valeurs de référence	12
5	Résultats et conclusions de l'expertise collective	12
5.1	Influence des technologies et des normes sur les émissions d'oxydes d'azote (NO, NO ₂ et NO _x) des véhicules routiers	12
5.2	Concentrations dans l'air ambiant des oxydes d'azote (NO, NO ₂ , NO _x) liés au trafic routier	13
5.3	Aspects sanitaires liés au NO ₂ , notamment associé aux différentes technologies de post traitement des émissions diesel	14
5.4	Mise en perspective de niveaux d'exposition au NO ₂ (actuels et prospectifs) au regard de différentes valeurs de référence	16
6	Recommandations de l'expertise collective	19
6.1	Concernant l'amélioration des connaissances	19
6.2	Prise en compte des aspects sanitaires associés aux différentes technologies de post-traitement dans les normes portant sur les émissions des moteurs diesel	19

1 Contexte

Les différentes réglementations européennes en cours d'élaboration, et notamment les réglementations Euro relatives aux émissions des véhicules particuliers et des poids lourds, fixent des limites d'émissions en particules pour les véhicules diesels. Ces limites entraîneront probablement une certaine généralisation des filtres à particules sur ces véhicules, en parallèle à l'introduction éventuelle de nouveaux modes de combustion homogène (ex : technologie type HCCI) qui pourraient permettre de réduire les émissions à la sortie du moteur et de revoir ainsi la conception de la ligne d'échappement au niveau des systèmes de post traitement.

Les filtres à particules (FAP) permettent de réduire les émissions de particules en masse et en nombre.

Or, certaines technologies disponibles sur le marché associent la catalyse d'oxydation (catalyseur d'oxydation) au FAP et à l'heure actuelle, différentes conclusions d'études européennes et californiennes indiquent que les technologies incluant un catalyseur d'oxydation entraînent une augmentation significative des émissions de NO₂ (traduite par un ratio NO₂/NO_x plus élevé) sans qu'un effet soit observable sur les émissions globales de NO_x.

2 Présentation de la question posée

L'Afsset a été saisie le 24 août 2006 par le ministère de la santé et des solidarités, le ministère de l'écologie et du développement durable et le ministère de l'emploi, de la cohésion sociale et du logement afin de procéder à une expertise relative à « l'évaluation des impacts sanitaires relatifs des émissions de particules et de dioxyde d'azote (NO₂) des véhicules diesel ».

Après une phase d'analyse de la saisine, le CES « Evaluation des risques liés aux milieux aériens » a validé une approche déclinée en trois axes de travail, traitant prioritairement des oxydes d'azote au vu du contexte, et acceptée formellement le 13 mars 2007 par le ministère de la santé et des solidarités, le ministère de l'écologie et du développement durable et le ministère de l'emploi, de la cohésion sociale et du logement :

- **Axe 1 :** Analyser l'ensemble des données bibliographiques disponibles avec plus particulièrement :
 - Une analyse des données de pollution françaises et européennes (en situation de proximité et de fond) dans le but notamment d'identifier un signal sur les concentrations d'oxydes d'azote (NO_x et NO₂) ;
 - Une analyse des données publiées dans la littérature scientifique, relatives aux émissions des véhicules diesel, et en particulier à l'évolution des émissions de dioxyde d'azote (NO₂) ;
 - Une revue des données bibliographiques existantes relatives aux conditions de mesure des émissions de dioxyde d'azote (NO₂).
- **Axe 2 :** Identifier les impacts différenciés des technologies de couplage de catalyseur d'oxydation et de filtre à particules (FAP) sur les émissions de NO_x et le ratio NO₂/NO_x.
- **Axe 3 :** cet axe de travail est orienté vers des considérations d'ordre sanitaire, décomposées en deux points :
 - Identifier les aspects toxicologiques liés aux émissions de NO₂ associés aux différentes technologies de couplage de catalyseur d'oxydation et de filtre à particules. Identifier différents « scénarios types » d'exposition (dont des scénarios de type « travailleurs »), rechercher dans la littérature récente des données de concentration d'exposition pour ces scénarios et fournir à minima une évaluation qualitative du risque.

- Etudier les relations entre les immissions¹ de NO_x, NO₂ et particules et des indicateurs sanitaires aigus et/ou chroniques (mortalité, pathologies cardiorespiratoires par exemple) au vu des éléments traités dans l'axe 1. Ce point ne pourra donc être abordé que si l'axe 1 met en évidence l'existence d'un signal particulier relatif aux oxydes d'azote et au ratio NO₂/NO_x.

3 Organisation de l'expertise

L'Afsset a confié au CES « Evaluation des risques liés aux milieux aériens » l'instruction de cette saisine. Ce dernier a mandaté le groupe de travail « Emissions de particules et de dioxyde d'azote des véhicules diesel » pour la réalisation des travaux d'expertise.

Les travaux d'expertise du groupe de travail ont été soumis régulièrement au CES (tant sur les aspects méthodologiques que scientifiques). Le rapport produit par le groupe de travail tient compte des observations et éléments complémentaires transmis par les membres du CES.

Ces travaux d'expertise sont ainsi issus d'un collectif d'experts aux compétences complémentaires. Ils ont été réalisés dans le respect de la norme NF X 50-110 « qualité en expertise » avec pour objectif de respecter les points suivants : compétence, indépendance, transparence, traçabilité.

4 Description de la méthode

4.1 Influence des technologies et des normes sur les émissions d'oxydes d'azote (NO, NO₂ et NO_x) des véhicules routiers (cf Axe 2, p.9)

Afin d'identifier les impacts différenciés des technologies de couplage de catalyseur d'oxydation et de filtre à particules sur les émissions de NO_x et le ratio NO₂/NO_x, ont été réalisés :

- une synthèse des connaissances sur les émissions unitaires de NO et NO₂, pour les véhicules légers (VL) et lourds (PL), selon les différentes normes Euro 0 à Euro 4 (VL) et Euro 0 à Euro V (PL), selon les différents systèmes de post-traitement (sans catalyseur d'oxydation, avec catalyseur d'oxydation et éventuellement filtre à particules catalysé / additivé, ...) et sur différents cycles de conduite (normalisés, « réels », ...). Pour cela, une revue bibliographique a été effectuée au niveau européen, en ne considérant que les émissions mesurées par chimiluminescence en ligne chauffée avec déshumidificateur, méthode jugée la plus appropriée. Près de 300 et 70 configurations d'émission ont ainsi été collectées respectivement pour les véhicules légers et lourds.
- une simulation des émissions de NO₂ du parc de véhicules légers roulant de 2007 à 2014, en croisant différents paramètres (facteurs d'émissions unitaires déterminés précédemment, nombre de kilomètres parcourus pour chaque famille de motorisation et de post-traitement).

Les hypothèses suivantes ont été adoptées pour les émissions des véhicules Euro 5 :

- Euro 5 essence : réduction des émissions de NO et NO₂ entre Euro 4 et Euro 5 dans la proportion prévue pour les NO_x par les limites réglementaires.
- Euro 5 diesel : trois scénarii alternatifs contrastés sur les émissions des véhicules Euro 5 diesel ont été examinés :

¹ Immission : Concentration d'une substance chimique dans l'air ambiant (InVS, 2000)

		<i>Hypothèses sur les émissions unitaires de NO₂ pour les véhicules diesel Euro 5</i>	
		Réduction des émissions de NO ₂ par rapport à Euro 4 dans la proportion prévue pour les NO _x par les limites réglementaires	Augmentation du NO ₂ émis de 10% par rapport à Euro 4
Hypothèses sur la répartition dans le parc : FAP catalysé / FAP additif	50/50	Scénario « favorable »	Scénario « modéré »
	80/20		Scénario « défavorable »

4.2 Concentrations dans l'air ambiant des oxydes d'azote (NO, NO₂, NO_x) liés au trafic routier (cf Axe 1, p.9)

Les données de pollution de l'air ambiant par les oxydes d'azote, en France et en Europe, ont été analysées afin de déterminer si l'évolution du rapport NO₂/NO_x à l'échappement se répercutait sur les niveaux d'oxydes d'azote et plus particulièrement de dioxyde d'azote dans l'environnement. Les données utilisées provenaient, pour la majorité, des dispositifs réglementaires de surveillance de la qualité de l'air qui fonctionnent en routine au sein d'agglomérations européennes.

Les objectifs étaient de :

- caractériser l'évolution des concentrations de NO₂, NO et NO_x à la fois en situation de proximité au trafic automobile et en situation urbaine dite « de fond » ;
- identifier un éventuel « signal » sur ces concentrations, et en discuter les déterminants plausibles ;
- estimer la contribution au NO₂ ambiant des émissions primaires de NO₂ issues du trafic routier.

Un intérêt particulier a également été porté aux niveaux de NO₂ rencontrés dans l'habitacle de véhicules légers insérés dans le trafic. Ce micro-environnement représente en effet un lieu d'exposition qui peut s'avérer non négligeable au regard du temps que la population générale ou professionnelle peut y passer. Deux études françaises récentes mesurant le NO₂ dans l'habitacle de véhicules insérés dans le trafic ont été utilisées.

4.3 Aspects sanitaires liés au NO₂, notamment associé aux différentes technologies de post traitement des émissions diesel (cf Axe 3, p.9)

Une synthèse des effets sanitaires du NO₂ a été réalisée en s'appuyant sur une revue des études expérimentales (animal, tests in vitro), des études d'exposition humaine contrôlée et des études épidémiologiques publiée par l'OMS². Ces données ont été complétées par celles publiées plus récemment dans la littérature.

Les effets sanitaires du NO₂ dans les émissions diesel ont également été étudiés. Il n'a pas été trouvé de publication relative à l'impact des dispositifs de post-traitement sur la toxicité des émissions diesel dans leur globalité (phases gazeuse et particulaire) incluant des mesures de NO₂. Les seuls résultats d'études expérimentales disponibles proviennent des travaux de l'équipe Inserm/Certam/Ineris réalisés dans le cadre d'un programme de recherche Primequal/Predit³ et du programme MAAPHRI⁴ dont les données ont fait l'objet d'une réanalyse complète.

² « Air Quality Guidelines, Global Update 2005 » (OMS, 2006, p.333-394)

³ Rapport mis en ligne sur le site de Primequal/Predit (<http://www.primequal.fr/files/doc/899185bb1ea1e50e.pdf>)

⁴ Morin J-P, et al. Prevalidation of in vitro continuous flow exposure systems as alternatives to in vivo inhalation safety evaluation experimentations: Outcome from MAAPHRI-PCRD5 research program. *Exp Toxicol Pathol* (2008), doi:10.1016/j.etp.2008.01.007

4.4 Mise en perspective de niveaux d'exposition au NO₂ (actuels et prospectifs) au regard de différentes valeurs de référence (cf Axe 3, p.9)

La démarche retenue a consisté à :

- identifier et sélectionner les valeurs toxicologiques de référence (VTR), les valeurs guides de qualité de l'air (AQG⁵), et les valeurs limites d'exposition professionnelle (VLEP) qui pouvaient être mises en perspectives avec des niveaux d'exposition au NO₂ ;
- identifier les principaux déterminants de l'exposition : milieux pouvant être sensiblement impactés par une modification des technologies de véhicules du parc roulant, populations principalement exposées, durées et fréquences d'exposition ;
- estimer les niveaux d'exposition en fonction des émissions de NO₂ du parc automobile entre 2007 et 2014 ;
- mettre en perspective les niveaux d'exposition estimés avec les valeurs de référence retenues pour la population générale d'une part, et pour la population professionnelle d'autre part.

5 Résultats et conclusions de l'expertise collective

5.1 Influence des technologies et des normes sur les émissions d'oxydes d'azote (NO, NO₂ et NO_x) des véhicules routiers (cf Axe 2, p.9)

A - Emissions unitaires d'oxydes d'azote (NO_x et NO₂) des véhicules légers diesel :

- Les véhicules Euro 1 présentent des émissions de NO_x inférieures en moyenne à celles des véhicules Euro 2. En effet, seule la somme HC+NO_x est réglementée pour Euro 1 et Euro 2. L'utilisation d'un catalyseur d'oxydation sur Euro 2, afin notamment d'atteindre les limites portant sur les émissions de CO, augmente fortement les émissions de NO₂. Ce catalyseur réduit également les HC, laissant ainsi la possibilité d'une augmentation des émissions de NO_x sans dépassement de la limite réglementaire portant sur la somme HC+NO_x.
- Par contre, le passage d'Euro 2 à Euro 3 se traduit bien par une baisse des émissions de NO_x sur cycles réels d'un facteur 2 à 3, sans réduction systématique des émissions de NO₂.
- La filtration proprement dite n'est pas génératrice d'une surémission de NO₂. Par contre, les technologies associant un renforcement de la catalyse d'oxydation au FAP pour gérer sa régénération entraînent une augmentation des émissions de NO₂.
- La norme Euro 4 qui impose sur le cycle d'homologation une réduction de moitié des émissions de NO_x, ne présente pas d'évolution majeure sur des cycles réels par rapport à Euro 3. Les différentes configurations présentant un renforcement de la catalyse d'oxydation (notamment pour gérer la régénération du FAP), qu'il soit en amont ou sur le FAP, affichent les plus fortes émissions de NO₂.
- A noter que pour les véhicules Euro 3, les émissions de NO, NO₂ et NO_x obtenues avec FAP additivé présentent relativement peu d'écart avec la version sans FAP, le FAP additivé ne nécessitant pas de renforcement de la catalyse d'oxydation pour sa régénération.

⁵ AQG : Air quality guideline, valeur guide de qualité de l'air

B – Emissions unitaires d'oxydes d'azote (NO_x et NO₂) des véhicules lourds diesel :

Bien que les données disponibles soient moins nombreuses pour ce type de véhicules, les points suivants ont pu être identifiés :

- Le renforcement des premières générations de normes Euro ne s'est pas toujours traduit par des réductions des émissions de NO_x en conditions réelles de circulation (ce qui a également été observé sur les véhicules légers) ;
- La présence de catalyseur, avec ou sans FAP, conduit systématiquement à une augmentation des émissions de NO₂ ;
- Les émissions de NO_x et de NO₂ sont fortement conditionnées par la combinaison d'un grand nombre de paramètres parmi lesquels figurent le point de fonctionnement du moteur (régime et charge), la recirculation des gaz d'échappement et les technologies de post-traitement.

C - Emissions globales de NO₂ des véhicules légers :

Les travaux montrent que le ratio NO₂/NO_x à l'émission pour le parc de véhicules diesel légers évolue à la hausse depuis 1996, date à laquelle les catalyseurs d'oxydation ont été rendus obligatoires sur les véhicules neufs par la norme Euro 2, et que ceci va perdurer.

Toutefois, si le taux de pénétration des FAP additivés parmi l'ensemble des véhicules équipés de FAP dépassait 30% environ, les émissions globales de NO₂ dues aux véhicules légers devraient se réduire à minima jusqu'en 2014, plus ou moins rapidement selon les scénarii « favorable » et « modéré ».

Au contraire, si ce taux était inférieur à 30% environ, on observerait à terme une augmentation du NO₂ émis par les véhicules légers.

Depuis le début des années 2000, les émissions de NO₂ du parc sont principalement attribuables aux véhicules diesel catalysés d'Euro 2 à 4 (voire 5 avec les scénarii « modéré » et « défavorable » présentant les plus fortes émissions de NO₂, cf p.11).

A l'heure actuelle, du fait de leur faible pénétration dans le parc, les véhicules équipés de FAP associés à un catalyseur d'oxydation ne contribuent que très peu aux émissions totales de NO₂. Cependant, cette contribution devrait augmenter à l'avenir.

5.2 Concentrations dans l'air ambiant des oxydes d'azote (NO, NO₂, NO_x) liés au trafic routier (cf Axe 1, p.9)

Une tendance à la baisse des niveaux d'oxydes d'azote (NO_x et NO₂) est observée au niveau des sites de surveillance dits de « fond » urbain. Les situations restent par contre variables pour les concentrations relevées en proximité du trafic automobile que ce soit en France ou au niveau d'autres pays européens. On observe ainsi au niveau de ces sites, des tendances à la stagnation ou à la hausse des niveaux de NO₂ mesurés, et ce depuis le milieu des années 1990.

Par ailleurs, la valeur limite annuelle⁶ de 40 µg/m³ fixée pour le dioxyde d'azote est dépassée sur nombre de ces sites.

⁶ Directive 2008/50/CE du Parlement européen et du Conseil du 21 mai 2008 concernant la qualité de l'air ambiant et un air pur pour l'Europe

Ces tendances observées en proximité du trafic pourraient être expliquées par deux facteurs :

- les processus photochimiques liés entre autres à l'évolution à la hausse des niveaux d'ozone qui pourraient jouer un rôle en réagissant avec le NO primaire émis pour former du NO₂,
- l'évolution à la hausse des émissions primaires de NO₂ en lien avec la progression de la part des véhicules diesel et leurs évolutions technologiques au sein du parc automobile.

Il n'a cependant pas été possible dans le cadre des travaux du groupe de travail d'affecter précisément la part attribuable à chacun de ces facteurs.

Par ailleurs, les mesures réalisées dans le flux de circulation et notamment à l'intérieur de l'habitacle de véhicules montrent que les niveaux de NO₂ relevés sont largement supérieurs à ceux que l'on peut observer au niveau des stations de surveillance de proximité au trafic. L'un des paramètres majeurs influençant les niveaux de NO₂ dans l'habitacle est constitué par les émissions des véhicules avoisinant le véhicule considéré, en particulier celui le précédant immédiatement. Les concentrations dans l'habitacle du véhicule augmentent nettement lors des passages en tunnel. Il ne peut cependant être exclu que d'autres paramètres (typologie de l'axe routier emprunté, état de congestion du trafic, topographie des lieux, etc.) influencent également les concentrations à l'intérieur de l'habitacle.

5.3 Aspects sanitaires liés au NO₂, notamment associé aux différentes technologies de post traitement des émissions diesel (cf Axe 3, p.9)

5.3.1 Synthèse des effets sanitaires du NO₂

Les données toxicologiques montrent que le NO₂ induit des effets toxiques sur le système respiratoire. Ces effets sont décrits dans des études expérimentales à la suite d'expositions à des concentrations en NO₂ supérieures aux valeurs guides. Aucune étude publiée apportant des éléments nouveaux sur ce point n'a été relevée par le groupe de travail depuis la publication de la synthèse de l'OMS⁷.

Dans le cadre des études épidémiologiques la caractérisation des niveaux d'exposition à la pollution atmosphérique se réduit en fait quasiment toujours à l'évaluation de l'exposition à quelques polluants « indicateurs », qui ne représentent donc qu'une infime partie de l'ensemble des composés constituant la pollution atmosphérique. Il en découle que l'observation, dans le cadre d'une étude épidémiologique, de liens entre les niveaux d'un indicateur de pollution et une variable sanitaire n'est pas nécessairement la conséquence de l'existence d'effets propres du polluant considéré sur la santé, mais peut refléter les effets sanitaires d'un ou plusieurs polluants parmi l'ensemble de ceux émis ou formés avec ce polluant indicateur. Ainsi, les études épidémiologiques relatives aux expositions au NO₂ sont limitées par leur incapacité à séparer les effets du NO₂ de ceux des autres polluants émis ou formés avec lui, bien que de nombreux travaux méthodologiques soient en cours à ce sujet. En particulier, le NO₂ a déjà été utilisé comme marqueur de la pollution émise par les combustions, notamment celle émise par la circulation routière.

Les apports de l'approche épidémiologique dans le cadre de la question posée ici semblent donc relativement limités, tant pour ce qui concerne la connaissance des effets sanitaires du NO₂ émis par les véhicules diesel proprement dits, que pour la réalisation d'une évaluation des impacts sanitaires associés à l'introduction dans le parc de véhicules de nouvelles technologies de post-traitement.

⁷ « Air Quality Guidelines, Global Update 2005 » (OMS, 2006, p.333-394)

5.3.2 Effets sanitaires du NO₂ contenu dans les émissions diesel

Le potentiel oxydant mesuré en conditions abiotiques est fortement corrélé à la teneur en NO₂ de l'émission.

Les impacts d'expositions chez le rat (sain et insuffisant cardiaque) à des émissions diluées de moteurs diesel :

- traitées ou non par catalyse d'oxydation⁸,
- associée ou non à un filtre à particules, et
- enrichies (7200 µg/m³) ou non en NO₂,

sur les fonctions cardiaques, rénales et reproductives, sur le stress oxydant pulmonaire et systémique, et sur l'inflammation systémique ont été étudiés.

Les résultats présentés ici proviennent d'une réanalyse des travaux de l'équipe Inserm/Certam/Ineris.

Ces expositions correspondent à des niveaux élevés par rapport à celles habituellement rencontrées en milieu ambiant.

Au final :

- D'une part, concernant les émissions de moteurs diesels traitées par catalyse d'oxydation (non filtrées), les résultats obtenus suggèrent une augmentation de l'inflammation systémique, un stress oxydant marqué au niveau hépatique et un effet sur la fonction cardiaque (bradycardie et bradyarythmie) qui semblent plus importants que pour les émissions non catalysées pour ces deux derniers effets. La teneur en NO₂ de ces émissions constitue un traceur de leur traitement par catalyse d'oxydation et de leur potentiel oxydant ;
- D'autre part, concernant les émissions de moteurs diesels traitées par catalyse d'oxydation associée à un filtre à particules, les résultats obtenus suggèrent aussi des effets plus marqués que pour les émissions non catalysées : modulation de l'activité de quelques enzymes impliquées dans la défense anti-oxydante, inflammation systémique. L'existence d'effets sur l'inflammation systémique, après filtration des échappements, suggère un rôle de la phase gazeuse dans ces effets.

Par ailleurs, les effets de l'exposition de tranches de poumons de rat à des émissions de moteur diesel sur le stress oxydant, l'apoptose⁹ et l'inflammation ont été étudiés. La comparaison des résultats obtenus avec et sans catalyseur d'oxydation montre des effets toxiques plus importants avec catalyseur d'oxydation confortant en cela les résultats observés précédemment in vivo.

En résumé, les émissions de moteurs diesels traitées par catalyse d'oxydation, qu'elles soient ou non filtrées, semblent induire chez le rat des effets biologiques plus marqués que les émissions non catalysées. La teneur en NO₂ de ces émissions constitue un traceur de leur traitement par catalyse d'oxydation et de leur potentiel oxydant. Cependant, tant les données épidémiologiques que les données toxicologiques ne permettent pas d'exclure le rôle d'autres espèces pro oxydantes émises conjointement.

⁸ Catalyseur à forte charge en Platine

⁹ Mort cellulaire programmée

5.4 Mise en perspective de niveaux d'exposition au NO₂ (actuels et prospectifs) au regard de différentes valeurs de référence (cf Axe 3, p.9)

5.4.1 Valeurs de référence retenues

Les valeurs de référence sanitaires retenues par le groupe de travail, sont :

- pour la population générale, la valeur guide OMS de 200 µg/m³ sur une heure ;
- pour la population professionnelle, une valeur de 110 µg/m³ sur 8 heures. Cette valeur est obtenue par l'ajustement de la valeur guide OMS de 200 µg/m³ sur une heure pour une durée d'exposition de 8 heures¹⁰.

A titre indicatif pour la population professionnelle, les niveaux d'exposition sont également comparés aux valeurs de gestion suivantes :

- VLEP du SCOEL¹¹ de 0,2 ppm (400 µg/m³) sur 8 heures (recommandation en date de 1997, appliquée aux Pays-Bas depuis le 1er janvier 2007) ;
- VLEP du SCOEL de 0,5 ppm (1000 µg/m³) sur 15 minutes (recommandation en date de 1997, appliquée aux Pays-Bas depuis le 1er janvier 2007).

5.4.2 Milieux d'exposition retenus

Les milieux aériens les plus susceptibles d'être impactés par une modification des émissions du trafic sont ceux à proximité immédiate de la source de pollution (air de l'habitacle de véhicules et à proximité immédiate de véhicules). Plus on s'éloigne de la source de pollution, plus l'impact des technologies de post-traitement sur les concentrations de NO₂ devient difficile à appréhender, notamment du fait :

- des phénomènes complexes de la chimie atmosphérique ;
- des phénomènes aérodynamiques.

De plus, compte tenu de l'importance des niveaux observés à l'intérieur des habitacles de véhicules et au cœur même du trafic, les travaux se sont concentrés sur ces milieux. La disponibilité des données de mesures a conduit à restreindre l'analyse aux habitacles de véhicules légers.

Au final, trois scénarios ont été retenus afin d'estimer les niveaux moyens de NO₂ dans l'habitacle d'un véhicule léger en fonction des émissions globales de NO₂ du parc automobile entre 2007 et 2014 :

- **un scénario « minorant » des niveaux de concentration** tenant compte du 25^{ème} percentile des concentrations instantanées mesurées dans l'habitacle de véhicules en 2007¹² et du scénario « favorable » relatif aux évolutions entre 2007 et 2014 des émissions de NO₂ dans le parc de véhicules légers (cf Tableau p.11) ;
- **un scénario « moyen » des niveaux de concentration** tenant compte de la moyenne de ces concentrations et du scénario « modéré » d'évolution des émissions ;
- **un scénario « maximalisant » des niveaux de concentration** tenant compte du 95^{ème} percentile de ces concentrations et du scénario « défavorable » d'évolution des émissions.

Cette approche a été déclinée pour les situations « hors tunnel » et en « tunnel ».

¹⁰ Cet ajustement a été effectué en utilisant une relation générale concentration-temps-réponse dont est issue la loi de Haber.

¹¹ Scientific Committee on Occupational Exposure Limits (ou comité scientifique en matière de limites d'exposition professionnelle à des agents chimiques), institué par la décision 95/320/CE de la Commission européenne

¹² Données issues de mesures réalisées en 2007 et qui ont fait l'objet d'une publication (Morin J.P. et al. (2009). Evaluation de l'exposition aux polluants atmosphériques des conducteurs de véhicules automobiles par la mise en œuvre de mesures dynamiques dans l'habitacle du véhicule. *Archives des Maladies Professionnelles et de l'Environnement* ; 70 : 184-192)

5.4.3 Estimation prospective des niveaux d'exposition dans l'habitacle d'un véhicule léger

▪ Situation « hors-tunnel »

- Le scénario « minorant » conduit à des concentrations estimées dans l'habitacle de l'ordre de 100 à 150 µg/m³ en 2014.
- Le scénario « moyen » conduit à des concentrations de l'ordre de 220 à 270 µg/m³ en 2014.
- Le scénario « maximalisant » conduit à des concentrations de l'ordre de 530 à 550 µg/m³ en 2014.

A titre comparatif, on notera qu'au cours des parcours hors tunnel réalisées en 2007 par l'équipe Inserm/Certam/Airnormand, la valeur de 400 µg/m³ est dépassée pendant 15 à 20% du temps, et la valeur de 200 µg/m³ est dépassée pendant 50 à 75% du temps.

▪ Situation en « tunnel »

Les concentrations de NO₂ dans l'habitacle lors de parcours en tunnel sont extrêmement variables, du fait des particularités propres à chaque tunnel. Au vu des résultats obtenus au cours de mesures réalisées dans quatre tunnels, les niveaux de NO₂ dans l'habitacle pendant les parcours en tunnel pourraient atteindre des niveaux élevés, de l'ordre de 400 µg/m³ (moyenne des niveaux mesurés pendant les parcours en tunnel combinée au scénario d'évolution « modéré » des émissions entre 2007 et 2014), pouvant dans le scénario maximalisant dépasser 1000 µg/m³.

A titre comparatif, on notera qu'au cours des parcours en tunnel lors des mesures réalisées en 2007 par l'équipe Inserm/Certam/Airnormand, la valeur de 400 µg/m³ est dépassée environ 50% du temps, et la valeur de 200 µg/m³ est dépassée pendant 70 à 85% du temps.

5.4.4 Population professionnelle

▪ Situation « hors-tunnel »

L'identification des principaux déterminants de l'exposition a abouti à cibler les travailleurs dont l'activité implique des déplacements fréquents et de longue durée dans un véhicule léger en agglomération.

Pour cette population de travailleurs, il a été retenu en première approche une durée d'exposition moyenne de 8 heures par jour. En seconde approche, une durée d'exposition moindre (4 heures par jour en moyenne) a été retenue.

Pour un travailleur passant donc 8 heures par jour dans un véhicule inséré dans le trafic en agglomération urbaine (hypothèse majorante) :

- La valeur de 110 µg/m³ sur 8 heures (obtenue par l'ajustement de la valeur guide OMS de 200 µg/m³ sur une heure pour une durée d'exposition de 8 heures selon la démarche retenue par le groupe de travail) est dépassée quel que soit le scénario considéré. La valeur guide de l'OMS dont dérive cette valeur ajustée est fondée sur l'apparition de manifestations biologiques chez les asthmatiques, dont la présence au sein des travailleurs ne peut être exclue¹³. Notons également qu'une exposition professionnelle réduite de moitié en durée (4h), conduirait pour les scénarios « moyen » et « maximalisant » à un dépassement de la valeur de 135 µg/m³ (obtenue selon la même méthode d'ajustement pour une durée de 4h).

¹³ Recommendation of the Scientific Committee for Occupational Exposure Limits for nitrogen dioxide, SCOEL/SUM/53D, juin 1997

- La VLEP préconisée par le SCOEL sur 8h (400 µg/m³) est dépassée dans le scénario « maximalisant ».

- **Situation en « tunnel »**

Les niveaux dans l'habitacle peuvent dépasser la valeur de 1000 µg/m³, sur des durées, qui dans certains cas pourraient vraisemblablement atteindre ou dépasser le quart d'heure.

Pour les populations professionnelles, le dépassement de la VLEP préconisée par le SCOEL sur 15 minutes (1000 µg/m³) ne peut donc être exclu.

5.4.5 Population générale

- **Situation « hors-tunnel »**

L'identification des principaux déterminants de l'exposition a abouti à cibler les conducteurs et passagers utilisant une voiture dans le cadre de leurs déplacements en agglomération.

Une durée d'exposition moyenne de 1 heure par jour pour la population générale demeurant dans les aires urbaines a été retenue sur la base des enquêtes ménages/déplacements du Certu¹⁴ et de données Insee¹⁵ relatives aux trajets domicile-travail.

Il apparaît que pour la population générale demeurant dans une agglomération métropolitaine, le temps passé dans l'habitacle d'un véhicule léger inséré dans le trafic est en moyenne d'une heure par jour. Ainsi, le scénario « moyen » conduit pour cette heure de trajet à une exposition dans l'habitacle (220 à 270 µg/m³) supérieure à la valeur guide de l'OMS (200 µg/m³ sur 1 heure). Seul le scénario « minorant » conduit à des valeurs inférieures à la valeur guide de l'OMS.

- **Situation en « tunnel »**

Les niveaux dans l'habitacle peuvent dépasser la valeur de 1000 µg/m³, sur des durées, qui dans certains cas pourraient vraisemblablement atteindre ou dépasser le quart d'heure.

5.4.6 Conclusion

Dans la majeure partie des situations envisagées, les niveaux d'exposition au NO₂ projetés dépassent les valeurs de référence retenues. Les limites de cette analyse ne semblent pas à même de remettre en cause les conclusions qui peuvent en être tirées.

Actuellement, les niveaux de NO₂ auxquels sont exposés les usagers de véhicules légers en agglomérations, tant en population générale qu'en population professionnelle, peuvent induire des effets toxiques sur le système respiratoire, en particulier pour les populations sensibles (asthmatiques notamment). L'évolution de cette situation jusqu'en 2014 (entrée en vigueur de la norme Euro 6) dépendra de la répartition au sein du parc des technologies de dépollution parmi celles connues à ce jour et des mesures de gestion qui conditionnent les émissions du parc.

Le Comité d'Experts Spécialisés « Evaluation des risques liés aux milieux aériens » adopte le rapport d'expertise collective lors de sa séance du 5 mai 2009 et fait part de cette adoption à la direction générale de l'Afsset.

¹⁴ Centre d'études sur les réseaux, les transports, l'urbanisme et les constructions publiques

¹⁵ Institut national de la statistique et des études économiques

6 Recommandations de l'expertise collective

6.1 Concernant l'amélioration des connaissances

Les travaux du groupe ont mis en exergue l'intérêt de mieux documenter les émissions de NO₂ des véhicules ; en particulier pour les véhicules déjà en circulation et notamment les véhicules lourds, afin de mieux renseigner l'influence des technologies sur les émissions, mesurées sur cycle et en conditions réelles.

Le groupe recommande l'amélioration des connaissances concernant les niveaux des polluants émis par le trafic automobile à sa proximité immédiate, et leurs déterminants (par exemple, influence de la position de l'échappement sur les niveaux mesurés dans le sillage), compte tenu de l'ampleur des populations concernées, et de l'identification dans les présents travaux de l'intérêt de ces milieux.

Le groupe a constaté au cours de ses travaux la rareté des données disponibles concernant la toxicologie des émissions des véhicules diesels équipés de dispositifs de post-traitement. Il recommande le renforcement des connaissances dans ce domaine. En particulier, il est préconisé de renforcer les travaux sur la toxicologie des émissions considérées dans leur globalité (phases gazeuse et particulaire).

6.2 Prise en compte des aspects sanitaires associés aux différentes technologies de post-traitement dans les normes portant sur les émissions des moteurs diesel

Un bénéfice sanitaire peut être attendu de la mise en œuvre de dispositifs de dépollution incluant un filtre à particules sur les véhicules diesel, du fait notamment de la forte réduction des émissions de particules dont les effets sanitaires sont reconnus. Cependant, lorsque la mise en œuvre de dispositifs de dépollution incluant un filtre à particules s'accompagne d'une surproduction de NO₂, les résultats des présents travaux montrent que la situation au regard de ce polluant demeurera préoccupante notamment pour les occupants des véhicules légers en agglomérations. D'un point de vue sanitaire, les niveaux de NO₂ auxquels ils sont d'ores et déjà exposés indiquent, au regard des valeurs de référence, la possibilité de survenue d'effets sanitaires. Dans ce contexte, le CES préconise de prendre en compte spécifiquement dans les réglementations futures les émissions de NO₂ en complément des normes relatives aux NO_x totaux à l'émission.

Maisons-Alfort, le 5 mai 2009

Au nom des experts du CES « Evaluation des risques liés aux milieux aériens »,

le président du CES, Christian Elichegaray



Abréviations

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

ACGIH : American conference of governmental industrial hygienists

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

AEGLs : Valeurs guides d'exposition aiguë proposées par l'US-EPA (Acute exposure guideline levels)

AME : Dans le cadre de l'étude OPTINEC 2 (juin 2008), réalisée par le CITEPA et l'INERIS et financée par le MEEDDAT pour évaluer les émissions 2010 et 2020 des polluants visés par la directive NEC, les émissions sont estimées selon 3 scénarios :

- Scénario AME (avec mesures existantes tendanciel)
- Scénario AMS (avec mesures supplémentaires -4^{ème} communication nationale sur le changement climatique)
- Scénario AMC (avec marché de carbone – 12€/t CO₂ en 2010, 20€/t CO₂ en 2020)

AQG : Valeur guide de la qualité de l'air (Air Quality Guideline)

ARNm : acide ribonucléique messenger

ATSDR : Agency for Toxic Substances & Disease Registry

BALB/c : modèle de souris utilisé notamment en toxicologie et physiopathologie

BDQA : Base nationale de Données sur la Qualité de l'Air ambiant

BGIA : Institut allemand pour la protection et la sécurité des travailleurs (Institut für Arbeitsschutz der Deutschen Gesetzlichen Unfallversicherung)

BPCO : broncho-pneumopathie chronique obstructive

BSFC : « Brake Specific Fuel consumption », consommation spécifique en g/kWh

CAP : Concentrated ambient air particles

CAT : catalase

Catadox : Catalyseur d'oxydation

CataFAP : Catalyseur d'oxydation associé à un filtre à particules

CD4+ : Les cellules CD4+ (en anglais T-Helper), parfois appelées lymphocytes T₄ ou plus précisément lymphocytes T_h à CD₄ positif, sont un type original différencié des autres lymphocytes T, non phagocytaires, agissant comme des intermédiaires de la réponse immunitaire. Les cellules CD₄+ régulent ou « aident » à la réalisation d'autres fonctions lymphocytaires, notamment en sécrétant une cytokine : l'interleukine 2 (IL2) qui est une protéine servant de médiateur chimique entre les lymphocytes B et lymphocytes T, et stimulant leur prolifération.

CD8+ : Les cellules CD8+, parfois appelées lymphocytes T₈ ou plus précisément lymphocytes T_h à CD₈ positif, sont des lymphocytes cytotoxiques (lyse des cellules infectées, tumorales, ...) qui détruisent les cellules cibles recouvertes d'anticorps par l'intermédiaire des récepteurs FC (FcR).

CERTAM : Centre d'étude et de recherche technologique en aérothermique et moteurs

CES : Comité d'Experts Spécialisés rattaché à l'Afsset

CITEPA : Centre Interprofessionnel Technique d'Etudes de la Pollution Atmosphérique

COPERT 4 : La méthodologie COPERT 4 (août 2007) permet d'estimer les émissions des véhicules (à l'échappement, évaporation, usures des freins). La méthodologie fournit des équations qui permettent d'estimer des facteurs d'émissions pour chaque polluant et des facteurs de consommation. Ces équations sont dépendantes de plusieurs paramètres :

- La vitesse de circulation (égale à la distance divisée par la durée du trajet)
- L'année de mise en circulation du véhicule
- Le pourcentage du trajet effectué avec un moteur froid
- La motorisation du véhicule (Essence, Diesel, GPL)

(<http://reports.eea.europa.eu/EMEPCORINAIR5/en/page016.html>)

COV : Composés organiques volatils

CRT : « Continuous Regenerating Trap », système de régénération continue du filtre à particules, composé d'un catalyseur d'oxydation et d'un filtre à particules

CVF : capacité vitale forcée. Il constitue un test standard de la fonction respiratoire.

DPNR : système couplant un filtre à particules et un piège à NO_x (Diesel Particulate-NO_x Reduction System)

ECE (ou UDC) : Urban Driving Cycle

EEA : Agence Européenne pour l'Environnement (« European Environment Agency »)

EGR : le système « Exhaust Gas Recirculation » consiste à rediriger une partie des gaz d'échappement des moteurs à combustion interne dans le collecteur d'admission du moteur.

ELR : European Load Response

EMPA : Laboratoire fédéral suisse pour l'essai des matériaux et institut de recherche pour l'industrie, la construction et les arts et métiers

ESC : European Steady-state Cycle

ETC : European Transcient Cycle

EUDC : Extra Urban Driving Cycle

FAP : Filtre à Particules

FAPad : Filtre à Particules additivé

FAPcat : Filtre à Particules catalysé

FEV₁ : volume maximal expiré en 1 seconde. Il constitue un test standard de la fonction respiratoire.

GPX : glutathion peroxydase

GR : glutathion réductase

GST : glutathion-S-transférase

GT : Groupe de Travail rattaché à l'Afsset

HC : Hydrocarbures

HCCI : Le moteur Homogeneous Charge Compression Ignition est un type de moteur à combustion interne dans lequel le mélange air-carburant est mélangé de la manière la plus homogène possible (comme dans les moteurs à essence) et est comprimé assez fortement pour atteindre le point d'auto-allumage.

IC : Insuffisant cardiaque

IFP : Institut Français du Pétrole

IL : Interleukine, substance sécrétée par certains lymphocytes et les macrophages, elle stimule à son tour d'autres cellules immunocompétentes telles que les lymphocytes B et T.

INERIS : Institut national de l'environnement industriel et des risques

INRETS : Institut National de Recherche sur les Transports et leur Sécurité

INSERM : Institut national de la santé et de la recherche médicale

IRIS : Integrated Risk information System est une base de données, gérée par l'US-EPA, des effets sur la santé humaine pouvant résulter de l'exposition à diverses substances retrouvées dans l'environnement.

LAT : Aristotle University Thessaloniki (Grèce)

LOAEL : Niveau (ou dose) d'exposition le plus bas, dans une expérience, produisant un effet néfaste observé (Lowest Observed Adverse Effect Level).

MAAPHRI : Multidisciplinary approach to airborne pollutant health related issues

MEEDDAT : Ministère de l'écologie, de l'énergie, du développement durable et de l'aménagement du territoire

MMEF : flux maximal à mi-expiration. Il constitue un test standard de la fonction respiratoire.

MnSOD : manganese superoxyde dismutase

MVEG (ou NEDC) : New European Driving Cycle

NAAQO : National ambient air quality objective (Canada)

NEDC (ou MVEG) : New European Driving Cycle

NIOSH : National institute for occupational safety and health

NT : Emissions moteur non traitées par un Filtre à Particules, un catalyseur d'oxydation ou un autre système de traitement des émissions moteur.

OBD : le système « On board Diagnostic » permet de contrôler les paramètres majeurs agissant sur le fonctionnement des systèmes de dépollution et du contrôle moteur et impactant les émissions

OBM : le système « On Board Measurement » permet de mesurer directement les émissions à bord du véhicule

OEHHA : Office of Environmental Health Hazard Assessment

OMS : Organisation mondiale de la santé

OSHA : Occupational safety and health administration

PELs : Valeurs limites d'exposition (Permissible Exposure Limits) établies par l'OSHA pour protéger les travailleurs des effets sanitaires liés à l'exposition à des substances dangereuses. Les PELs sont des valeurs limites réglementaires pour la quantité ou concentration d'une substance dans l'air. Elles peuvent aussi porter sur l'exposition cutanée. Les PELs établies par l'OSHA sont basées sur une exposition pondérée dans le temps de 8 heures.

PEM : Portable Emissions Measuring system

PL : véhicules Poids Lourds

PM : « Particulate matter ». Les particules en suspension (notées PM en anglais) sont d'une manière générale les particules, portées par l'eau ou l'air et que l'on peut recueillir et quantifier par filtration ou par d'autres procédés physiques. Selon la taille des particules (diamètre aérodynamique ou diamètre aérolitique), on distingue en métrologie notamment les PM₁₀, les PM_{2,5} ou les PM₁ selon la taille des particules en micromètre. Par exemple, les PM₁₀ sont des particules en suspension dans l'air, d'un diamètre aérodynamique (ou diamètre aérolitique) inférieur à 10 micromètres.

REL : Reference exposure level

RIVM : Institut néerlandais pour la Santé publique et l'Environnement (Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu)

RPE : résonance paramagnétique électronique

SCOEL : Scientific committee on occupational exposure limits

SCR : système de réduction catalytique sélective (Selective Catalytic Reduction)

SEI : Seuils d'effets irréversibles proposés par l'Inéris

SER : Seuils d'effets réversibles proposés par l'Inéris

SOCS-3 : protéine « Suppressor Of Cytokine Signalling-3 » de suppresseurs de la signalisation de cytokine

SOD : superoxyde dismutase

TLV-STEL : Valeur limite d'exposition développée par l'ACGIH et définie comme une exposition à une TWA (concentration moyenne pondérée dans le temps) sur 15 minutes qui ne peut être dépassée en aucun temps durant la journée de travail, même si la TWA sur 8 heures respecte la valeur limite d'exposition TLV-TWA.

TLV-TWA : Valeur limite d'exposition développée par l'ACGIH et définie comme une concentration moyenne pondérée dans le temps pour une journée de travail de 8 heures et une semaine de travail de 40 heures.

TNF- α : protéine « Tumor necrosis factor alpha » qui possède un large champ d'actions proinflammatoires. Elle constitue un marqueur des réactions inflammatoires.

UDC (ou ECE) : Urban Driving Cycle

US-EPA : U.S. Environment Protection Agency

VP : véhicules particuliers

VL : véhicules légers

VLE : La Valeur Limite d'Exposition (VLE) désigne des concentrations visant à protéger les travailleurs contre des effets aigus ou des effets d'une exposition momentanée estimée préjudiciable à terme (exposition d'une durée au maximum égale à 15 minutes). Ces VLE sont utilisées en France dans le cadre de la protection de la santé et de la sécurité des travailleurs contre les risques liés à une exposition à des agents chimiques sur le lieu de travail.

VLEP : Valeur limite d'exposition professionnelle

VTR : Valeur toxicologique de référence

WTVC : World-wide Transient Vehicle Cycle

Liste des tableaux

Tableau I : Scenarii de projections des émissions NO ₂ attribuables aux véhicules Diesel Euro 5 dans le parc VL.....	40
Tableau II : Evolution des moyennes annuelles d'oxydes d'azote en France (µg/m ³), sur la base d'un échantillon de stations évolutif	56
Tableau III : Trafic moyen journalier annuel observé sur les axes équipés de station de proximité .	66
Tableau IV : Concentrations de NO ₂ (µg/m ³) dans l'habitacle (données INSERM/CERTAM/Airnormand).....	82
Tableau V : 3 études (A, B et C) : différents types d'échappements	89
Tableau VI : Scénarios « hors tunnel » - Concentrations NO ₂ dans l'habitacle de VL (C) estimées en fonction des émissions NO ₂ du parc automobile (E) entre 2007 et 2014	118
Tableau VII : Scénarios « tunnel » - Concentrations NO ₂ dans l'habitacle de VL (C) estimées en fonction des émissions NO ₂ du parc automobile (E) entre 2007 et 2014	119
Tableau VIII : Limites d'émissions des normes Euro pour les Véhicules Particuliers (g/km).....	159
Tableau IX : Limites d'émission des normes Euro pour les Véhicules Utilitaires > 3,5 Tonnes (g/kWh).....	161
Tableau X : Récapitulatif sur les systèmes SCR.....	183
Tableau XI : Récapitulatif sur les pièges à NO _x	183
Tableau XII : Méthodes de mesure des émissions de NO et NO ₂	191
Tableau XIII : Principales caractéristiques des sites « trafic » pour lesquels des traitements de données sont effectués	195
Tableau XIV : Evolution globale des émissions de NO _x liées au transport routier de 1990 à 2005 dans l'EU-15	216

Liste des figures

Figure 1 : Estimation de la répartition des émissions de NO _x par catégorie de véhicules.....	34
Figure 2 : Cycles de conduite Artemis.....	35
Figure 3 : Emissions unitaires moyennes de NO et NO ₂ sur tous cycles, VL	36
Figure 4 : Emissions unitaires moyennes de NO et NO ₂ sur cycles réels (Artemis), VL.....	36
Figure 5 : Pénétration du pot catalytique Diesel (nombre des immatriculations VP Diesel 1990-2005)	38
Figure 6 : Pénétration du pot catalytique Diesel (% d'immatriculations VP Diesel 1990-2005).....	38
Figure 7 : Estimation du nombre de véhicules équipés de FAP dans le parc	39
Figure 8 : Répartition des émissions de NO ₂ , Euro 5 en réduction au prorata norme Euro4/5	41
Figure 9 : Répartition des émissions de NO ₂ , émissions Euro 5 supérieures de 10% à Euro 4.....	41
Figure 10 : Répartition des émissions de NO ₂ , émissions Euro 5 supérieures de 10% à Euro 4 + FAP additivé/catalysé de 80/20.....	42

Figure 11 : Ratio NO ₂ /NO _x , Euro 5 en réduction au prorata norme Euro 4/5, de 1990 à 2015	42
Figure 12 : Emissions de NO, NO ₂ en fonction du point de fonctionnement moteur de véhicules lourds.....	44
Figure 13 : Emissions de NO, NO ₂ en fonction de la configuration des autobus.....	45
Figure 14 : Mesures en continu d'émission NO ₂ , NO _x en fonction du FAP (catalysé, additivé), à chaud et à froid.....	45
Figure 15 : Mesures en continu d'émission NO _x en fonction de la distance sur un parcours réel, pour des technologies EGR et SCR.....	46
Figure 16 : Emissions cumulées NO ₂ NO _x sur un parcours réel pour des technologies EGR (bleu) et SCR (rouge)	47
Figure 17 : Emissions de NO ₂ en fonction du régime et de la charge moteur, pour des technologies EGR et SCR	47
Figure 18 : Emissions de NO _x en fonction du régime et de la charge moteur, pour des technologies EGR et SCR	48
Figure 19 : Localisation des associations agréées pour la surveillance de la qualité de l'air	52
Figure 20 : Localisation des sites de mesure des oxydes d'azote en France en 2006.....	54
Figure 21 : Evolution du nombre de sites utilisés pour l'analyse	54
Figure 22 : Evolution des moyennes annuelles d'oxydes d'azote (NO, NO ₂ , NO _x) en site trafic en France (ppb), sur la base d'un échantillon de stations évolutif.....	56
Figure 23 : Evolution des moyennes annuelles d'oxydes d'azote en site urbain de fond en France (ppb), sur la base d'un échantillon de stations évolutif.....	57
Figure 24 : Evolution du ratio NO ₂ /NO _x calculé à partir des moyennes annuelles en France, sur la base d'un échantillon de stations évolutif.....	58
Figure 25 : Rapport NO ₂ /NO _x des stations « trafic » et « périurbaines » en région PACA.....	59
Figure 26 : Rapport NO ₂ /NO _x des stations « trafic » et « périurbaines » en région Ile-de-France ...	59
Figure 27 : Rapport NO ₂ /NO _x des stations « trafic » et « périurbaines » en région Rhône-Alpes ...	60
Figure 28 : Emissions de NO _x de la région Ile-de-France (161 kilotonnes) en 2000.....	62
Figure 29 : Contribution en % des différents secteurs d'activité aux émissions de polluants pour Paris (estimations faites pour l'année 2000)	62
Figure 30 : Concentration en NO et NO ₂ sur un échantillon constant de cinq stations trafic de 1994 à 2006.....	63
Figure 31 : Impact du trafic I_{NO} et I_{NO_2} sur un échantillon constant de cinq stations trafic de 1994 à 2006.....	65
Figure 32 : Impact trafic I_{NO} et I_{NO_2} ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) au niveau de l'ensemble des sites trafic de 1994 à 2006	65
Figure 33 : Evolution au cours de la journée des niveaux d'impact de NO _x I_{NO_x} entre 1998 et 2006 sur 3 stations de proximité au trafic en Ile-de-France.....	67

Figure 34 : Evolution de la concentration moyenne annuelle en ozone dans l'agglomération parisienne (échantillon constant de 3 stations urbaines de fond).....	68
Figure 35 : Impact I_{NO_2} moyen ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) au niveau de 2 stations de proximité au trafic en fonction des classes de concentration journalière moyenne d'ozone ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) en 2004	68
Figure 36 : Impacts I_{NO} et I_{NO_2} moyens en fonction du niveau d'ozone de fond, pour différentes classes d'impact de NO _x (I_{NOx}), sur la période du 1 ^{er} nov. 2004 au 31 mars 2005 (station : Périphérique, porte d'Auteuil)	69
Figure 37 : Impacts I_{NO} et I_{NO_2} moyens en fonction du niveau d'ozone de fond, pour différentes classes d'impact de NO _x (I_{NOx}), sur la période du 1 ^{er} nov. 2004 au 31 mars 2005 (station : Périphérique, porte d'Auteuil)	70
Figure 38 : Profil journalier de l'impact du NO ₂ (station : Périphérique – porte d'Auteuil) et du niveau de fond d'ozone pour 2 classes d'impact de NO _x (100-150 ppb et 250-300 ppb) sur la période du 1 ^{er} nov. 2004 au 31 mars 2005	71
Figure 39 : Niveaux impactés de NO ₂ (I_{NO_2}) en fonction de la quantité d'ozone transformé (fond – proximité) sur la période du 26 août au 12 octobre 2005 à la station de la porte d'Auteuil (exemple de la classe d'impact de NO _x de 150 – 200 ppb).....	72
Figure 40 : Emplacements des prélèvements sur le véhicule.....	77
Figure 41 : Concentrations de NO ₂ relevées le 18 mai 2007 sur des stations fixes du réseau Airparif et dans l'habitacle du véhicule et à l'extérieur immédiat lors d'une boucle de Boulevard Périphérique	78
Figure 42 : Concentration de NO ₂ relevées le 28 juin 2007 sur des stations fixes du réseau Airparif et dans l'habitacle et à l'extérieur immédiat lors d'un passage sur les Champs Elysées.....	78
Figure 43 : (a) Résultats des mesures dans l'habitacle (histogramme plein) et à l'extérieur du véhicule (histogramme hachuré) lors du trajet entre Ermont et Paris 1 e3 juillet 2007 et (b) Concentrations de NO ₂ relevées dans le tunnel de l'A1	79
Figure 44 : Concentration de NO ₂ relevée dans l'habitacle.....	80
Figure 45 : Concentrations de NO ₂ mesurées dans l'habitacle, selon différents types de trajet dans l'agglomération de Rouen.....	83
Figure 46 : Concentrations de NO et NO ₂ mesurés dans l'habitacle, lors du suivi d'un bus Euro III équipé d'un FAP-CRT	83
Figure 47 : Enceinte individuelle d'inhalation pour animal vigile, non contraint	88
Figure 48 : Distribution de taille des particules en amont et aval des cages d'exposition.....	88
Figure 49 : Principaux mécanismes antioxydants impliquant des enzymes antioxydantes.....	90
Figure 50 : Voie des peroxy-nitrites et des radicaux NO ₂	90
Figure 51 : Etude B : Méthodologie d'étude des enzymes antioxydantes	91
Figure 52 : Etude B : Modulation des activités des enzymes antioxydantes	92
Figure 53 : Etude B : Modulation du taux de TNF α sérique	93
Figure 54 : Etude C : Modulation des activités des enzymes antioxydantes	96
Figure 55 : Etude C : Modulation du taux d'isoprostanes plasmatiques	97

Figure 56 : Etude C : Modulation du taux de TNF α sérique	97
Figure 57 : Etude C : Méthodologie d'étude de la fonction cardiaque	98
Figure 58 : Etude C : Modulation des paramètres de fréquence et variabilité du rythme cardiaque.	99
Figure 59 : Etude C : Quantification des épisodes arythmiques par dynamique symbolique	100
Figure 60 : Mesures des radicaux libres O ₂ ^{o-} et ONOO- par résonance paramagnétique électronique.....	101
Figure 61 : Cycles de conduite MVEG, ECE et EUDC.....	160
Figure 62 : Cycle de conduite ESC	162
Figure 63 : Cycle de conduite ELR.....	162
Figure 64 : Cycle de conduite ETC.....	163
Figure 65 : Cycle de conduite WTVC	164
Figure 66 : Efficacité du traitement des émissions polluantes en fonction de leur richesse en oxygène	166
Figure 67 : Schémas d'un moteur à injection directe et indirecte.....	167
Figure 68 : Efficacité d'un catalyseur 3 voies essence (CO, NO _x , CH ₄) en fonction de la température (richesse optimale)	167
Figure 69 : Pénétration du pot catalytique Diesel (nombre des immatriculations VP Diesel 1990-2005)	168
Figure 70 : Pénétration du pot catalytique Diesel (% d'immatriculations VP Diesel 1990-2005)..	168
Figure 71 : Relation entre les émissions moteur de NO _x et de particules.....	170
Figure 72 : Relation entre les émissions moteur de NO _x et la consommation spécifique BSFC.....	171
Figure 73 : Emissions NO _x d'un moteur en fonction du taux d'EGR pour différentes charges.....	173
Figure 74 : Potentialité de dépollution de l'EGR : compromis NO _x / particules.....	173
Figure 75 Efficacité de différents catalyseurs sur la réduction des NO _x en fonction de la température.....	176
Figure 76 : Efficacité d'une catalyse SCR en fonction de la température	177
Figure 77 : Schéma d'un système catalytique avec SCR.....	178
Figure 78 : Banc moteur expérimental FAP + DeNO _x (US-EPA).....	181
Figure 79 : Traitement des phases vapeurs et solubles et des particules solides par l'association Catalyseur d'Oxydation + Filtre à Particules	184
Figure 80 : Influence du filtre <i>Corning</i> sur le spectre granulométrique des particules émises (Moteur VW 1.9 l TDI).....	185
Figure 81 : Température à l'échappement (en amont du filtre) mesurée durant une journée normale d'exploitation d'un bus en région parisienne	186
Figure 82 : Schéma du système de post-traitement CRT (FAP + catalyseur d'oxydation)	187
Figure 83 : Imagerie d'un catalyseur intégré dans le FAP.....	187

Figure 84 : Schéma de régénération d'un FAP avec un catalyseur (à base de cerium) additivé au carburant.....	188
Figure 85 : Schéma de la technologie de FAP PSA évaluée dans le cadre d'une étude PSA-ADEME	189
Figure 86 : Exemple de spectre granulométrique des particules à l'émission (point stabilisé à 70 km/h).....	190
Figure 87 : Quantité de Cérium (additif) utilisée par un FAP PSA et analysée sur ce FAP (80000km).....	190
Figure 88 : Positionnement du point de mesure des émissions de NO, NO ₂ par chimiluminescence en ligne chauffée avec déshumidificateur	191
Figure 89 : Schéma du système de mesure des NO, NO ₂ , et comparaison des émissions mesurées à chaud/froid	192
Figure 90 : Comparaison des mesures d'émission de NO ₂ /NO _x par prélèvement en sac et analyse instantanée en ligne.....	192
Figure 91 : Evolution temporelle des niveaux de NO et NO _x mesurés dans les sacs (vitesse stabilisée)	193
Figure 92 : Comparaison de mesures de NO ₂ /NO _x entre un prélèvement dilué et brut (vitesse stabilisée)	193
Figure 93 : Evolution des niveaux de NO et de NO ₂ (graphiques de gauche) et des niveaux impactés de NO et de NO ₂ (graphiques de droite) sur 8 sites de proximité au trafic de 8 agglomérations françaises.....	197
Figure 94 : Clichés de l'environnement de la station trafic Gambetta (agglomération de Bordeaux)	199
Figure 95 : Niveaux impactés de NO I_{NO} et de NO ₂ I_{NO2} en fonction du niveau d'ozone de fond sur la période du 1 ^{er} nov. 2005 au 31 mars 2006 pour différentes classes d'impact de NO _x I_{NOx} (station : Site de la Mulatière, Lyon)	200
Figure 96 : Niveaux impactés de NO I_{NO} et de NO ₂ I_{NO2} en fonction du niveau d'ozone de fond sur la période du 1 ^{er} nov. 2005 au 31 mars 2006 pour différentes classes d'impact de NO _x I_{NOx} (station : Site Le Rondeau, Grenoble).....	201
Figure 97 : Profil journalier de l'impact du NO ₂ I_{NO2} sur la période du 1 ^{er} nov. 2005 au 31 mars 2006 pour différentes classes d'impact de NO _x (station : Site de la Mulatière, Lyon).....	202
Figure 98 : Profil journalier de l'impact du NO ₂ I_{NO2} sur la période du 1 ^{er} nov. 2005 au 31 mars 2006 pour différentes classes d'impact de NO _x (station : Site Le Rondeau, Grenoble)	203
Figure 99 : Evolution globale des concentrations de NO ₂ en Europe de 1996 à 2004 (toutes stations de mesure confondues).....	213
Figure 100 : Evolution globale des concentrations de NO ₂ (lignes) et NO _x (marques) en Europe de 1998 à 2004 (450 stations urbaines, transport et rurales, dans 8 pays).....	214
Figure 101 : Tendence globale des émissions de NO _x en Europe de 1996 à 2004.....	214
Figure 102 : Evolution globale des valeurs moyenne et maximale de concentrations en NO ₂ (moyennes annuelles) pour les stations trafic et urbaines, en Europe de 1999 à 2001	215

Figure 103: Emissions NO _x selon les cinq principaux secteurs d'activité, en EU-15	215
Figure 104 : Evolution des concentrations de NO et NO ₂ sur différents types de sites de la région Baden-Württemberg.....	217
Figure 105 : Evolution des concentrations de NO ₂ sur des sites des régions Baden-Wurttemberg et Hessen	218
Figure 106 : Evolution globale des concentrations de NO ₂ et NO sur un ensemble de sites trafic fortement urbanisés (länder de Rhénanie-du-Nord-Westphalie)	218
Figure 107 : Evolution des concentrations de NO ₂ et NO sur le site trafic Overschie de Rotterdam	219
Figure 108 : Evolution des concentrations de NO ₂ et NO _x sur trois sites trafic du Royaume-Uni (Glasgow, Oxford, Bath).....	219
Figure 109 : Allemagne : Dépassements en 2005 de la valeur limite en moyenne annuelle de 40 µg/m ³ , à ne pas dépasser au 1 ^{er} janvier 2010	220
Figure 110 : Allemagne : Dépassements en 2006 de la valeur limite horaire de 200 µg/m ³ , à ne pas dépasser plus de 18 fois au 1 ^{er} janvier 2010	220
Figure 111 : Allemagne : Evolution des concentrations de NO, NO ₂ et O ₃ en proximité de l'A4, entre 1987 et 2003.....	221
Figure 112 : Tendance du ratio NO ₂ /NO _x à l'émission sur Londres	223
Figure 113 : Tendance du ratio NO ₂ /NO _x à l'émission (moyennes hebdomadaires) sur Marylebone Road	223
Figure 114 : Mise en évidence d'une modification soudaine de l'évolution des concentrations de NO ₂ (technique Cumulative Sum) sur Marylebone Road.....	224

1 Contexte, objet et modalités de traitement de la saisine

1.1 Introduction

L'ordonnance n°2005-1087 du 1^{er} septembre 2005 qui modifie les dispositions de la loi du 9 mai 2001 créant l'Agence française de sécurité sanitaire environnementale en étendant le champ de compétence de l'agence au domaine du travail, dispose que « *L'agence a pour mission de contribuer à assurer la sécurité sanitaire dans les domaines de l'environnement et du travail et d'évaluer les risques sanitaires qu'ils peuvent comporter. Elle fournit aux autorités compétentes toutes les informations sur ces risques ainsi que l'expertise et l'appui technique nécessaire à l'élaboration des dispositions législatives et réglementaires et à la mise en œuvre des mesures de gestion des risques.* » (Art. L.1336-1 du Code de la santé publique).

Le décret n°2006-676 du 8 juin 2006 fixant les dispositions réglementaires relatives à l'Agence française de sécurité sanitaire de l'environnement et du travail, dispose que, pour l'organisation de l'expertise, « *l'agence est assistée par des comités d'experts spécialisés dont les compétences et la durée du mandat sont fixées par arrêté des ministres chargés de la tutelle de l'agence.* » (Art. R.1336-20 du Code de la santé publique).

1.2 La saisine

Dans ce cadre, le ministère de la santé et des solidarités, le ministère de l'écologie et du développement durable et le ministère de l'emploi, de la cohésion sociale et du logement ont adressé à l'Afsset, au mois d'août 2006, une saisine relative à « l'évaluation des impacts sanitaires relatifs des émissions de particules et de dioxyde d'azote (NO₂) des véhicules diesel » (cf. lettre de saisine en **Annexe 1**).

Les différentes réglementations européennes en cours d'élaboration, et notamment les réglementations Euro relatives aux émissions des véhicules particuliers et des poids lourds, fixent des limites d'émissions en particules pour les véhicules diesels. Ces limites entraineront probablement une certaine généralisation des filtres à particules sur ces véhicules, en parallèle à l'introduction éventuelle de nouveaux modes de combustion homogène (ex : technologie type HCCI) qui pourraient permettre de réduire les émissions à la sortie du moteur et de revoir ainsi la conception de la ligne d'échappement au niveau des systèmes de post traitement.

Les filtres à particules (FAP) permettent de réduire les émissions de particules en masse et en nombre.

Or, certaines technologies disponibles sur le marché associent la catalyse d'oxydation (catadox) au FAP et à l'heure actuelle, différentes conclusions d'études européennes et californiennes indiquent que les technologies incluant un catalyseur d'oxydation entraînent une augmentation significative des émissions de NO₂ (traduite par un ratio NO₂/NO_x plus élevé) sans qu'un effet soit observable sur les émissions globales de NO_x.

Ainsi, dans ce contexte, il est donc demandé à l'Agence de fournir à ses tutelles un rapport portant sur les points suivants :

1. analyse de l'ensemble des données bibliographiques disponibles ;
2. impacts, différenciés selon les technologies de filtre, des filtres à particules sur les émissions de NO_x et sur le rapport NO₂/NO_x ;
3. évaluation de la représentativité des conditions de mesure de polluants, et conséquences des différences constatées sur l'impact sanitaire réel des émissions, et notamment de particules et de NO₂ ;
4. au vu de ces éléments, évaluation de l'impact sanitaire global, y compris l'impact sur les travailleurs exposés professionnellement, des émissions d'un véhicule équipé d'un FAP, selon les technologies identifiées au point 2, ou d'un véhicule non équipé d'un FAP.

1.3 La démarche en réponse

1.3.1 L'analyse préalable

A l'occasion d'une première phase d'analyse de la saisine, une présentation de la demande formulée a été organisée lors de la séance plénière du CES « Evaluation des risques liés aux milieux aériens »¹⁶ du 6 octobre 2006. A l'issue de la présentation réalisée, le CES a donné un avis globalement favorable à l'instruction de cette saisine, sur la base cependant de modifications substantielles des questions posées. Dans ce contexte, le CES a souhaité organiser une réunion regroupant quelques experts visant à mener une réflexion collective sur la façon dont le sujet pouvait être instruit et à identifier les axes de travail possibles. Cette réunion, organisée par l'Afsset, a regroupé 7 experts du CES et s'est tenue le 17 novembre 2006.

Les observations et propositions des experts ont été les suivantes :

Observations :

- Les points notés 1 et 2 de la saisine font consensus en terme de faisabilité ;
- Au point noté 3, une évaluation de la représentativité des conditions de mesure des émissions de polluants n'apparaît pas du ressort de l'Afsset. Cette demande implique en effet des aspects technologiques et métrologiques pour lesquels l'Afsset et son CES ne semblent pas être les entités les plus à même d'y répondre.
- Au point noté 4, l'évaluation d'un impact sanitaire tel que demandé n'apparaît pas réalisable. En effet, un impact sanitaire est un nombre de cas (quantification de pathologies ou de décès) déterminé grâce à une relation exposition-risque, elle-même déterminée à partir d'observations. En épidémiologie de la pollution atmosphérique urbaine, l'estimation est faite à partir d'indicateurs de pollution atmosphérique (mesures dans l'air ambiant). Si le mélange change, la valeur prédictive en termes de risque des indicateurs change également. C'est pour cette raison en particulier que l'Institut de Veille Sanitaire continue de surveiller les relations dose-réponse.

¹⁶ Dans toute la suite de ce rapport, le Comité d'Experts Spécialisés « Evaluation des risques liés aux milieux aériens » sera nommé CES.

Propositions :

Compte tenu des observations faites ci-dessus, trois axes de travail sont proposés en réponse à la saisine :

- Axe 1 : Analyser l'ensemble des données bibliographiques disponibles avec plus particulièrement :
 - Une analyse des données de pollution françaises et européennes (en situation de proximité et de fond) dans le but notamment d'identifier un signal sur les concentrations d'oxydes d'azote (NO_x et NO₂) ;
 - Une analyse des données publiées dans la littérature scientifique, relatives aux émissions des véhicules diesel, et en particulier à l'évolution des émissions de dioxyde d'azote (NO₂) ;

Une revue des données bibliographiques existantes relatives aux conditions de mesure des émissions de dioxyde d'azote (NO₂).
- Axe 2 : Identifier les impacts différenciés des technologies de couplage de catalyseur d'oxydation et de filtre à particules sur les émissions de NO_x et le ratio NO₂/NO_x.
- Axe 3 : cet axe de travail est orienté vers des considérations d'ordre sanitaire, décomposées en deux points :
 - Identifier les aspects toxicologiques liés aux émissions de NO₂ associés aux différentes technologies de couplage de catalyseur d'oxydation et de filtre à particules. Identifier différents « scénarios types » d'exposition (dont des scénarios de type « travailleurs »), rechercher dans la littérature récente des données de concentration d'exposition pour ces scénarios et fournir à minima une évaluation qualitative du risque.
 - Etudier les relations entre les immissions de NO_x, NO₂ et particules et des indicateurs sanitaires aigus et/ou chroniques (mortalité, pathologies cardiorespiratoires par exemple) au vu des éléments traités dans l'axe 1. Ce point ne pourra donc être abordé que si l'axe 1 met en évidence l'existence d'un signal particulier relatif aux oxydes d'azote et au ratio NO₂/NO_x.

Cette approche, déclinée en 3 axes de travail, a été validée par les membres du CES lors de la séance plénière du 15 décembre 2006.

Par courrier en date du 16 février 2007, l'Afsset a rendu compte à ses tutelles des observations et propositions présentées ci-dessus. Le 13 mars 2007, les ministères de tutelles ont adressé à l'Afsset un courrier d'acceptation formelle des propositions d'instruction présentées.

1.3.2 Le groupe de travail (GT)

Consécutivement à l'acceptation formelle de ses tutelles relative au schéma d'instruction proposé décomposé en 3 axes, l'Agence a constitué un groupe de travail pour partie issu du CES. La constitution de ce groupe s'est faite d'une part par candidature spontanée de plusieurs experts membres du CES, et d'autre part par appel à candidatures sur le site internet de l'Afsset.

La constitution définitive du GT a fait l'objet d'une décision de la directrice générale de l'Afsset, en particulier suite à l'examen, par la structure interne de l'agence, des déclarations publiques d'intérêts transmises par l'ensemble des candidats. L'examen mené a par ailleurs été avalisé par le président du CES. Le GT ainsi formé au mois de mai 2007 compte onze experts dont l'un d'entre eux assure le rôle de président du groupe et de rapporteur de la conduite des travaux auprès du CES. Une synthèse des déclarations publiques d'intérêt des membres du GT est présentée en **Annexe 3**.

Les travaux du GT visent à mener une expertise collective permettant d'apporter les réponses aux 3 axes de travail identifiés ci-dessus.

1.3.3 Axes de travail du GT

Avec ce rapport, le groupe de travail s'est attaché à apporter des éléments de réponse aux trois axes de travail identifiés précédemment au 1.3.1.

Pour mener à bien ses travaux, 12 réunions plénières et 4 réunions en sous-groupes dédiés ont eu lieu entre juin 2007 et février 2009. Les travaux ont avancé de façon significative grâce au télétravail de chacun et à la mise à disposition par l'agence d'un site extranet dédié, plateforme d'échange et de consultation commune et sécurisée, accessible à l'ensemble des membres du GT.

Toutes les contributions, internes ou externes au groupe, ont été présentées et discutées au sein du groupe ; les membres permanents du groupe ont validé l'ensemble des choix, des hypothèses, des paramètres et des décisions.

2 Influence des technologies et des normes sur les émissions d'oxydes d'azote (NO, NO₂ et NO_x) des véhicules routiers

2.1 Objectif

La synthèse, réalisée par l'ADEME, présente pour les véhicules légers et lourds, pour différentes normes Euro 0 à Euro 4/V, selon les différents systèmes de post-traitement (sans catadox, avec catadox et éventuellement FAP catalysé / additivé, ...), et sur différents cycles de conduite (normalisés, « réels »,...), les émissions de NO et NO₂. Pour cela, une revue bibliographique a été réalisée au niveau européen par l'AFSSET et l'ADEME, en ne considérant que les émissions mesurées par chimiluminescence en ligne chauffée avec déshumidificateur, méthode jugée la plus appropriée (annexe 6).

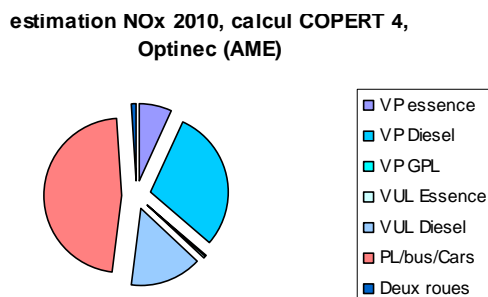
Pour faciliter la compréhension de cette synthèse, il est possible de se référer à la présentation des différentes normes d'émissions (pour ce qui concerne notamment leurs dates d'application et les valeurs limites d'émission correspondantes) en annexe 4, des différents systèmes de réduction des émissions associés aux moteurs essence et Diesel (annexe 5), ainsi que des différentes méthodes de mesure des émissions de NO et NO₂ (annexe 6).

2.2 Analyse des résultats issus de la revue bibliographique

Une revue bibliographique relative aux émissions de NO et NO₂ des véhicules routiers diesel a été réalisée par l'AFSSET et l'ADEME. Pour une question de représentativité des données d'émission, cette revue a ciblé les données européennes. Au préalable, la répartition des émissions de NO_x au sein du parc roulant français, en fonction des catégories de véhicules (VP, PL, Diesel, Essence...) est estimée.

2.2.1 Répartition des émissions NO_x par catégories de véhicules

Une estimation globale de la répartition des émissions de NO_x par catégories de véhicules a été réalisée dans le cadre d'Optinec¹⁷ en utilisant COPERT 4. Les émissions de NO_x sont réparties pour moitié entre véhicules légers et lourds.



(Source : CITEPA, Optinec 2, septembre 2007)

Figure 1 : Estimation de la répartition des émissions de NO_x par catégorie de véhicules

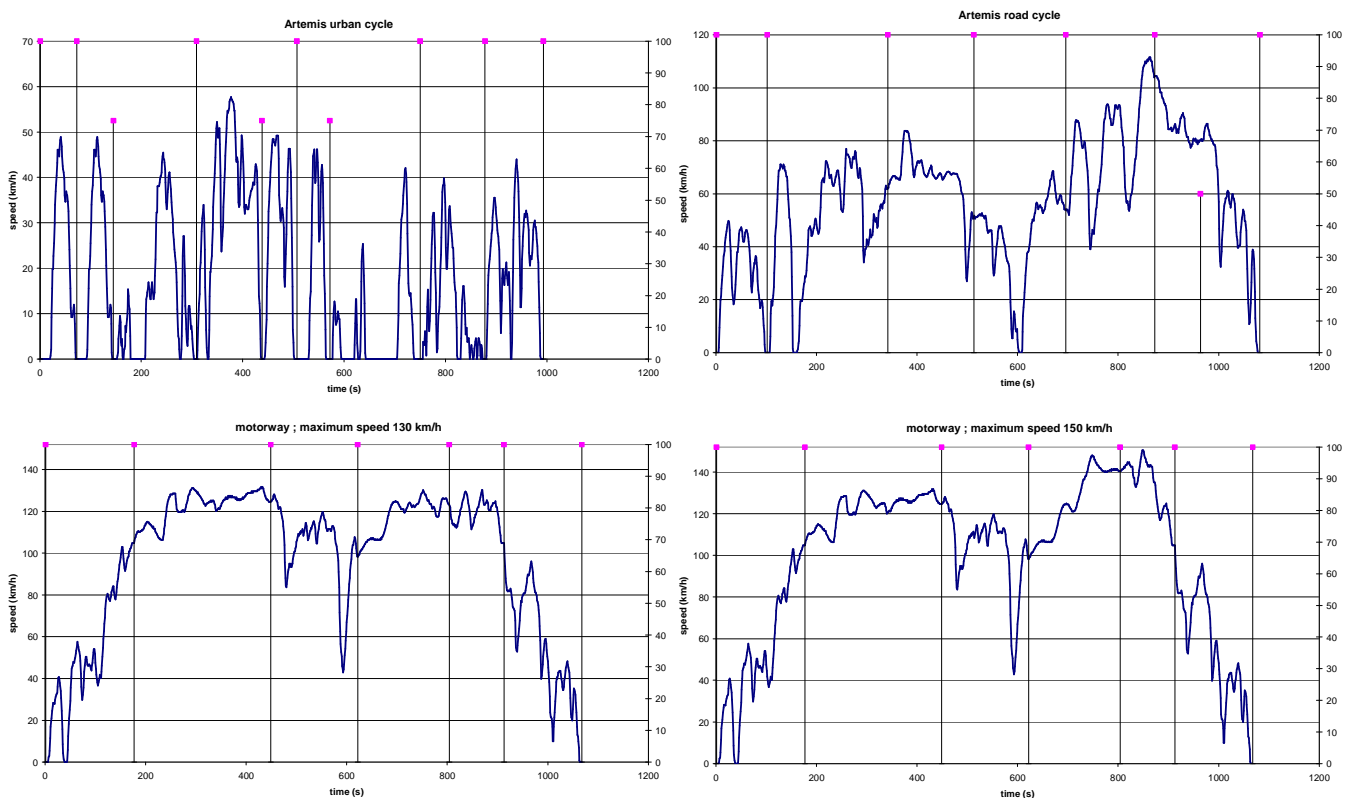
¹⁷ Optinec 2 : Etude réalisée par le CITEPA et l'INERIS, financée par le MEEDDAT, pour évaluer les émissions 2010 et 2020 des polluants visés par la directive NEC (National Emission Ceilings) (2001/81/CE). La directive NEC fixait des plafonds d'émission nationaux pour chaque Etat membre pour les émissions de quatre polluants : SO₂, NO_x, NH₃ et COV tous secteurs confondus, à respecter au plus tard en 2010.

2.2.2 Véhicules légers

Les émissions unitaires mesurées sur les véhicules légers dépendent de plusieurs paramètres majeurs :

- carburant (i.e. moteur associé) : essence/GPL, gazole,
- norme Euro : euro 0 à euro 4,
- système de post traitement : sans catalyseur, filtre à particules catalysé / additivé
- cycle d'usage du véhicule : normalisé (ECE, EUDC, NEDC), « réel » (Artemis), en vitesse stabilisée.

Les cycles de conduite Artemis illustrés dans la Figure 2 ci-après simulent des conditions réelles selon trois usages : urbain, routier et autoroutier.



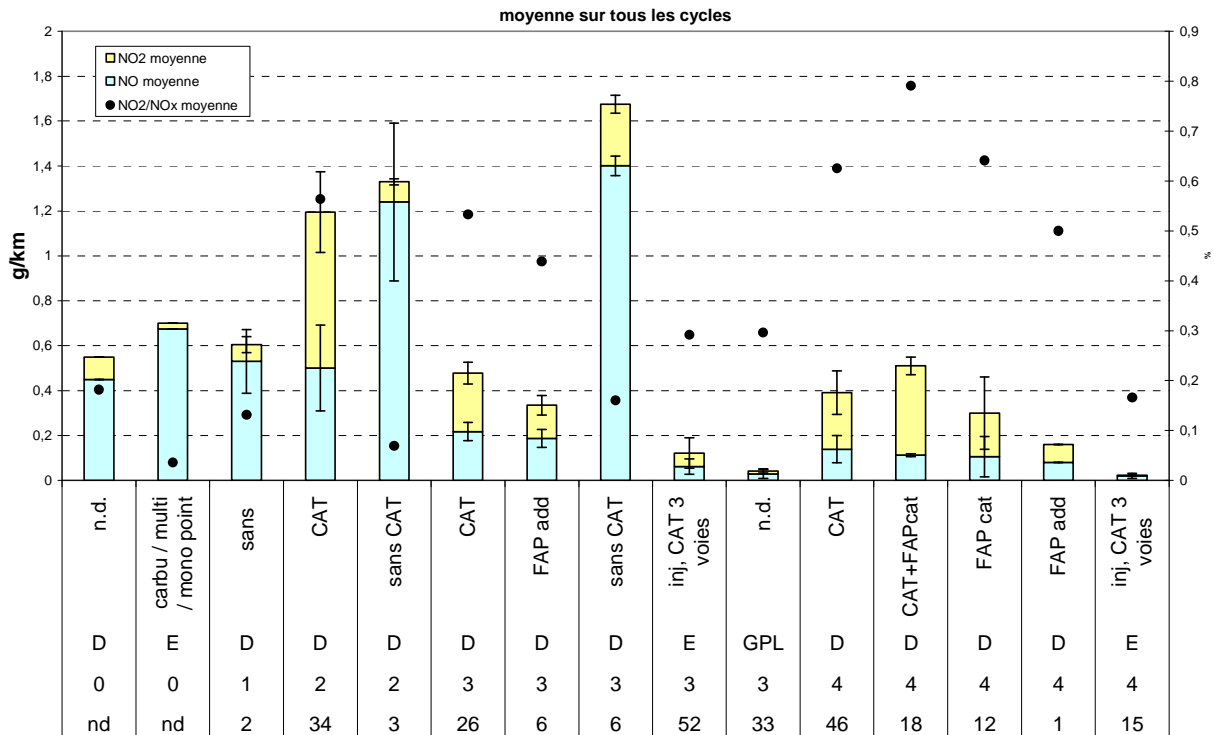
(Source : Ademe)

Figure 2 : Cycles de conduite Artemis

Près de 300 configurations sont disponibles suite à la bibliographie réalisée par l'ADEME et l'AFSSET. Deux moyennes ont été réalisées :

- pour tous les cycles, moyennes des émissions de NO, NO₂ et NO_x pour chaque famille caractérisée par un trio carburant / norme / système de post traitement.
- uniquement pour les cycles Artemis, moyennes des émissions de NO, NO₂ et NO_x pour chaque famille caractérisée par un trio carburant / norme / système de post traitement.

Les Figures 3 et 4 suivantes présentent ces résultats.

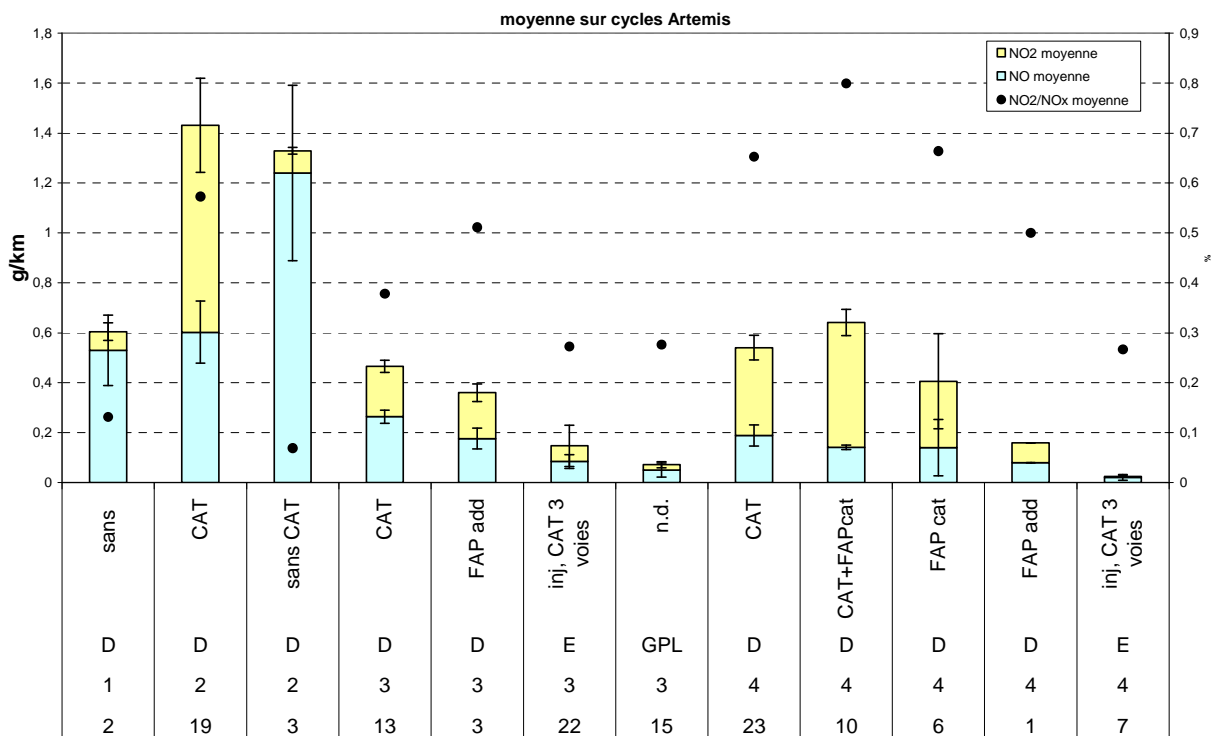


Configuration (de bas en haut) : nombre de données utilisées (nombre) ; norme Euro (chiffre) ; Essence (E), Diesel (D) ou GPL ; système de post-traitement (FAP : filtre à particules ; CAT : catalyseur ; FAP cat : filtre à particules catalysé ; FAP add : filtre à particules additivé). Les moustaches représentent les écarts-type.

(Source : Ademe)

Figure 3 : Emissions unitaires moyennes de NO et NO₂ sur tous cycles, VL

Il a été convenu de retenir pour une analyse détaillée les émissions sur cycles Artemis qui représentent mieux l'utilisation réelle des véhicules. Certaines configurations, pour lesquelles aucune donnée d'émission sur cycles Artemis n'est disponible, disparaissent alors.



Configuration (de bas en haut) : nombre de données utilisées (nombre) ; norme Euro (chiffre) ; Essence (E), Diesel (D) ou GPL ; système de post-traitement (FAP : filtre à particules ; CAT : catalyseur ; FAP cat : filtre à particules catalysé ; FAP add : filtre à particules additivé). Les moustaches représentent les écarts-type.

(Source : Ademe)

Figure 4 : Emissions unitaires moyennes de NO et NO₂ sur cycles réels (Artemis), VL

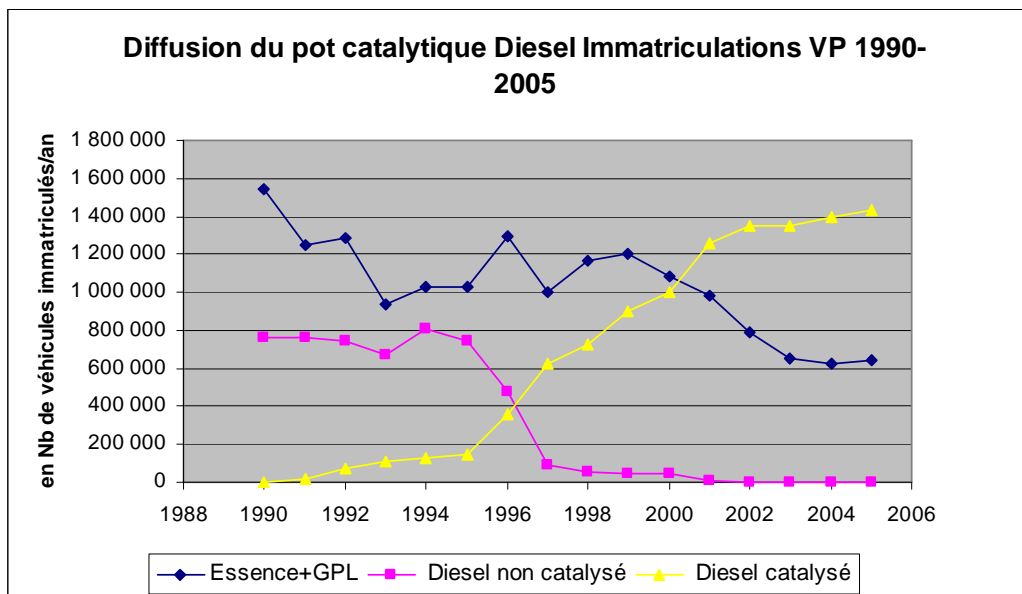
Les principales conclusions concernant l'influence des technologies et des normes sur les émissions unitaires des véhicules Diesel légers :

- Les véhicules Euro 1 présentent des émissions de NO_x inférieures en moyenne à celles des véhicules Euro 2. En effet, seule la somme HC+NO_x est réglementée pour Euro 1 et Euro 2. L'utilisation d'un catalyseur d'oxydation sur Euro 2, afin notamment d'atteindre les limites portant sur les émissions de CO, augmente fortement les émissions de NO₂. Ce catalyseur réduit également les HC, laissant ainsi la possibilité d'une augmentation des émissions de NO_x sans dépassement de la limite réglementaire portant sur la somme HC+NO_x.
- Par contre, le passage d'Euro 2 à Euro 3 se traduit bien par une baisse des émissions de NO_x sur cycles réels d'un facteur 2 à 3, sans réduction systématique des émissions de NO₂.
- La filtration proprement dite n'est pas génératrice d'une surémission de NO₂. Par contre, les technologies associant un renforcement de la catalyse d'oxydation au FAP pour gérer sa régénération entraînent une augmentation des émissions de NO₂.
- La norme Euro 4 qui impose sur le cycle d'homologation une réduction de moitié des émissions de NO_x, ne présente pas d'évolution majeure sur des cycles réels par rapport à Euro 3. Les différentes configurations présentant un renforcement de la catalyse d'oxydation (notamment pour gérer la régénération du FAP), qu'il soit en amont ou sur le FAP, affichent les plus fortes émissions de NO₂.
- A noter que pour les véhicules Euro 3, les émissions de NO, NO₂ et NO_x obtenues avec FAP additivé présentent relativement peu d'écart avec la version sans FAP, le FAP additivé ne nécessitant pas de renforcement de la catalyse d'oxydation pour sa régénération.

Afin d'évaluer les émissions dans le parc de véhicules légers roulant, ces facteurs d'émissions unitaires moyens doivent être multipliés par le nombre de kilomètres parcourus (par unité de temps) pour chaque famille de véhicules identifiée par le carburant, la norme Euro et le système de post traitement.

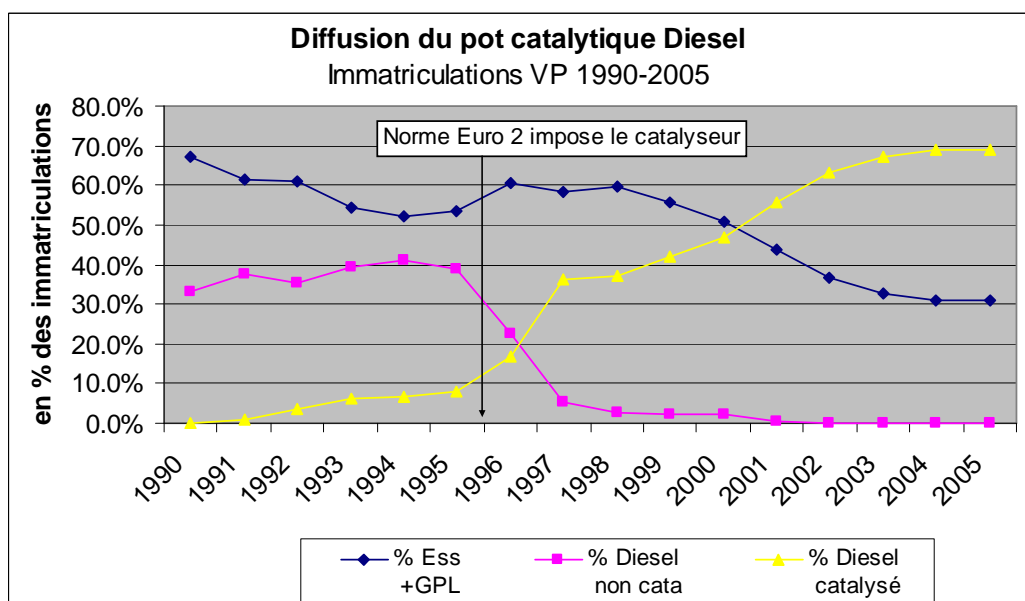
Les familles Euro / systèmes de post traitement sont :

- Euro 0 Diesel : pas de post traitement
- Euro 1 Diesel : pas de post traitement (bien que les premiers véhicules Diesel soient équipés de catalyseur)
- Euro 2 Diesel : catalyseur dès 1996 (obligatoire pour respecter la norme). Le taux de pénétration du pot catalytique dans le parc est estimé par les deux graphiques suivants (immatriculations, en % et nombre total par an) :



(Source : Ademe)

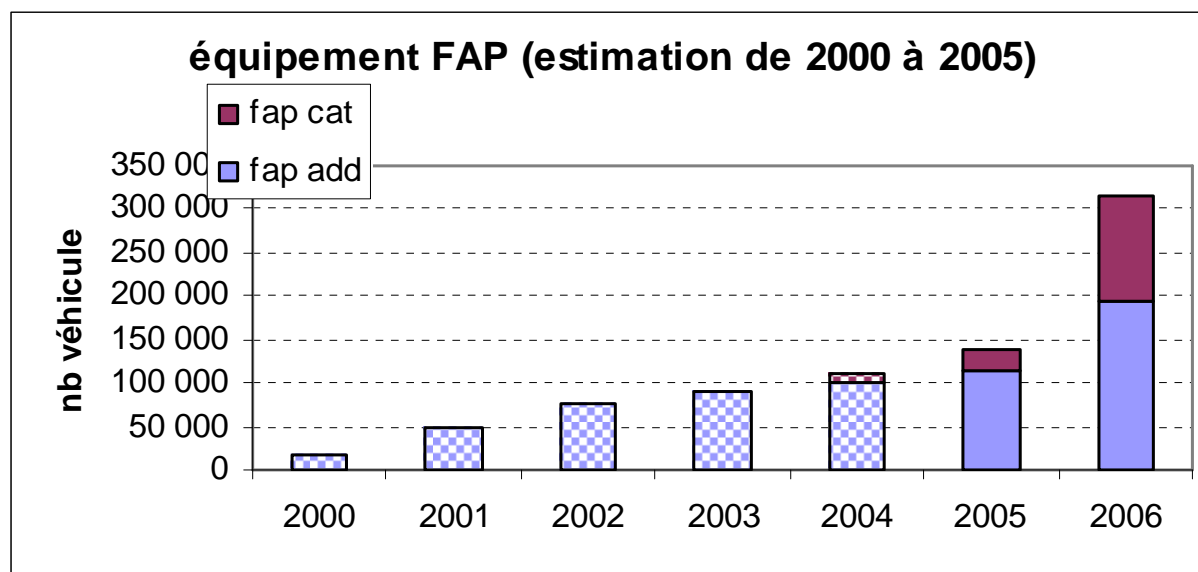
Figure 5 : Pénétration du pot catalytique Diesel (nombre des immatriculations VP Diesel 1990-2005)



(Source : Ademe)

Figure 6 : Pénétration du pot catalytique Diesel (% d'immatriculations VP Diesel 1990-2005)

- Euro 3 Diesel : catalyseur et premier FAP dès 2000 (non obligatoire pour respecter la norme). L'ADEME possède des données de ventes de véhicules équipés de FAP pour les années 2005 et 2006. Pour les années précédentes (2000 à 2004), le nombre de véhicule vendu équipé de FAP a été estimé. Par ailleurs, pour les années 2005 et 2006, la répartition FAP additivé / catalysé a été estimée sur la base des informations disponibles pour chaque constructeur (Figure 7).



(Source : Ademe)

Figure 7 : Estimation du nombre de véhicules équipés de FAP dans le parc

- Euro 4 Diesel : catalyseur et FAP (non obligatoires pour respecter la norme)

Pour les véhicules Euro 0 à Euro 4, les facteurs d'émission unitaires utilisés sont ceux mesurés sur cycle ARTEMIS et représentés sur la Figure 4. On notera que ces facteurs d'émission unitaires sont calculés en faisant la moyenne d'émissions mesurées sur cycle urbain, routier et autoroutier. La contribution relative de chacun des trois cycles dans le calcul des facteurs d'émission unitaires n'a pu être prise en compte dans ce rapport.

En utilisant le parc dynamique fourni par l'INRETS (véhicule.km par norme Euro), les projections des responsabilités dans les émissions de NO₂ peuvent être estimées, sachant que le trafic intégré dans le parc INRETS semble plutôt surestimé en se basant sur les trafics réels observés en 2007. Pour cela, des hypothèses ont été adoptées pour les émissions des véhicules Euro 5 :

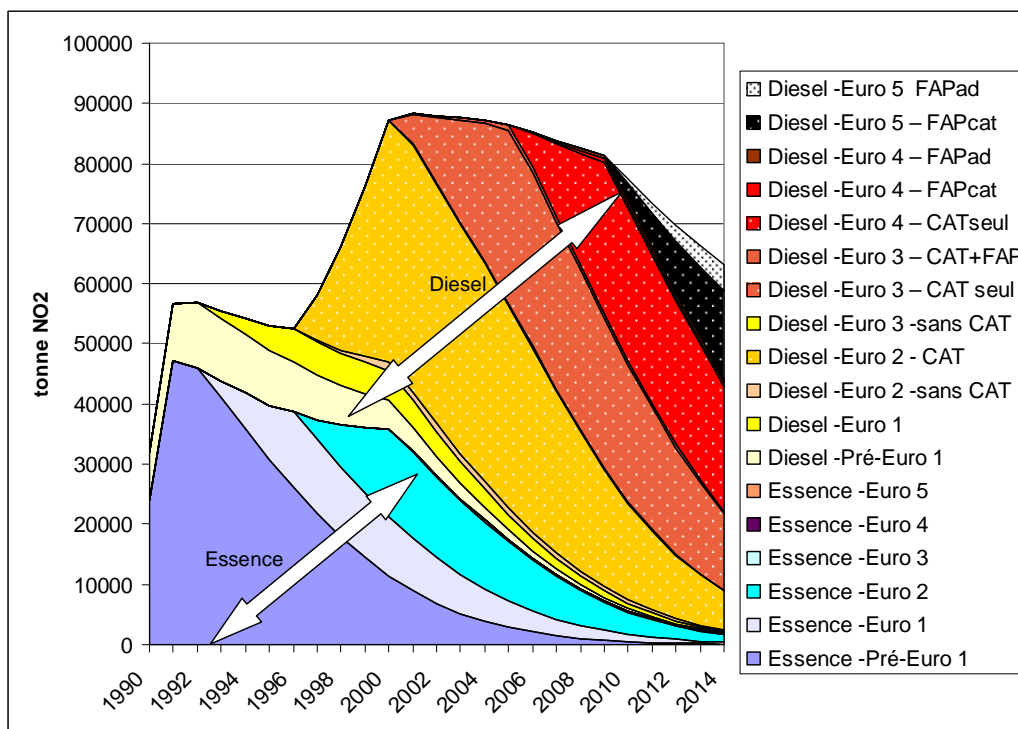
- Euro 5 essence : réduction des émissions de NO et NO₂ entre Euro 4 et Euro 5 sur cycles réels dans la proportion prévue pour les NO_x par les limites réglementaires.
- Euro 5 diesel : trois scénarii alternatifs contrastés sur les émissions des véhicules Euro 5 diesel ont été examinés (Tableau I) :

- Un scénario « favorable » ;
- Un scénario « modéré » ;
- Un scénario « défavorable ».

Tableau I : Scenarii de projections des émissions NO₂ attribuables aux véhicules Diesel Euro 5 dans le parc VL

		<i>Hypothèses sur les émissions unitaires de NO₂ pour les véhicules diesel Euro 5</i>	
		Réduction des émissions de NO ₂ par rapport à Euro 4 dans la proportion prévue pour les NO _x par les limites réglementaires	Augmentation du NO ₂ émis de 10% par rapport à Euro 4
<i>Hypothèses sur la répartition dans le parc FAP catalysé / FAP additive</i>	50/50	Scénario « favorable »	Scénario « modéré »
	80/20		Scénario « défavorable »

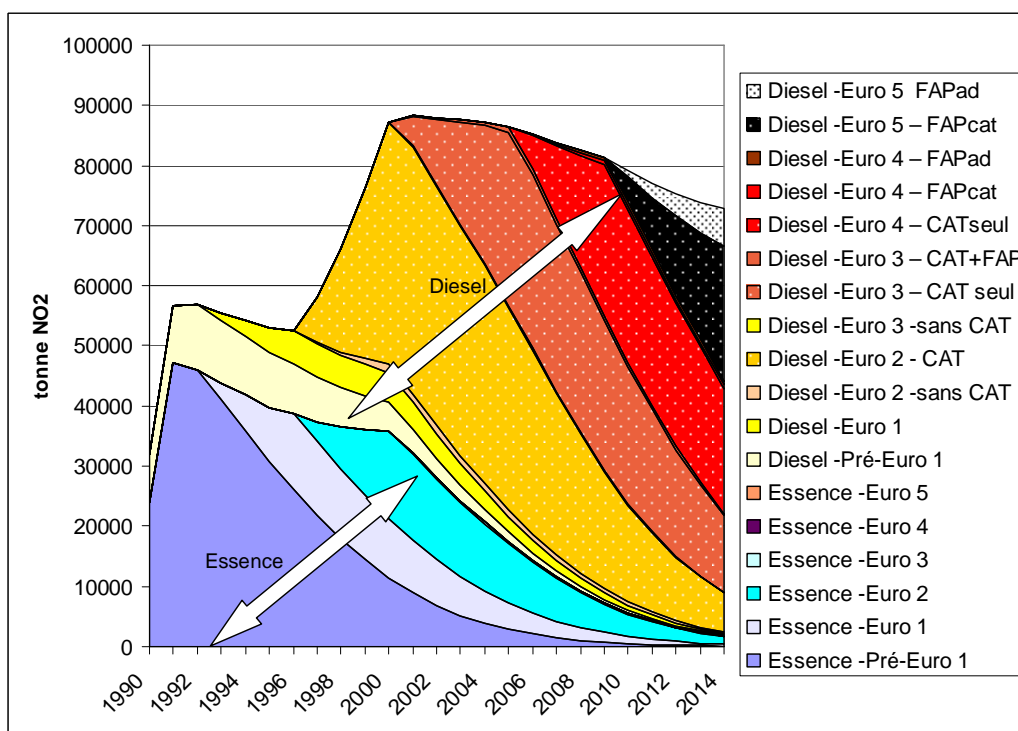
La répartition des émissions de NO₂ à l'échappement par famille de véhicules légers a été réalisée selon les 3 scenarii (voir Figures 8, 9 et 10), et les principales conclusions sont :



(Source : Ademe – CETE Nord Picardie)

Figure 8 : Répartition des émissions de NO₂, Euro 5 en réduction au prorata norme Euro4/5

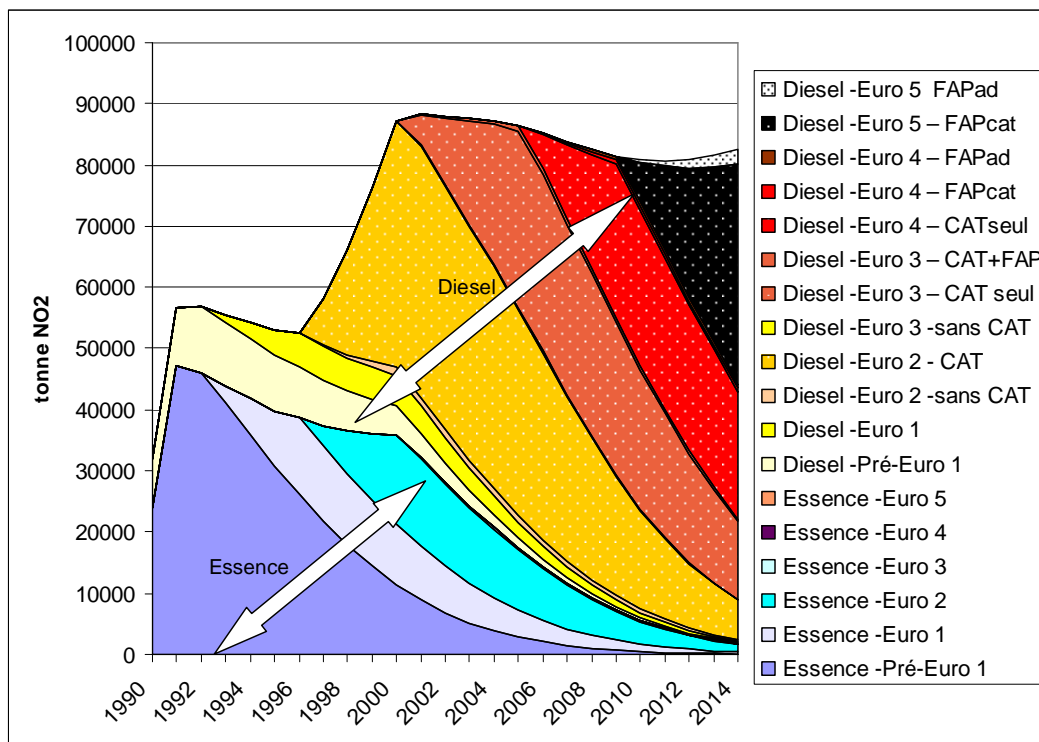
Scénario « favorable » (Figure 8) : Après une forte augmentation de 70 % dans les années 1996 à 2000 due essentiellement à l'introduction du catalyseur dans les véhicules Diesel, les émissions totales de NO₂ se stabilisent jusqu'en 2009 environ pour ensuite décroître. Les responsabilités apparaissent avec, pour 2008, une part majoritaire (près de 90%) pour les Diesel catalysés Euro 2, 3 et 4. La responsabilité actuelle des véhicules Diesel avec FAP est très faible (de l'ordre de 1%). En 2014, date d'introduction d'Euro 6, les émissions de NO₂ seront dues au Diesel à plus de 95%, avec une part des Euro 2 de l'ordre de 10%, 20% pour les Euro 3, 30% pour les Euro 4 et 20% pour les Euro 5 avec FAP catalysé.



(Source : Ademe – CETE Nord Picardie)

Figure 9 : Répartition des émissions de NO₂, émissions Euro 5 supérieures de 10% à Euro 4

Scénario « modéré » (Figure 9) : L’impact d’une norme Euro 5 avec une surémission par rapport à Euro 4 (+10%) est non négligeable puisque la réduction des émissions globales ne baisse pas brutalement comme dans la Figure 8, mais semble atteindre un plateau.



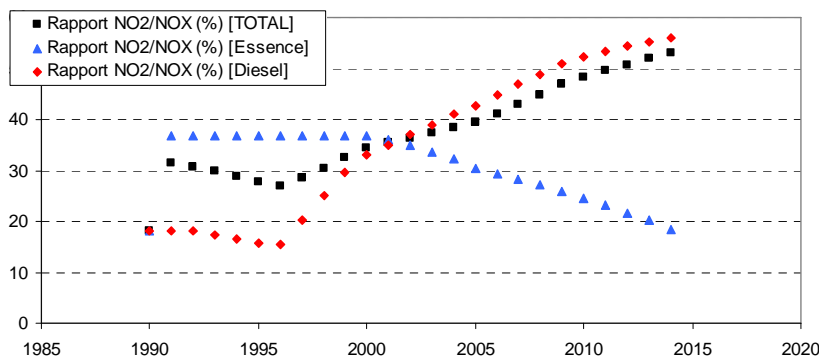
(Source : Ademe – CETE Nord Picardie)

Figure 10 : Répartition des émissions de NO₂, émissions Euro 5 supérieures de 10% à Euro 4 + FAP additivé/catalysé de 80/20

Scénario « défavorable » (Figure 10) : L’impact de l’hypothèse la plus sévère, soit une norme Euro 5 avec une surémission par rapport à Euro 4 (+10%) associée à une répartition de 80 % de FAP catalysés et 20 % de FAP additivés dans le parc, aurait un impact encore plus marqué puisque les émissions globales de NO₂ observées augmentent alors à partir de 2012.

Concernant les ratios NO₂/NO_x, l’introduction des catalyseurs se traduit par une augmentation franche du ratio pour les véhicules diesel en 1996 (Figure 11). Le rapport pour le Diesel évolue ensuite défavorablement par la diffusion progressive de la catalyse et du FAP. Ces résultats vont dans le même sens qu’une récente évaluation des tendances du ratio NO₂/NO_x à l’émission réalisée à partir de dix sites au sein de l’Union Européenne (Grice S. et al., 2009).

Evolution des ratios



(Source : Ademe – CETE Nord Picardie)

Figure 11 : Ratio NO₂/NO_x, Euro 5 en réduction au prorata norme Euro 4/5, de 1990 à 2015

En conclusion, les résultats de simulation montrent que le ratio NO₂/NO_x à l'émission pour le parc de véhicules Diesel légers évolue à la hausse depuis 1996, date à laquelle les catalyseurs d'oxydation ont été rendus obligatoires sur les véhicules neufs par la norme Euro 2, et que ceci va perdurer. Toutefois, si le taux de pénétration des FAP additivés parmi l'ensemble des véhicules équipés de FAP dépassait 30% environ, les émissions globales de NO₂ dues aux véhicules légers devraient se réduire à minima jusqu'en 2014, plus ou moins rapidement selon les scénarii « favorable » et « modéré » retenus pour estimer les émissions Euro 5. Au contraire, si cette proportion était inférieure à 30% environ, on observerait à terme une augmentation des émissions globales de NO₂ dues aux véhicules légers. Depuis le début des années 2000, les émissions de NO₂ du parc sont principalement attribuables aux véhicules diesel catalysés d'Euro 2 à 4, voire 5 avec les scénarii « modéré » et « défavorable » présentant les plus fortes émissions de NO₂. A l'heure actuelle, du fait de leur faible pénétration dans le parc, les véhicules équipés de FAP associés à un catalyseur d'oxydation ne contribuent que très peu aux émissions totales de NO₂. Cependant, cette contribution devrait augmenter à l'avenir.

2.2.3 Véhicules lourds

Les émissions mesurées sur les véhicules lourds dépendent de plusieurs paramètres, sachant que les émissions sont mesurées sur le moteur seul en général :

- norme Euro : euro 0 à euro V,
- système de post traitement : sans, catalyseur, filtre à particules catalysé / additivé, SCR, EGR,
- cycle d'usage du véhicule : normalisé (13 modes), « réel », sur des points de fonctionnement stabilisé.

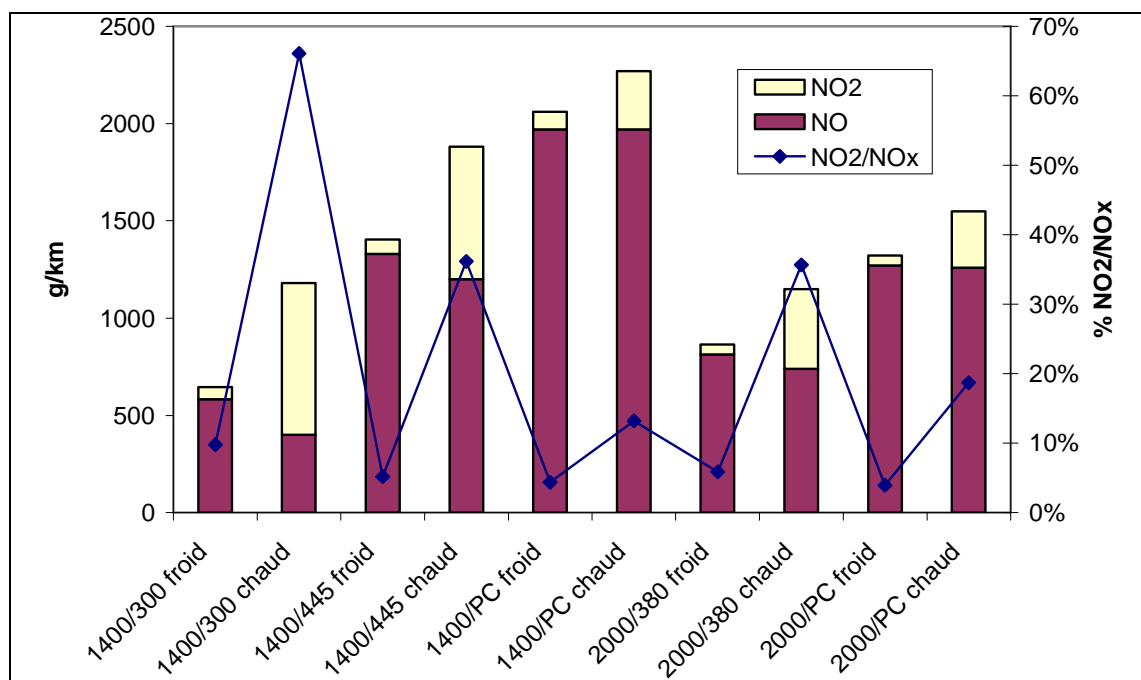
Près de 70 configurations sont disponibles suite à la bibliographie réalisée. Trois types de résultats peuvent être exploités :

- les émissions mesurées sur moteur seul sur différents points de fonctionnement, en faisant varier certains paramètres comme la température,
- les émissions mesurées sur véhicule complet (bus, camion) sur différents cycles, en intégrant sans les contrôler les variations de température par exemple.
- les émissions mesurées sur véhicules sur tous les points de fonctionnement du moteur, par des systèmes de mesures embarquées. Ceci permet d'effectuer des cartographies de polluants en 3D.

Compte tenu des différences au niveau réglementaire entre véhicules lourds et légers, et en conséquence des données disponibles, il n'a pas été possible d'effectuer comme pour les véhicules légers une attribution des responsabilités et une projection. Il est donc présenté l'influence des paramètres majeurs sur les émissions de polluants, ainsi qu'un rappel sur les émissions globales de NO, NO₂ des véhicules légers et lourds.

Les émissions mesurées au banc moteur permettent d'identifier les principaux paramètres influents (Figure 12) :

- Les points de fonctionnement (i.e. régime/charge) : plus le régime est élevé plus les émissions de NO₂ sont faibles, de même pour la charge conduisant à une émission maximale de NO₂ sur le point de faible régime/charge à chaud. Ces conditions de fonctionnement se rencontrent principalement pour les autobus urbains. Le fonctionnement au ralenti n'est pas le plus critique car la température baisse rapidement.
- La température dont l'élévation induit une augmentation des émissions de NO₂.

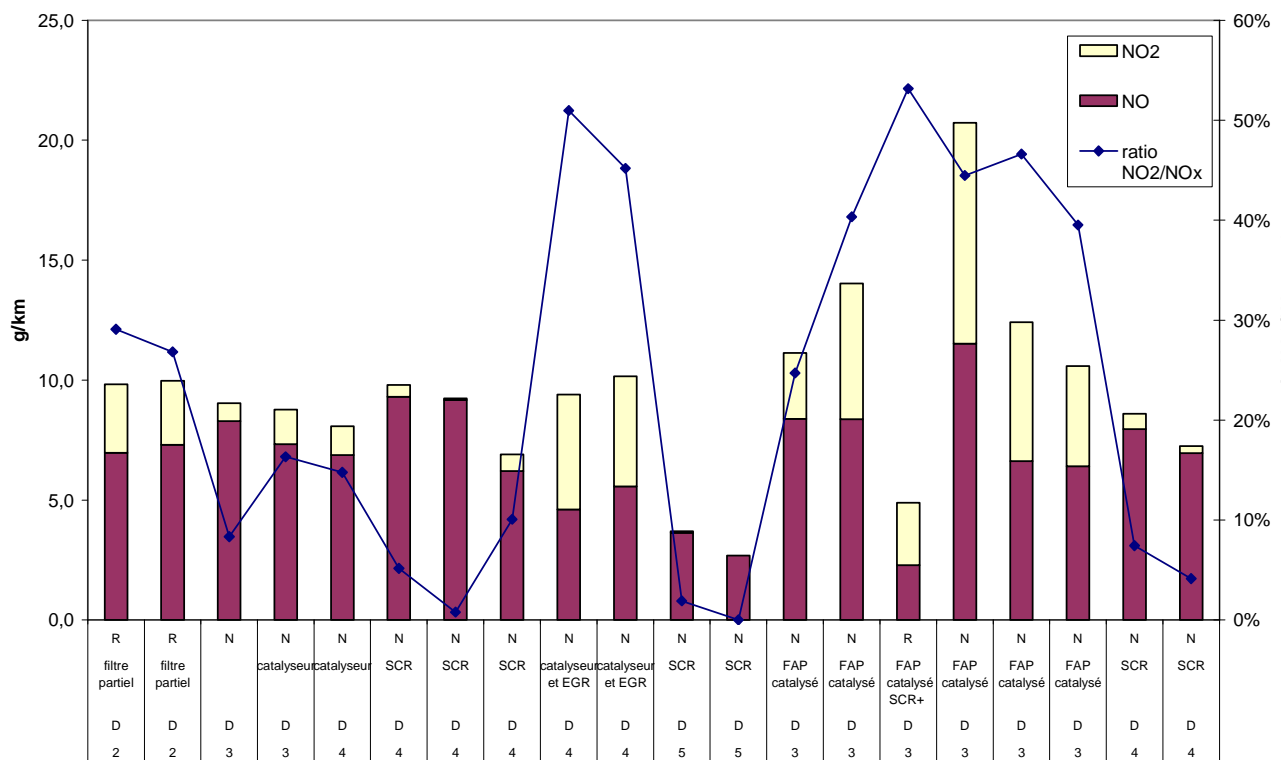


Point de fonctionnement moteur : régime/charge température ; PC : pleine charge
(Source : Ademe)

Figure 12 : Emissions de NO, NO₂ en fonction du point de fonctionnement moteur de véhicules lourds

Les émissions mesurées sur différents cycles sont présentées dans la Figure 13. Elles concernent uniquement des autobus. Les points à retenir sont :

- l'évolution des premières générations de normes Euro ne s'est pas toujours traduite par des réductions des émissions de NO_x sur des cycles réels (ce qui a également été observé sur les véhicules légers),
- la présence de catalyseur, FAP catalysé ou FAP partiel (qui intègre un catalyseur), conduit systématiquement à une augmentation des émissions de NO₂.
- La solution EGR couplée avec un catalyseur présente des émissions de NO₂ supérieures à la solution concurrente SCR seul. Par contre l'ajout d'un FAP catalysé à cette dernière conduit également à accroître les émissions de NO₂.

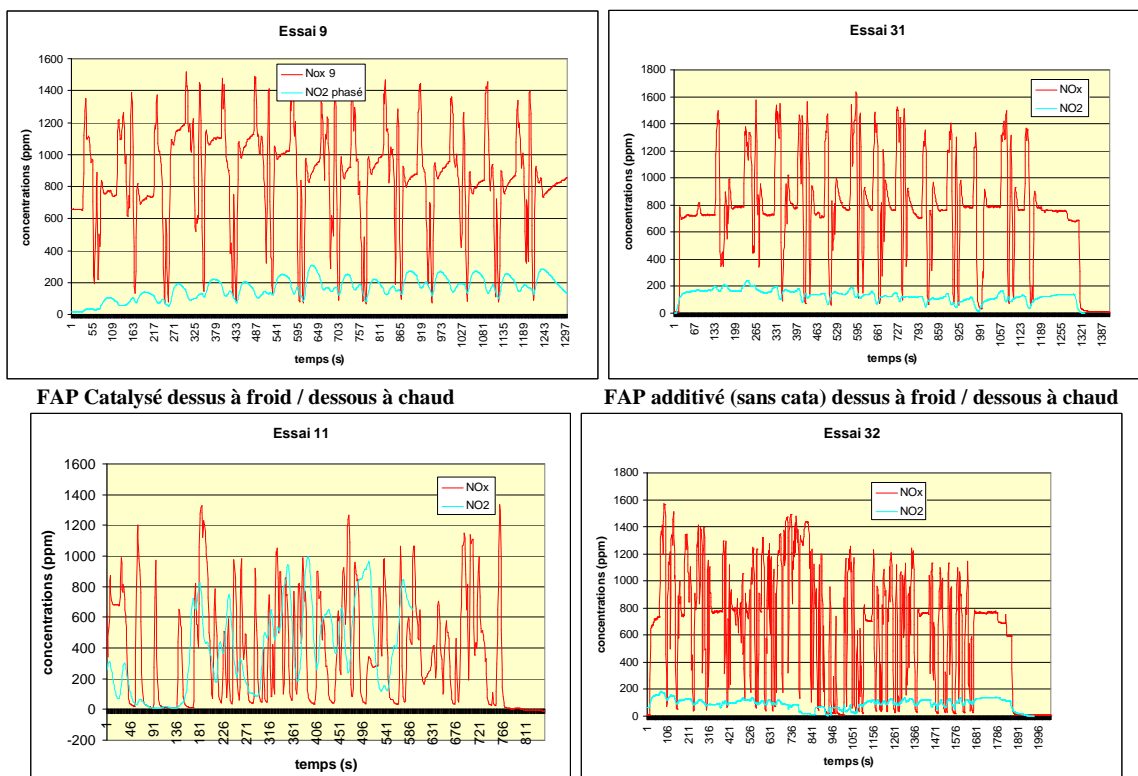


Configuration : norme Euro (chiffre) ; D (Diesel) ; système de post-traitement ; N (neuf) ou R (rétrofit)

(Source : Ademe)

Figure 13 : Emissions de NO, NO₂ en fonction de la configuration des autobus

Des mesures complémentaires ont été réalisées par des systèmes embarqués pour caractériser les phénomènes transitoires (Figure 14). Les configurations suivantes ont été évaluées : FAP catalysé, FAP additivé à froid et à chaud. Il est de nouveau affiché de fortes émissions dans le cas du FAP catalysé à chaud.

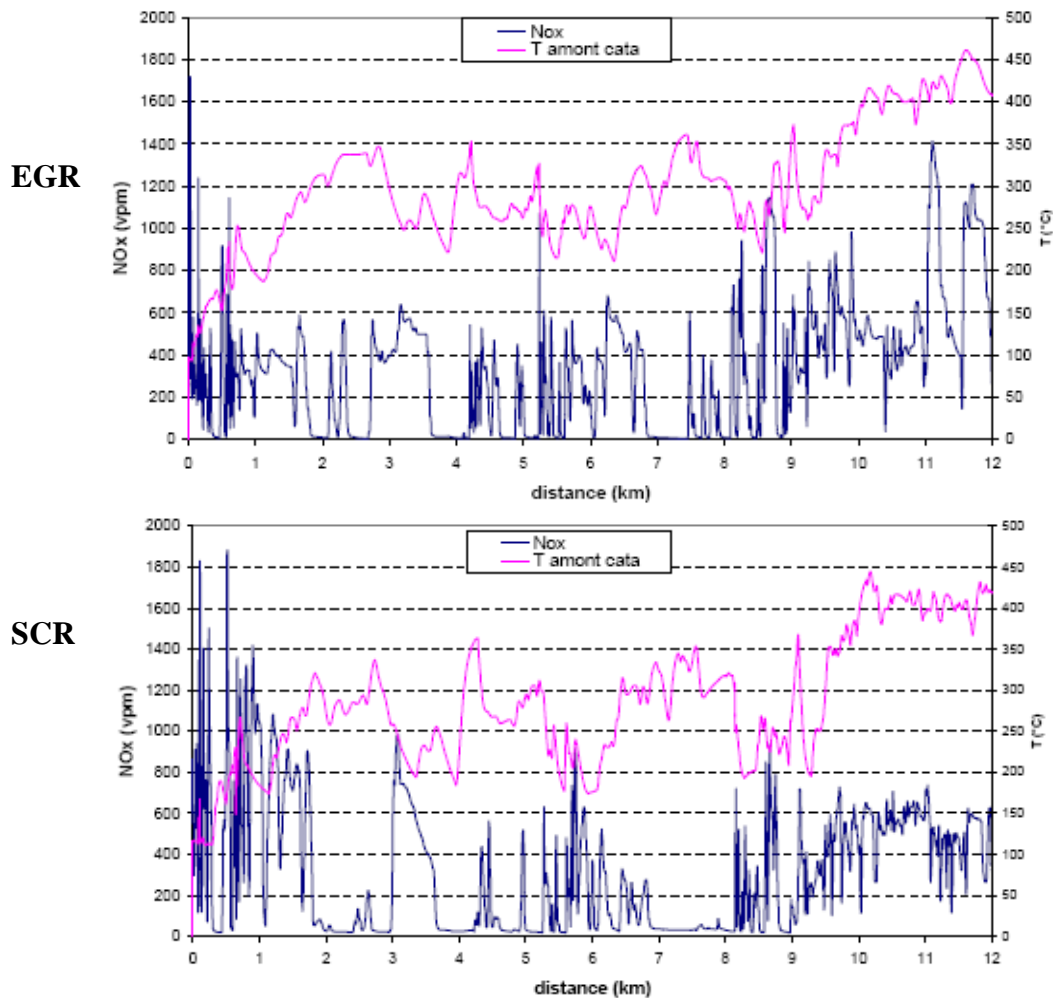


(Source : Ademe)

Figure 14 : Mesures en continu d'émission NO₂, NO_x en fonction du FAP (catalysé, additivé), à chaud et à froid

Des mesures instantanées ont également été réalisées sur des tracteurs routiers Euro IV pour comparer les solutions EGR et SCR (Figure 15).

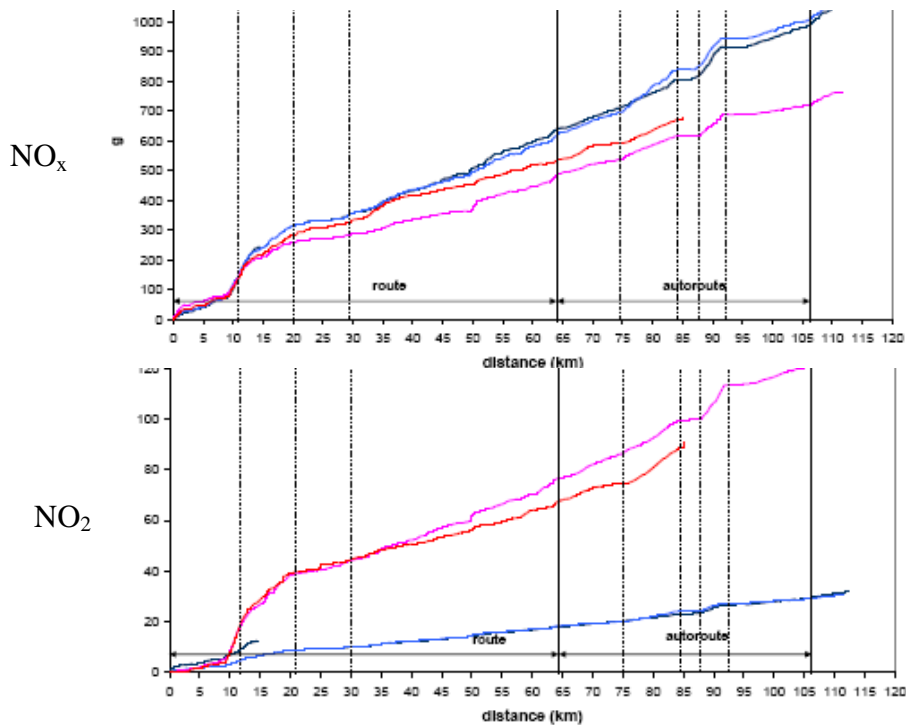
En principale conclusion, la température d'échappement, donc le cycle d'usage, influence les émissions de NO_x donc de NO₂. En effet, l'injection d'urée (SCR) est soumise à la condition d'une température minimale de l'ordre de 250-300°C. A partir de cette température, les émissions baissent drastiquement. Ceci ne s'applique pas pour l'EGR qui fonctionne quelque soit la température.



(Source : Ademe)

Figure 15 : Mesures en continu d'émission NO_x en fonction de la distance sur un parcours réel, pour des technologies EGR et SCR

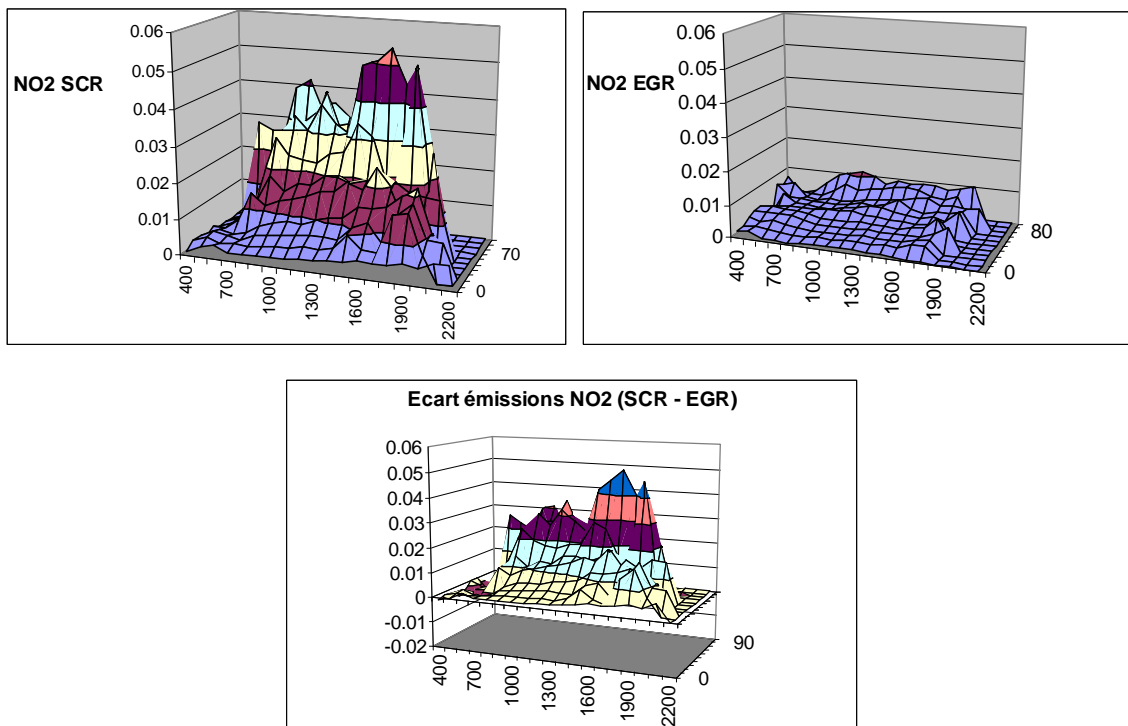
Les émissions de NO_x (en grammes cumulés sur un parcours) relevées sur le parcours sont relativement comparables, alors que les émissions de NO₂ (en grammes cumulés sur un parcours) sont nettement à l'avantage de la solution EGR (en bleu) par rapport à la solution SCR (en rouge) (Figure 16), ce qui contredit, à priori, les résultats obtenus sur les bus.



(Source : Ademe)

Figure 16 : Emissions cumulées NO₂ NO_x sur un parcours réel pour des technologies EGR (bleu) et SCR (rouge)

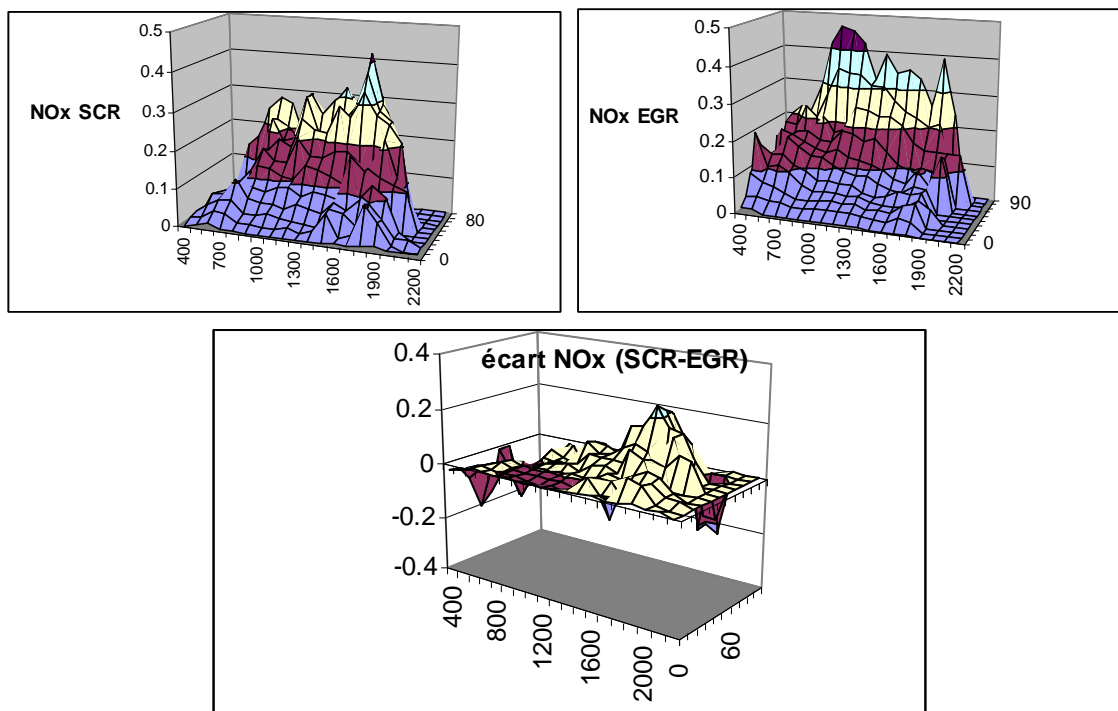
Les émissions de NO_x et de NO₂ (exprimées en g/s en fonction du régime et de la charge) sont extrêmement conditionnées par le point de fonctionnement du moteur, comme le montrent les cartographies des Figures 49 et 50. Les émissions de NO₂ sont plus faibles avec l'EGR pour une utilisation haut régime/forte charge typique des camions, alors qu'elles sont identiques voire plus faibles avec la SCR pour une application bas régime/faible charge sous réserve d'avoir une température suffisante pour injecter de l'urée.



(Source : Ademe)

Figure 17 : Emissions de NO₂ en fonction du régime et de la charge moteur, pour des technologies EGR et SCR

Les émissions de NO_x (exprimées en g/s en fonction du régime et de la charge) sont globalement proches entre SCR et EGR, et les écarts plutôt à l'avantage de la solution EGR, sauf dans la zone bas régime/faible charge.



(Source : Ademe)

Figure 18 : Emissions de NO_x en fonction du régime et de la charge moteur, pour des technologies EGR et SCR

Synthèse pour les véhicules Diesel lourds :

- Le renforcement des normes Euro ne se traduit pas toujours par des réductions de NO_x en conditions réelles de circulation (ce qui a également été observé sur les véhicules légers).
- Les émissions de NO₂ sont essentiellement liées à la charge du véhicule et à la température dans le circuit d'échappement.
- La présence de catalyseur, FAP catalysé ou FAP ouvert (qui intègre un catalyseur et qui est souvent associé à l'EGR¹⁸), conduit systématiquement à une augmentation des émissions de NO₂.
- Les émissions de NO_x et de NO₂ sont fortement conditionnées par le point de fonctionnement du moteur. Les émissions de NO₂ sont plus faibles avec l'EGR¹⁸ pour une utilisation haut régime/forte charge typique des camions, alors qu'elles sont plus faibles avec la SCR¹⁹ pour une application bas régime/faible charge sous réserve d'avoir une température suffisante pour injecter de l'urée. Pour les autobus, la solution EGR¹⁸ couplée avec un catalyseur présente des émissions de NO₂ supérieures à la solution concurrente SCR¹⁹ seul, l'ajout d'un FAP catalysé à cette dernière conduisant par contre à accroître les émissions de NO₂.

En conclusion pour les véhicules lourds, dont les conditions d'utilisation sont très variables, les points de fonctionnement moteur (régime et charge), la température d'échappement, et les catalyseurs conditionnent les émissions de NO₂. Les technologies EGR¹⁸ et SCR¹⁹ permettant de réduire les NO_x, présentent des performances variables selon les usages.

18 EGR : le système « Exhaust Gas Recirculation » consiste à rediriger une partie des gaz d'échappement des moteurs à combustion interne dans le collecteur d'admission du moteur.

19 SCR : système de réduction catalytique sélective (Selective Catalytic Reduction)

2.2.4 Conclusions

Selon une récente estimation, les émissions globales de NO_x sont réparties environ pour moitié entre véhicule léger et lourd à l'échelle du parc roulant français (Source : Optinec 2, septembre 2007).

Des données d'émission de NO₂ et NO sur près de 300 configurations de véhicules légers (Diesel ou Essence, norme Euro, système de post-traitement) et sur près de 70 configurations de véhicules lourds (Diesel, système de post-traitement, post-traitement neuf ou en rétrofit) ont été collectées. Ces données issues de mesures par chimiluminescence en ligne chauffée avec déshumidificateur, qui constituent la méthode la plus appropriée pour mesurer les émissions de NO₂ à l'échappement, ont été exploitées pour l'analyse des émissions de véhicules légers d'une part, et de véhicules lourds d'autre part.

Pour les véhicules légers, des facteurs d'émission moyens de NO et NO₂, et le ratio NO₂/NO_x ont été calculés à partir des données d'émission mesurées sur les cycles Artemis, plus représentatifs de l'utilisation réelle des véhicules que les cycles normalisés, en regroupant par familles de véhicules. Chaque famille de véhicules est caractérisée par le carburant, la norme Euro et le système de post traitement. Ces facteurs d'émissions unitaires moyens ont été multipliés par le nombre de kilomètres parcourus (par unité de temps) pour chaque famille de véhicules, afin d'estimer la part attribuable à chaque famille de véhicule en termes d'émissions de NO₂ à l'échappement dans le parc roulant de véhicules légers. L'évolution de ces parts attribuables et la tendance globale des émissions de NO₂ à l'échappement dans le parc dynamique roulant de véhicules légers a pu être caractérisée sur la période de 1990 à 2014. Cette caractérisation est issue notamment de données du parc INRETS, de données de ventes de véhicules équipés de FAP et d'une répartition FAP additivé / catalysé estimée sur la base des informations disponibles pour chaque constructeur. Pour estimer l'évolution future jusqu'en 2014, trois scénarii ont été développés selon des hypothèses plus ou moins sévères sur les émissions de NO₂ pour les véhicules Diesel Euro 5 : « favorable », « modéré » et « défavorable ».

Pour les véhicules lourds, compte tenu des différences au niveau réglementaire entre véhicules lourds et légers, et en conséquence des données disponibles, il n'a pas été possible d'effectuer comme pour les véhicules légers une attribution des responsabilités et une projection en termes d'émissions de NO₂ par le parc roulant. Il est donc présenté l'influence des paramètres majeurs sur les émissions de NO₂.

En conclusion pour les véhicules légers, les résultats de simulation montrent que le ratio NO₂/NO_x à l'émission pour le parc de véhicules Diesel évolue à la hausse depuis 1996, date à laquelle les catalyseurs d'oxydation ont été rendus obligatoires sur les véhicules neufs par la norme Euro 2, et que ceci va perdurer. Toutefois, les émissions globales de NO₂ devraient se réduire à minima jusqu'en 2014, plus ou moins rapidement selon les scénarii « favorable » et « modéré ». A contrario, elles augmentent à partir de 2012 avec le scénario « défavorable » (soit une norme Euro 5 avec une surémission de NO₂ par rapport à Euro 4 (+10%) associée à une répartition FAP catalysés / additivés de 80/20 dans le parc). **Depuis le début des années 2000, les émissions de NO₂ du parc sont principalement attribuables aux véhicules diesel catalysés d'Euro 2 à 4 (voire 5 avec les scénarii « modéré » et « défavorable » présentant les plus fortes émissions de NO₂).** Sachant que la mise en œuvre de FAP catalysé ou additivé est toujours associée à la présence d'un catalyseur (intégré éventuellement dans le filtre, plus ou moins chargé en métaux précieux) et au regard des résultats des trois scénarii, la filtration proprement dite apparaît peu liée aux émissions de NO₂ du parc roulant, contrairement à la présence d'un catalyseur. La responsabilité en matière de NO₂ de la catalyse d'oxydation associée aux FAP, que ce soit utilisant un additif avec un catalyseur, ou un filtre entièrement catalysé, n'est actuellement pas visible compte tenu des faibles volumes de véhicules équipés circulant, mais cette technologie devrait à l'avenir avoir une responsabilité comparable au catalyseur seul, compte tenu des évolutions apportées par les normes et des trafics estimés.

En conclusion pour les véhicules lourds, dont les conditions d'utilisation sont très variables, les points de fonctionnement moteur (régime et charge), la température d'échappement, et les catalyseurs conditionnent les émissions de NO₂. Les technologies EGR et SCR permettant de réduire les NO_x, présentent des performances variables selon les usages.

2.2.5 Perspectives

Pour Euro 6 (2014), des véhicules légers seront équipés de FAP catalysé ou additivé. Les véhicules de gamme supérieure traiteront les NO_x avec une réduction SCR sans doute placée avant le FAP. Des caractérisations des performances en usage réel intégrant la température, seront sans doute nécessaires.

Pour Euro VI (2014), les véhicules lourds utiliseront FAP, SCR et EGR pour atteindre les objectifs, avec en conséquence une réduction globale des NO_x. Comme le NO₂ n'est pas actuellement réglementé, sa réduction est, et restera variable suivant les applications. Des évaluations spécifiques pour les conditions d'utilisation les plus émettrices seront également à prévoir.

Par ailleurs, les résultats confirment l'utilité de mesurer les émissions de NO₂ lors des cycles d'homologation en complément des mesures d'émission de NO_x, et de les rendre accessibles. La norme Euro VI (véhicules lourds) impose la mesure des émissions de NO₂ et laisse la possibilité de la définition ultérieure d'une valeur limite portant sur ces émissions. Ce n'est par contre pas le cas de la norme Euro 6 (véhicules légers).

3 Concentrations dans l'air ambiant des oxydes d'azote (NO, NO₂, NO_x) liés au trafic routier

3.1 Introduction

De façon synthétique et pour replacer les éléments qui suivent dans le contexte de l'expertise menée, on rappelle que la problématique examinée est notamment liée à certaines technologies de dépollution mises en œuvre sur les véhicules diesel. Pour abaisser les émissions de particules, les véhicules diesel peuvent être dotés de filtres à particules (FAP). Les FAP sont disposés dans la ligne d'échappement et piègent les particules ; cependant, celles-ci doivent être régulièrement brûlées pour régénérer le filtre et éviter une contre pression néfaste au fonctionnement du moteur. Comme la combustion des particules s'effectue vers 550°C alors que la température des gaz d'échappement est très inférieure, des catalyseurs sont déposés sur le filtre ou incorporés dans le circuit carburant, pour abaisser la température nécessaire à la combustion et procéder à une régénération périodique du filtre. Certains FAP font aussi appel à un catalyseur d'oxydation, placé en amont, et dont l'une des fonctions consiste à accroître les concentrations de dioxyde d'azote (NO₂) et mettre à profit son pouvoir oxydant pour la combustion des particules. Plusieurs études montrent que cette technique (coated catalyst) augmente le rapport NO₂/NO_x à l'échappement, ce qui pose la question de l'impact sur les niveaux d'oxydes d'azote et plus particulièrement de dioxyde d'azote dans l'environnement et par conséquent sur la santé.

Ainsi, outre les éléments présentés dans le chapitre 2 précédent et relatifs aux émissions à la source d'oxydes d'azote (NO, NO₂, et NO_x) par les véhicules routiers diesel, le groupe de travail s'est également attaché à collecter et à analyser les données de pollution de l'air ambiant par les oxydes d'azote, en France et en Europe. Ces données correspondent aux concentrations dans l'air ambiant mesurées pour la majorité par les stations de surveillance qui fonctionnent en routine au sein des agglomérations des différents pays, et en application des directives européennes en matière de qualité de l'air ambiant.

Les objectifs sont de :

- caractériser l'évolution des concentrations de NO₂, NO et NO_x à la fois en situation de proximité au trafic automobile et en situation urbaine dite « de fond » ;
- identifier un éventuel « signal » sur ces concentrations, et en discuter les déterminants plausibles ;
- estimer la contribution au NO₂ ambiant des émissions primaires de NO₂ issues du trafic routier.

Pour mener à bien cette étape de travail, différentes sources d'information ont été exploitées :

- Compilation et traitement par l'Ademe, pour le compte du GT, des données nationales de surveillance archivées au sein de la BDQA (Base nationale de Données sur la Qualité de l'Air ambiant),
- Extractions et analyses spécifiques de données françaises de surveillance par différentes associations agréées de surveillance de la qualité de l'air (AASQA) pour le compte du GT,
- Articles scientifiques et éléments de littérature grise collectés par recherche bibliographique (France et Europe),
- Éléments d'information apportés par les experts auditionnés dans le cadre de l'instruction de cette saisine.

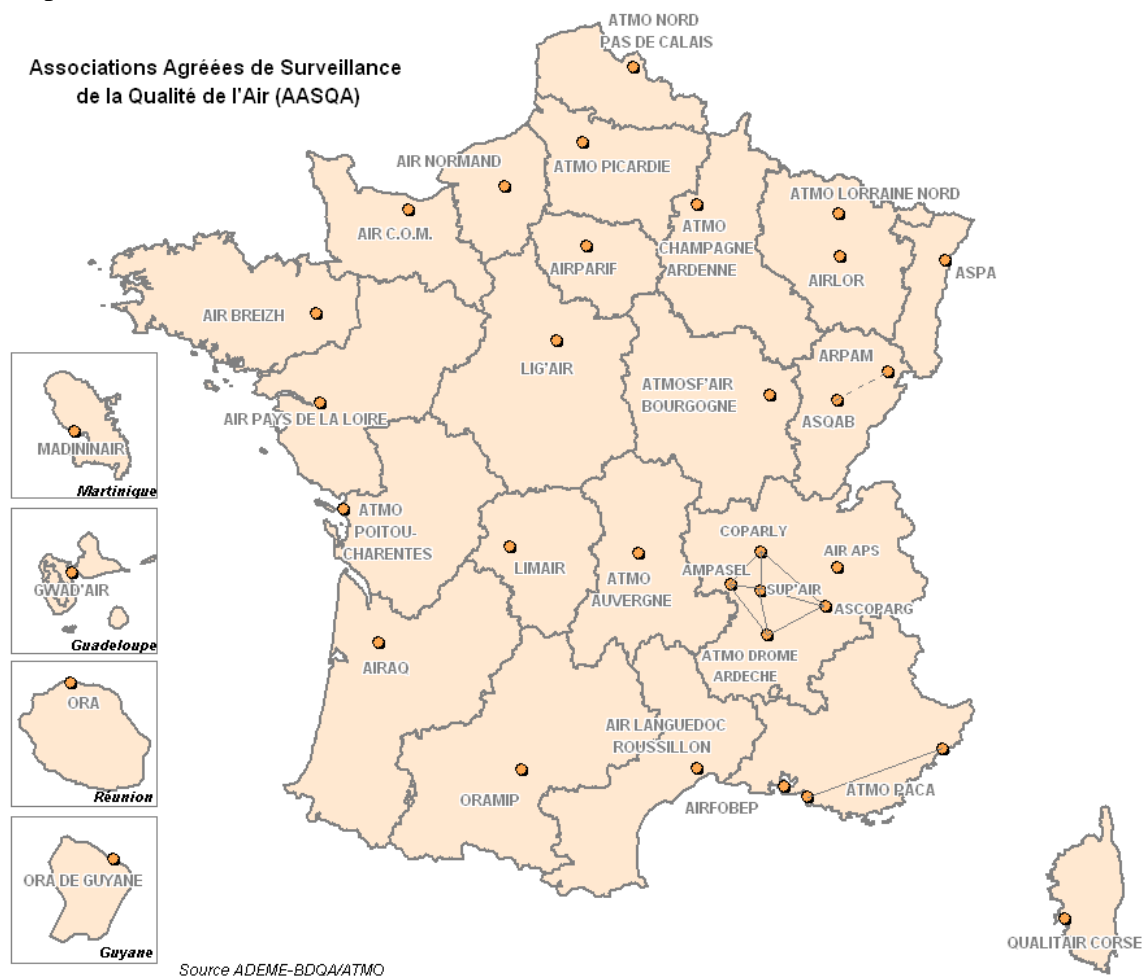
Dans les paragraphes qui suivent, nous présentons successivement les informations collectées relatives aux évolutions des oxydes d'azote (NO, NO₂ et NO_x) à la fois en site de proximité au trafic et en site de fond, ainsi que les hypothèses posées pouvant justifier ces évolutions amenant ainsi à identifier, quand cela est possible, une contribution des émissions primaires de NO₂ liées au trafic routier.

Un intérêt particulier a ensuite été porté aux niveaux de NO₂ rencontrés dans l'habitacle de véhicules légers insérés dans le trafic. Ce micro-environnement représente en effet un lieu d'exposition qui peut s'avérer non négligeable au regard du temps que la population générale ou professionnelle peut y passer. Deux études françaises récentes mesurant le NO₂ dans l'habitacle de véhicules insérés dans le trafic ont été utilisées.

3.2 Analyse globale des données de surveillance françaises

3.2.1 Introduction

En application des directives européennes sur l'air ambiant et de la loi sur l'air et l'utilisation rationnelle de l'énergie (LAURE) une surveillance permanente des concentrations d'oxydes d'azote et d'autres polluants dans l'air ambiant, est assurée pour le compte de l'Etat par des associations agréées pour la surveillance de la qualité de l'air (AASQA). Cette surveillance s'exerce sur l'ensemble des grandes agglomérations et l'agrément des associations est assuré par le ministère de l'écologie et du développement durable tandis que l'ADEME a en charge la coordination technique de ce dispositif.



(Source : Ademe)

Figure 19 : Localisation des associations agréées pour la surveillance de la qualité de l'air

Les équipements et les sites de mesures des AASQA reposent sur des préconisations techniques communes en vue de répondre de manière harmonisée aux obligations nationales ou européennes. La technique de surveillance des oxydes d'azote repose pour sa part sur la mesure de l'énergie lumineuse produite par réaction du monoxyde d'azote avec de l'ozone (chimiluminescence).

Cette émission est proportionnelle à la concentration en monoxyde d'azote. La mesure du dioxyde d'azote est effectuée par différence après conversion des oxydes d'azote en monoxyde d'azote dans un four à catalyse et à haute température.

Les stations fixes de surveillance sont définies suivant une classification établie par l'ADEME et les AASQA. Certains sites sont en effet plus spécifiquement dédiés à une caractérisation de la qualité de l'air à petite échelle et dans le proche environnement de certaines sources de pollution (stations de proximité au trafic, stations industrielles), alors que d'autres visent plutôt une description de la qualité de l'air sur une échelle plus étendue (stations urbaines et périurbaines dites « de fond »).

3.2.2 Valeurs limites de qualité de l'air pour le NO₂

Afin de protéger la santé humaine, la [directive 1999/30/CE](#) du 22 avril 1999 fixe des valeurs limites pour les concentrations de dioxyde d'azote et d'oxydes d'azote à respecter au plus tard en 2010 :

- Valeurs limites horaires : **200 µg/m³**, à ne pas dépasser plus de 18 fois au 1^{er} janvier 2010 (en 2005, la valeur limite est fixée à 250 µg/m³).
- Valeur limite annuelle : **40 µg/m³** (en moyenne annuelle) à respecter au 1^{er} janvier 2010.

Note : Ces seuils sont assortis d'une marge de dépassement, calculée en % de la valeur limite. Cette tolérance décroît de manière linéaire chaque année à partir du 1^{er} janvier 2001.

En 2005, 1,6% des stations dépassaient plus de 18 fois la valeur limite de 200 µg/m³ en moyenne horaire prévue pour 2010 ; et 13% des stations dépassaient la moyenne annuelle de 40 µg/m³. Les dépassements s'observent principalement à proximité des axes de circulation et plutôt en hiver (IFEN, 2007).

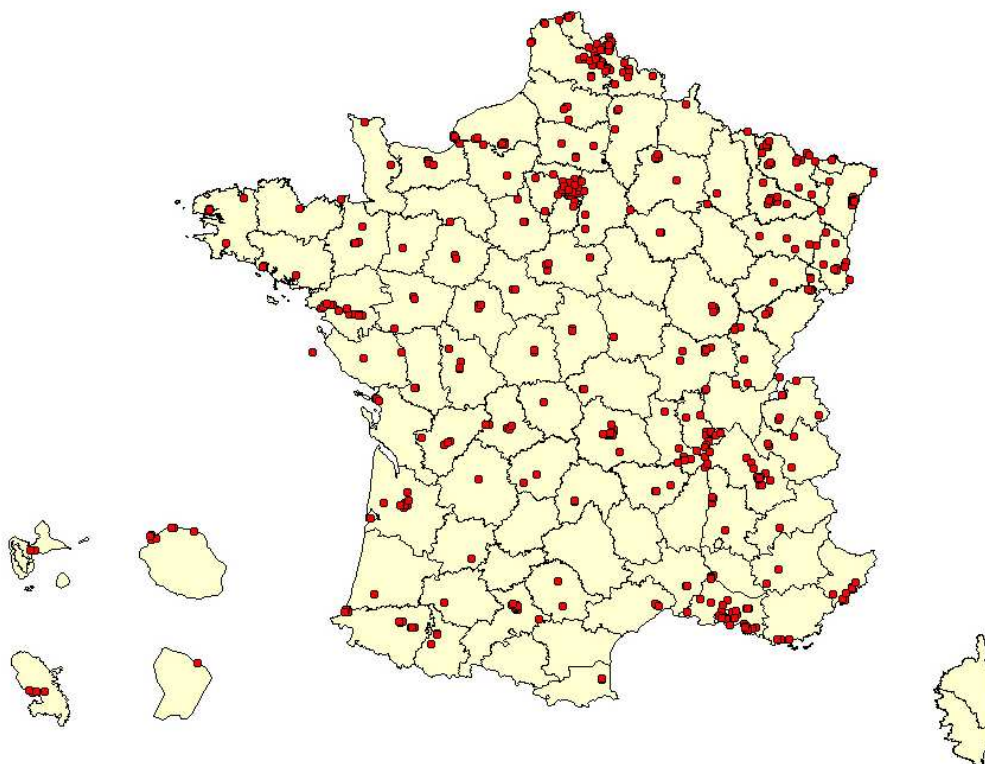
3.2.3 Matériel et méthodes

Pour ce premier niveau d'analyse, les mesures d'oxydes d'azote de divers types de stations des AASQA ont été utilisées : celles des stations «trafic», des stations «urbaines de fond» et des stations «périurbaines de fond». Par définition, les stations «trafic» sont situées au voisinage d'axes de circulation et fournissent des informations sur les concentrations mesurées dans des zones représentatives du niveau maximum d'exposition auquel la population, située en proximité d'une infrastructure routière, est susceptible d'être exposée. De par leur localisation ces stations sont donc très majoritairement influencées par les émissions polluantes liées au trafic automobile de proximité, mais une partie des polluants mesurés peut provenir également d'autres sources de pollution (chauffages et autres foyers fixes de combustion) et de phénomènes d'advection. Il faut noter également que bien que classifiées «trafic», et répondant à des critères semblables, les stations de proximité automobile ne sont pas dédiées en premier lieu au suivi des caractéristiques des émissions des automobiles, leur finalité demeurant, comme indiqué, la caractérisation de niveaux d'exposition à la pollution atmosphérique générale en vue de veiller au respect des directives européennes sur l'air ambiant. Pour cette raison et celle évoquée précédemment ceci rend d'emblée difficile la recherche d'un effet non équivoque de la seule diésélisation du parc ou des technologies de dépollution sur l'évolution du ratio NO₂/NO_x dans l'air ambiant.

Les sites «urbains de fond» et «périurbains de fond» quant à eux, permettent de disposer d'informations sur la qualité de l'air à l'échelle d'agglomérations ou de leur périphérie, et d'appréhender ainsi des phénomènes issus d'un plus large spectre d'activités émettrices d'oxydes d'azote que la circulation automobile (foyers fixes de combustion, etc). Au total, les données de 60 stations «trafic» et les données de 212 sites «urbains de fond» et 65 sites «périurbains de fond» ont

été utilisées. Notons que les sites «urbains de fond» et «périurbains de fond» ont été ensuite regroupés pour cette analyse sous le terme «urbain» car elles sont jugées représentatives de la qualité de l'air globale des agglomérations étudiées. Afin de disposer d'un long historique les données disponibles depuis 1998 ont été extraites de la base de données de qualité de l'air (BDQA) gérée par l'ADEME et alimentée à partir des mesures des AASQA. La Figure 20 fournit le positionnement des diverses stations de mesures de NO_x et la Figure 21 illustre le nombre de sites utilisés pour l'étude en fonction des années. Ce nombre n'est pas constant car entre 1998 et 2003, la surveillance des NO_x par les AASQA s'est notablement développée.

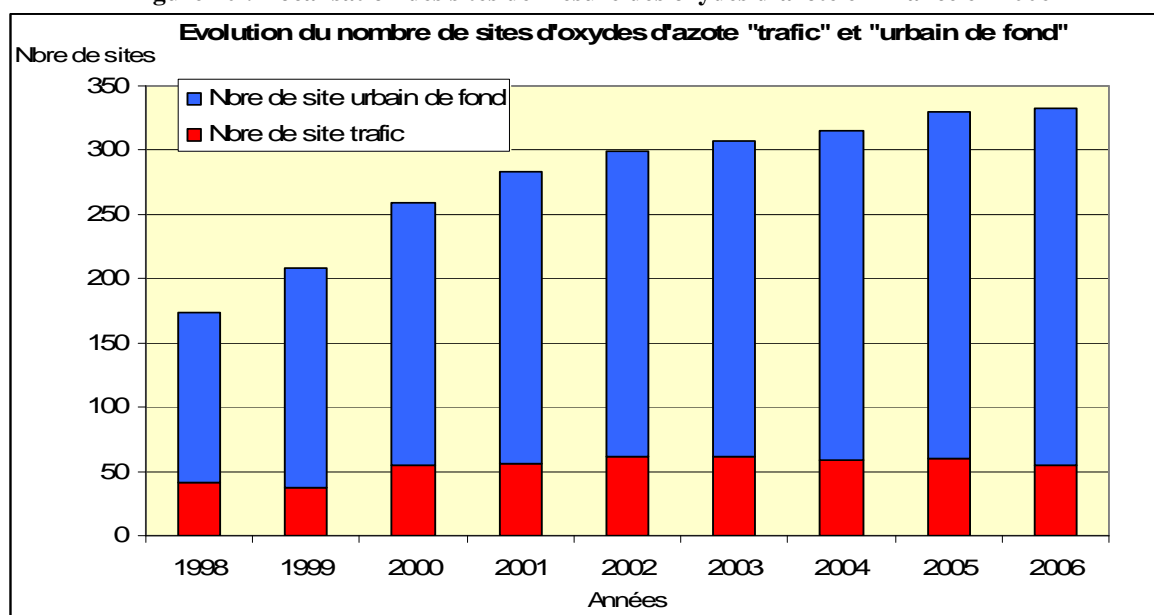
Localisation des sites mesurant le dioxyde d'azote



source ADEME-BDQA/ATMO

(Source : Ademe)

Figure 20 : Localisation des sites de mesure des oxydes d'azote en France en 2006



(Source : Ademe)

Figure 21 : Evolution du nombre de sites utilisés pour l'analyse

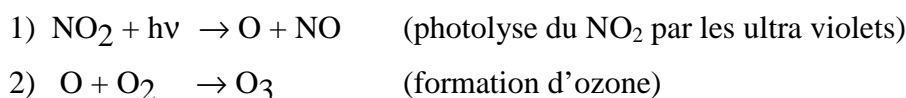
3.2.4 Evolution des concentrations d'oxydes d'azote (NO, NO₂, NO_x) dans l'air ambiant et discussion

Le tableau et les figures suivantes montrent l'évolution des moyennes annuelles des oxydes d'azote sur divers types de sites de 1998 à 2006, obtenue sur un parc dynamique de stations de mesure. Il apparaît une tendance à la baisse relativement régulière des moyennes annuelles en oxydes d'azote dans l'air ambiant depuis 1998. Logiquement, les concentrations sont plus élevées sur les sites «trafic» du fait de la proximité des émetteurs que constituent les véhicules routiers.

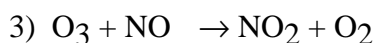
Enfin, si l'on considère plus précisément les évolutions sur site trafic d'une part, et sur site urbain de fond d'autre part, des différences peuvent être notées concernant l'évolution du dioxyde d'azote (NO₂) : si en effet, sur site urbain de fond, on observe pour ce composé une baisse tendancielle des concentrations mesurées depuis 1998, cette tendance à la baisse des moyennes annuelles en situation de proximité est beaucoup moins marquée, et les faibles écarts observés sur ces niveaux moyens annuels peuvent également être interprétés comme une relative stagnation du dioxyde d'azote à proximité du trafic routier.

On note par ailleurs, en particulier sur site urbain de fond, une hausse particulière des oxydes d'azote en 2003, suivie d'une tendance à la baisse par la suite. Cet événement est vraisemblablement attribuable à la canicule de l'été 2003 qui s'est accompagnée d'une pollution par l'ozone exceptionnelle tant par sa durée que par son étendue, tant en France qu'en Europe, mais aussi par des niveaux élevés d'oxydes d'azote et de particules fines.

Les concentrations de dioxyde d'azote sont en effet pour partie dépendantes de processus photochimiques liés à l'ozone qui se forme dans la troposphère, sous l'effet du rayonnement solaire, à partir des principales réactions suivantes :



L'ozone pouvant à son tour réagir sur le monoxyde d'azote pour reformer du dioxyde d'azote :



Au final, bien que la réaction 1 consomme du dioxyde d'azote, celui-ci peut s'accumuler dans les atmosphères riches en ozone par la réaction 3, et par d'autres réactions se produisant en atmosphère polluée à partir d'espèces radicalaires telles que HO₂ et RO₂ provenant elles-mêmes de processus de dégradation photochimiques des composés organiques volatils (COV) :

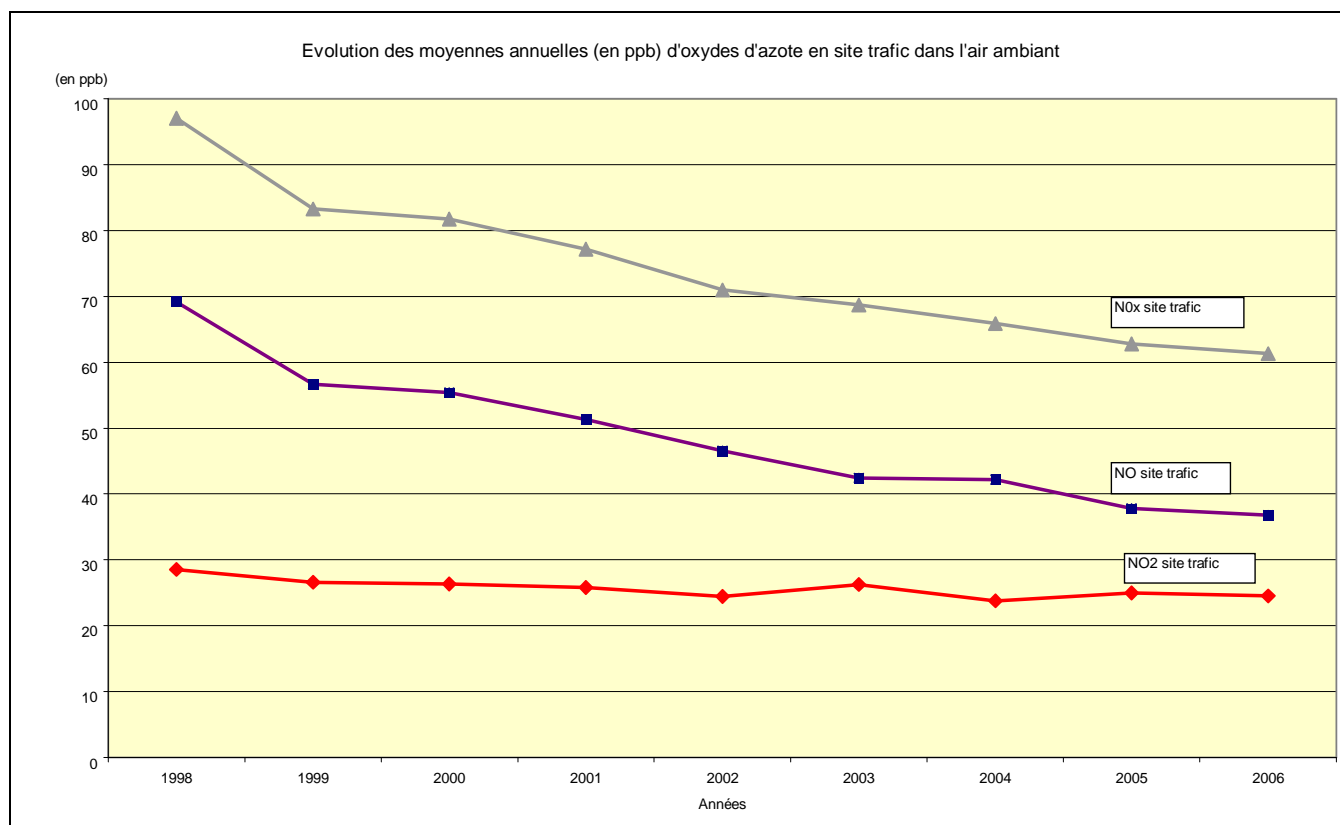


Ces diverses réactions sont fortement dépendantes de l'ensoleillement et peuvent convertir progressivement le NO en NO₂. Elles influent par conséquent sur le rapport NO₂/NO_x dans l'air ambiant, notamment lors des périodes ensoleillées. On verra dans la suite du rapport que les corrélations observées entre NO, NO₂, et O₃ sur les sites de mesure des réseaux de surveillance attestent du fait que la titration de l'ozone par le NO se manifeste déjà en sites trafic et qu'elle peut influencer par conséquent sur le rapport NO₂/NO_x et les niveaux de NO₂ au voisinage immédiat de ces sites.

Tableau II : Evolution des moyennes annuelles d’oxydes d’azote en France (µg/m³), sur la base d’un échantillon de stations évolutif

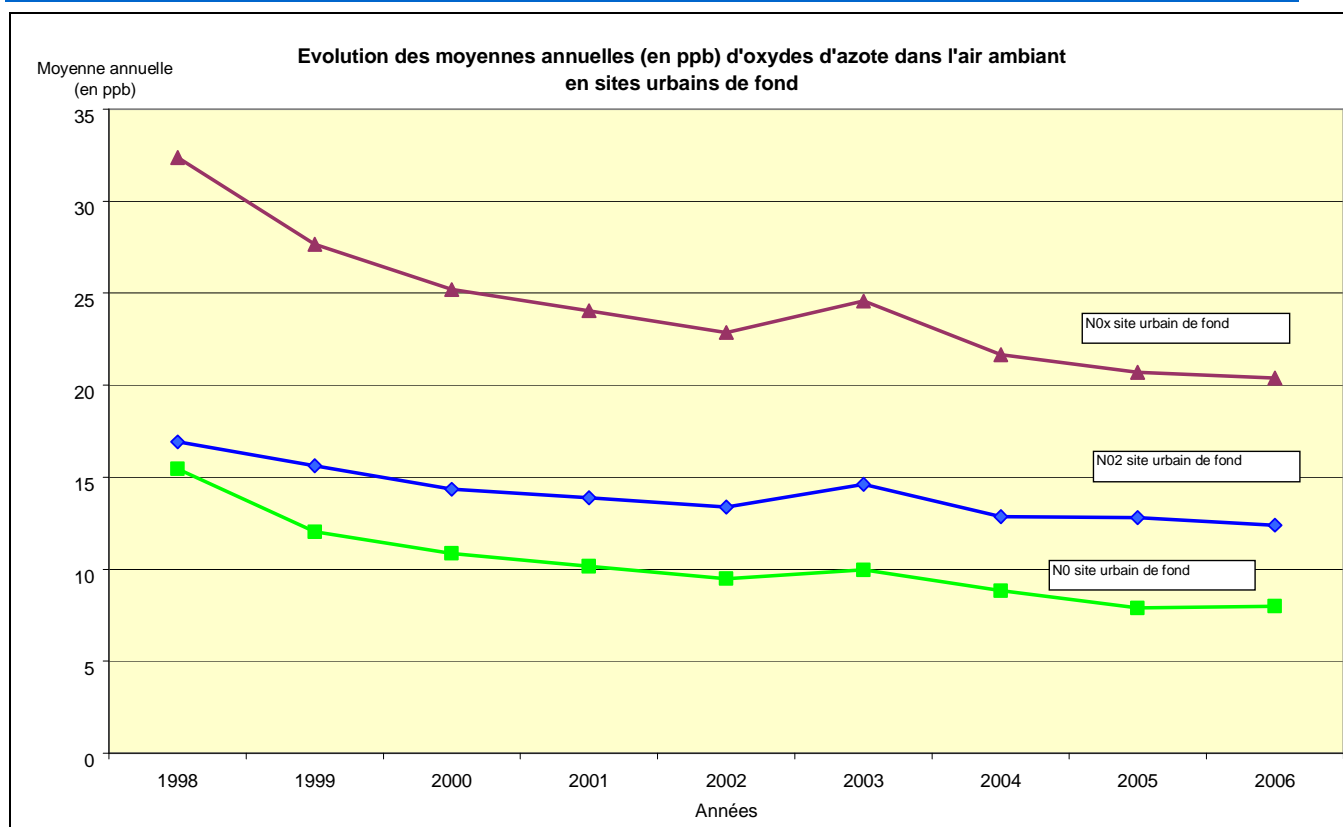
Année	1998	1999	2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006
NO ₂ (sites trafic)	54,5	52	50	50	48	51	47	49	48,5
NO ₂ (sites urbains et périurbains)	32	30	28	27	26	28,5	25	25	24
NO (sites trafic)	85	71	69	64	58	53	53	50	49
NO (sites urbains et périurbains)	19	15	14	13	12	12	11	10	10
NOx (sites trafic)	110	97	95	77	71	85	80	79	77
NOx (sites urbains et périurbains)	45	40	36	35	33	36	32	31	30

Note: 1 ppb NO = 1,248 µg/m³ NO et 1 ppb NO₂ = 1,913 µg/m³ NO₂ (20°C et 1013,2 hPa)



(Source : Ademe)

Figure 22 : Evolution des moyennes annuelles d’oxydes d’azote (NO, NO₂, NO_x) en site trafic en France (ppb), sur la base d’un échantillon de stations évolutif



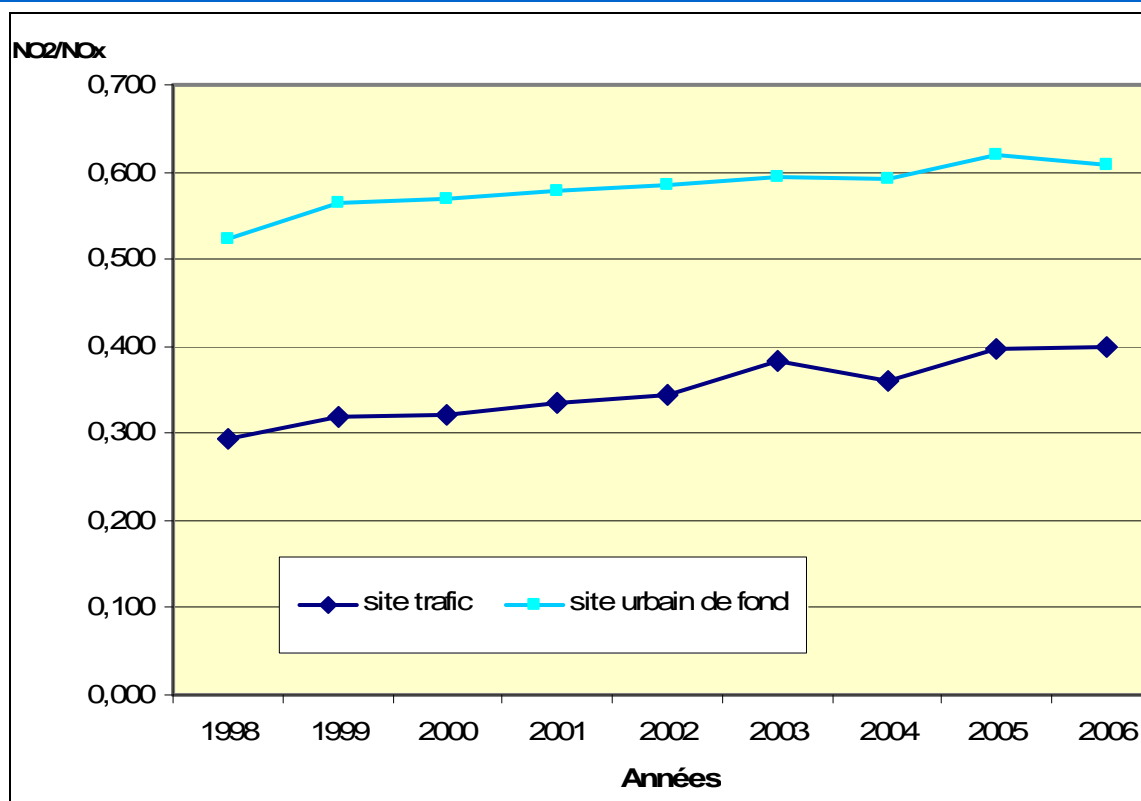
(Source : Ademe)

Figure 23 : Evolution des moyennes annuelles d'oxydes d'azote en site urbain de fond en France (ppb), sur la base d'un échantillon de stations évolutif

3.2.5 Evolution du ratio NO₂/NO_x dans l'air ambiant et discussion

Tel que présenté dans le chapitre précédent, avec l'introduction des catalyseurs sur les véhicules diesel en 1996, une augmentation du ratio NO₂/NO_x à l'émission s'observe nettement. Compte tenu de cette observation, il est apparu opportun d'examiner l'évolution de ce ratio dans l'air ambiant.

La Figure 24 montre l'évolution de ce rapport sur les sites «trafic» et «urbain» en France depuis 1998. Il apparaît une nette tendance à la hausse de ce rapport, sur l'ensemble des sites. Ce phénomène peut découler de l'évolution des émissions de NO et NO₂ par suite notamment de la diésélisation du parc et des technologies de post traitement des émissions mises en œuvre, de processus photochimiques et des facteurs météorologiques jouant un rôle dans les processus de conversion du NO en NO₂ (ensoleillement, etc). On note aussi que le rapport NO₂/NO_x est plus élevé en site urbain qu'en site trafic, traduit également le fait, qu'au-delà de l'influence du seul ratio NO₂/NO_x à l'émission et près de la source trafic, ce ratio, en situation de fond, est aussi influencé par les processus chimiques décrits précédemment. Comme ces processus, qui conduisent à une conversion du NO en NO₂, se produisent progressivement lors du transport des masses d'air par les vents, il en résulte, toutes choses égales par ailleurs, un rapport NO₂/NO_x qui tend à augmenter au fur et à mesure que l'on s'éloigne des sites « trafic ».



(Source : Ademe)

Figure 24 : Evolution du ratio NO₂/NO_x calculé à partir des moyennes annuelles en France, sur la base d'un échantillon de stations évolutif

A ce stade, et de manière qualitative, deux hypothèses peuvent donc être formulées pour expliquer cette tendance à la hausse :

- Un effet de la diésélisation du parc et/ou des technologies associées de post traitement des émissions, qui tendent à augmenter le ratio NO₂/NO_x à l'émission par rapport aux véhicules essence ;
- Un effet lié à l'activité photochimique de l'atmosphère, laquelle se caractérise également par une tendance à la hausse des niveaux d'ozone (O₃) sur les sites de surveillance des AASQA (une part de cette hausse pouvant selon certains experts être attribuables aux changements climatique liés à l'accroissement des gaz à effet de serre).

Pour tenter de mieux cerner ces hypothèses, un examen plus détaillé des évolutions du rapport NO₂/NO_x sur trois régions aux caractéristiques assez différentes a été mené. Ces trois régions sont :

- La région Ile de France (IDF), présentant un climat océanique à nuance continentale, et caractérisée notamment par son tissu urbain dense et étendu et une forte circulation automobile ;
- La région littorale de Provence Alpes Côte d'Azur (PACA), très ensoleillée et marquée par des pointes de pollution par l'ozone, ainsi que des émissions industrielles notables ;
- La région Rhône Alpes (RA) caractérisée par une situation géographique médiane par rapport aux régions IDF et PACA.

Les figures suivantes montrent les évolutions du rapport NO₂/NO_x sur ces régions, en période estivale et hivernale.

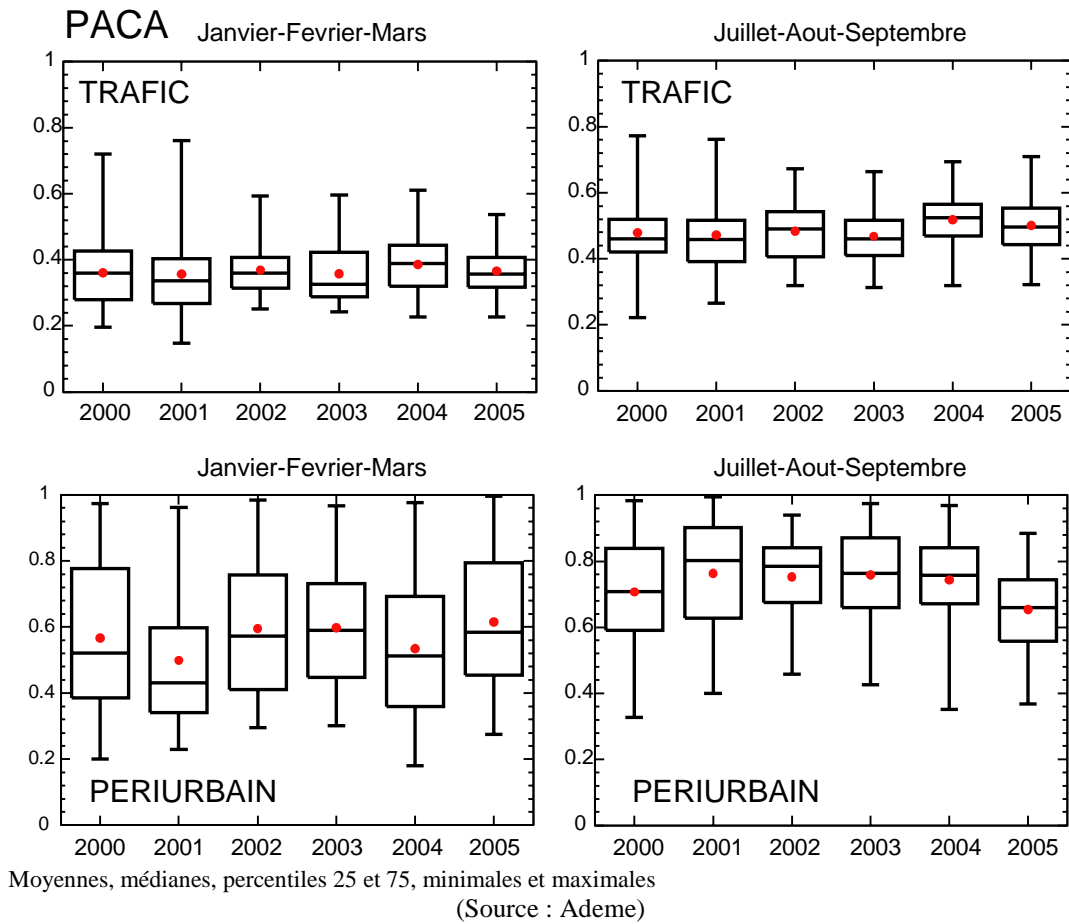


Figure 25 : Rapport NO₂/NO_x des stations « trafic » et « périurbaines » en région PACA

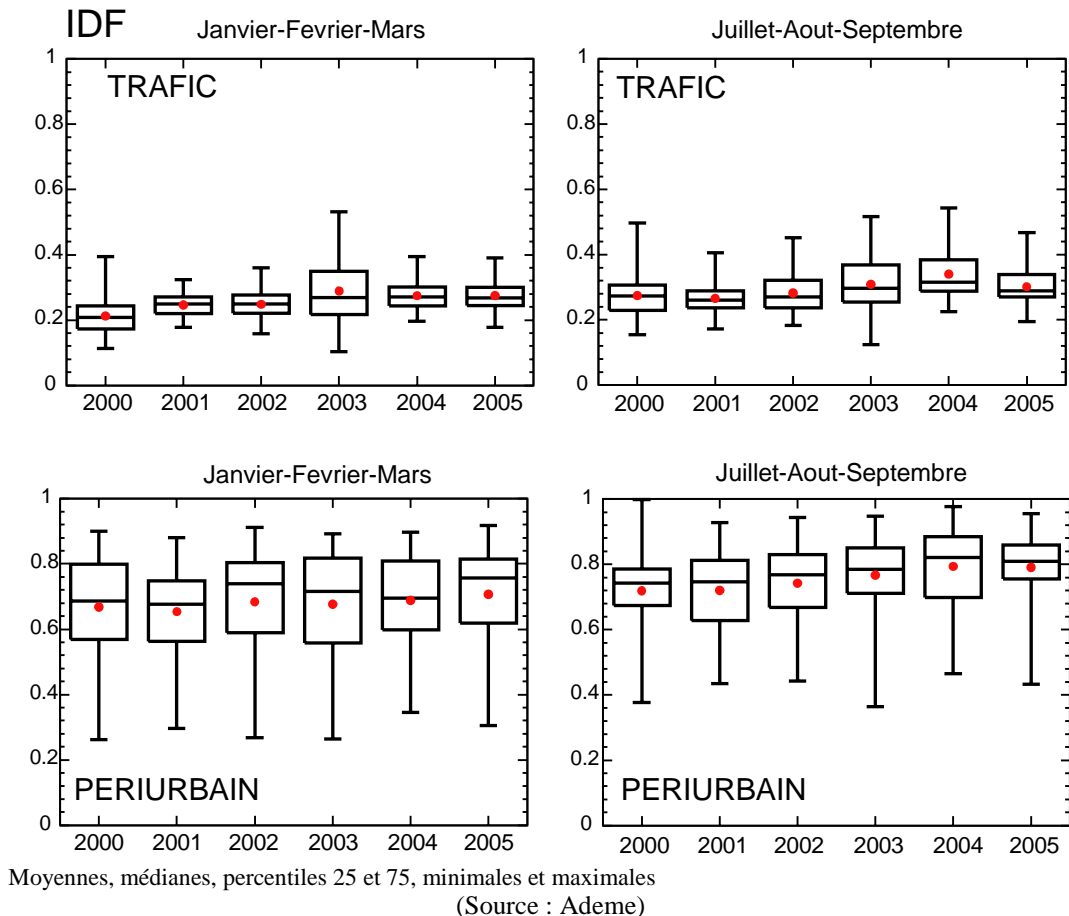


Figure 26 : Rapport NO₂/NO_x des stations « trafic » et « périurbaines » en région Ile-de-France

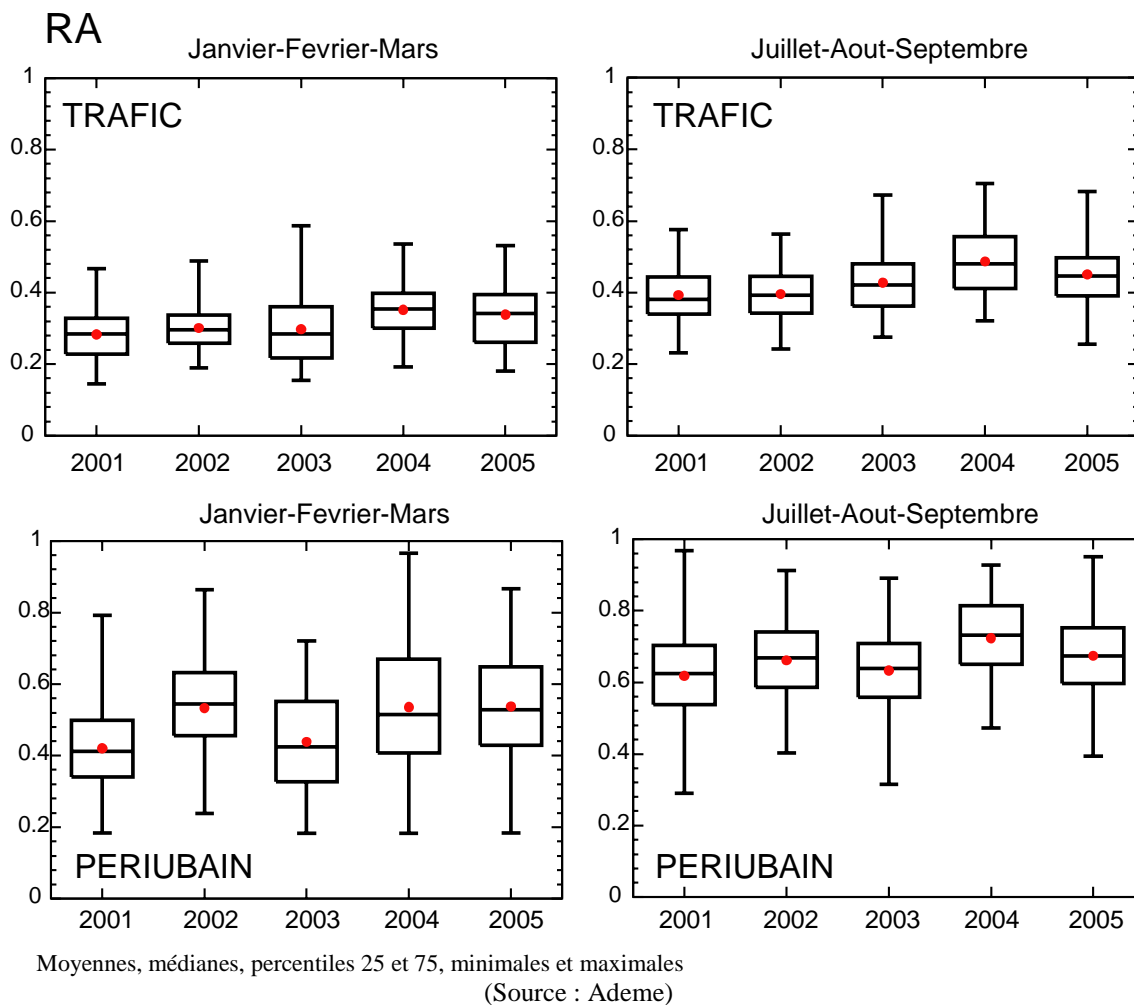


Figure 27 : Rapport NO₂/NO_x des stations « trafic » et « périurbaines » en région Rhône-Alpes

Selon les régions et les saisons le rapport NO₂/NO_x peut présenter une moyenne et surtout une dispersion assez variable, avec une légère tendance à la hausse de certaines médianes et moyennes depuis 2000 (cas de Rhône Alpes), mais une assez forte dispersion des valeurs extrêmes dans le même temps. Cette variabilité du rapport est d'ailleurs plus prononcée en sites urbains ce qui peut sans doute s'expliquer du fait qu'à cette échelle les niveaux d'oxydes d'azote découlent d'un plus large spectre de sources d'émissions (sources mobiles mais aussi sources fixes) ou de phénomènes liés à la météorologie et à la chimie atmosphérique. Le rapport est en général un peu plus élevé en été qu'en hiver sur toutes les régions, et ceci semble attester du rôle de la photochimie sur le rapport NO₂/NO. Globalement il reste toutefois difficile de discerner une tendance nettement interprétable, à la hausse ou à la baisse du rapport, sur l'ensemble de ces régions et chaque type de site.

Il faut noter à nouveau que bien que classifiées « trafic », et répondant à des critères semblables, les stations de proximité automobile ne sont pas dédiées en premier lieu au suivi des caractéristiques des émissions des automobiles, ce qui rend d'emblée difficile une vérification de l'hypothèse relative à la diésélisation du parc et à l'évolution du ratio NO₂/NO_x à l'émission qui y est associée.

3.2.6 Conclusion

Au vu de l'ensemble des informations présentées ci-dessus, il apparaît, au niveau du territoire métropolitain, une tendance nette à la baisse des niveaux moyens annuels d'oxydes d'azote (à la fois de NO, NO₂ et NO_x) mesurés en situation dite « de fond » depuis 1998.

En ce qui concerne les mesures réalisées en situation de proximité au trafic routier, si cette tendance se confirme pour ce qui est des niveaux moyens annuels d'oxydes d'azote (NO_x) et de monoxyde d'azote (NO), une tendance similaire n'est pas observée pour les niveaux de dioxyde d'azote (NO₂), les données pouvant être interprétées comme une relative stagnation de ces niveaux.

L'examen des variations nationales du rapport NO₂/NO_x en proximité du trafic routier et en site de fond montre en revanche une tendance globale à la hausse, mais ce phénomène demeure spatialement variable et il n'est pas apparu de tendance claire et interprétable sur trois grandes régions françaises étudiées.

Compte tenu de ces éléments, il est apparu pertinent au groupe de travail d'investiguer de façon plus ciblée certaines données de surveillance de qualité de l'air. En ce sens, des extractions de données et des analyses spécifiques ont été menées pour différentes stations de proximité au trafic de différentes AASQA.

3.3 Analyse spécifique de données de surveillance françaises ciblées

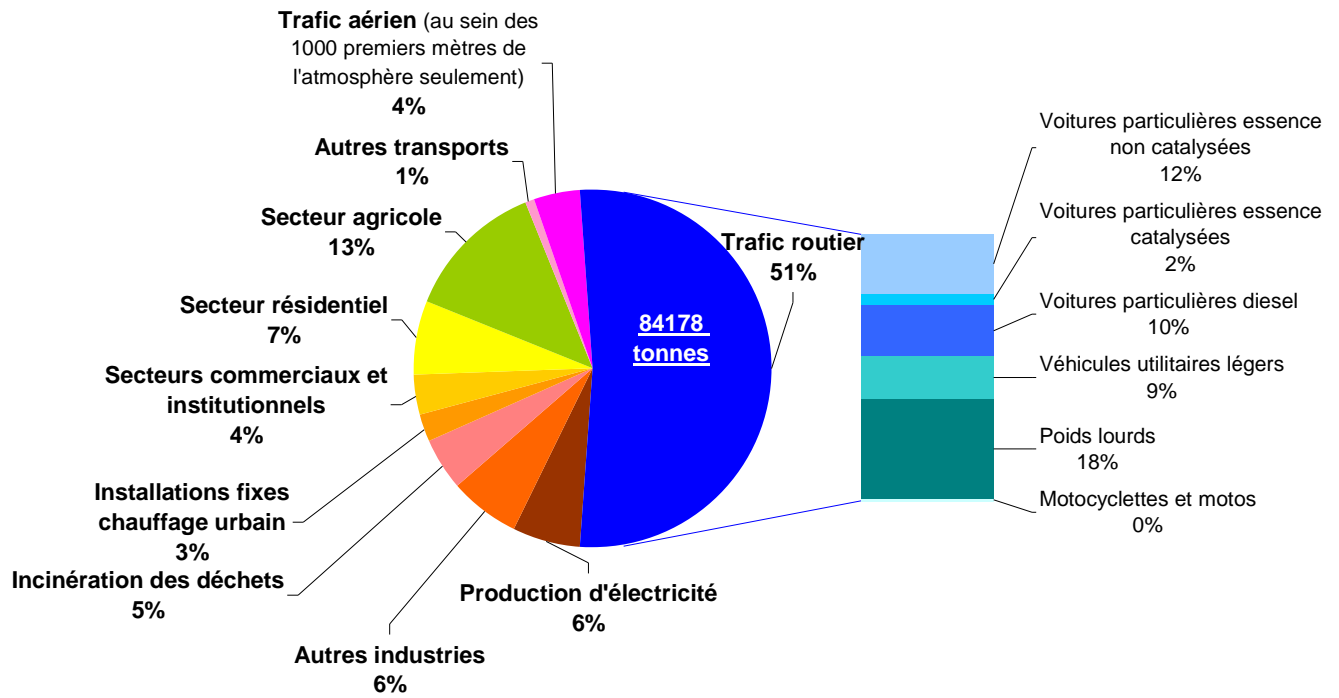
3.3.1 Le cas de l'agglomération parisienne

3.3.1.1 Préambule

Les données alimentant le chapitre 3.3.1 ont été présentées au groupe de travail par Mr Philippe Lameloise, Directeur d'Airparif (association agréée de surveillance de la qualité de l'air en région Ile-de-France), à l'occasion d'une audition menée dans le cadre de l'instruction de cette saisine.

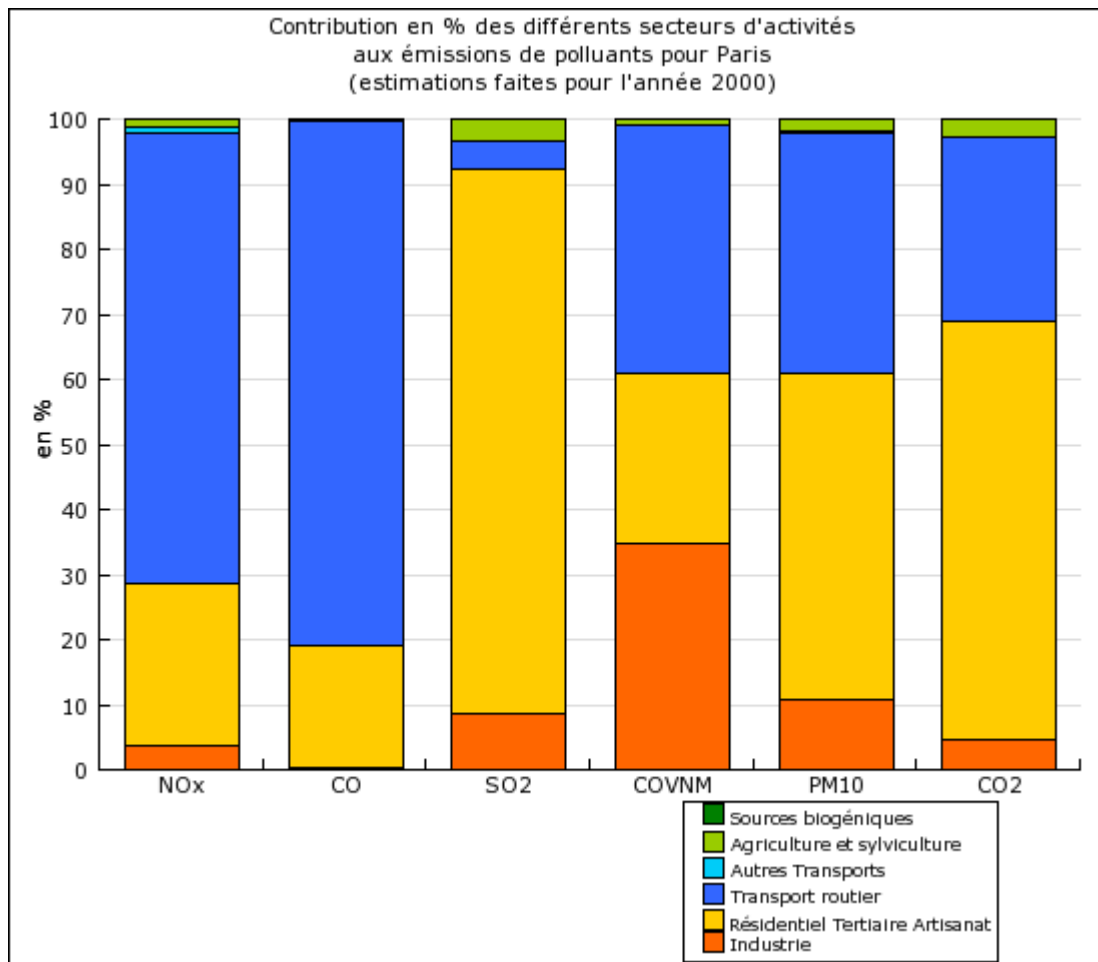
3.3.1.2 Introduction

La région Ile-de-France et plus particulièrement l'agglomération parisienne est caractérisée par une forte densité des émissions et des émissions du trafic prépondérantes. Les deux figures suivantes présentent les contributions respectives de différents secteurs aux émissions d'oxyde d'azote au niveau de la région et au niveau de Paris.



(Source : Cadastre 2000 Airparif / Drire Ile-de-France)

Figure 28 : Emissions de NOx de la région Ile-de-France (161 kilotonnes) en 2000



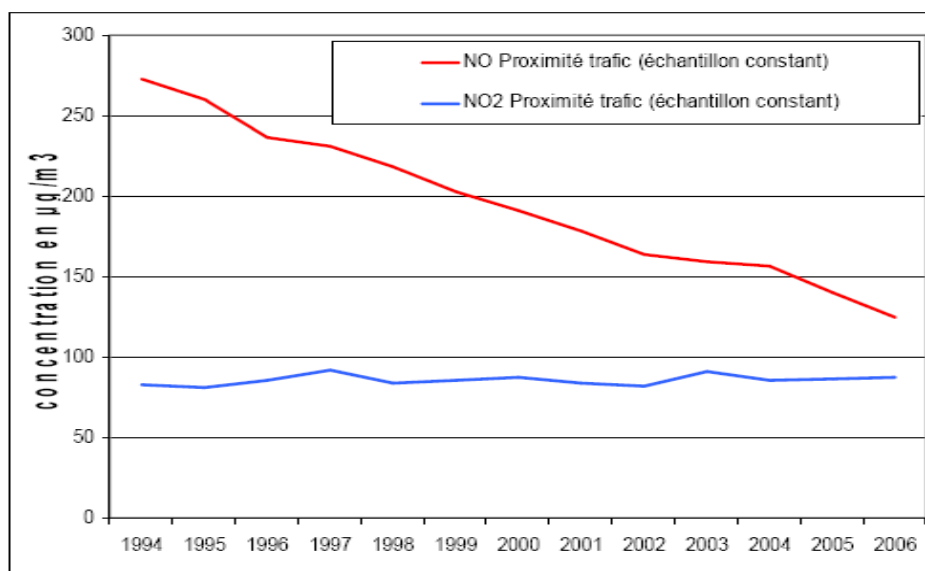
(Source : Airparif)

Figure 29 : Contribution en % des différents secteurs d'activité aux émissions de polluants pour Paris (estimations faites pour l'année 2000)

Il ressort de ces deux figures que le secteur du trafic routier représente le principal contributeur aux émissions d'oxydes d'azote.

Concernant les mesures dans l'air ambiant, les observations faites sur des échantillons constants de sites « trafic » et de sites « de fond » en agglomération parisienne depuis les années 1990, montrent les éléments suivants :

- Les niveaux d'oxydes d'azote (NO_x, NO et NO₂) en sites de fond sont en baisse ; cette observation rejoint l'analyse précédente menée sur les sites de fond à l'échelle nationale ;
- Les stations de proximité au trafic présentent des concentrations en NO et en NO_x en constante diminution depuis 1994, alors que sur la même période, les niveaux de NO₂ stagnent (Figure 30). Il est à noter par ailleurs que l'objectif de qualité fixé à 40 µg/m³ de NO₂ en moyenne annuelle (correspondant à la valeur limite à respecter à partir de 2010) est loin d'être respecté au niveau des stations de proximité au trafic du réseau de mesure francilien.



(Source : Airparif)

Figure 30 : Concentration en NO et NO₂ sur un échantillon constant de cinq stations trafic de 1994 à 2006

Ces observations conduisent à s'interroger sur cette différence d'évolution entre monoxyde d'azote et dioxyde d'azote au niveau des sites « trafic », et sur les hypothèses pouvant l'expliquer.

3.3.1.3 La notion « d'impact Trafic », observations et discussion

On peut en première approche considérer que le niveau de pollution en NO₂ mesuré en situation de proximité du trafic routier Ct est la somme de plusieurs composantes :

- un niveau « de fond » de NO₂ sur l'agglomération (Cf) appréhendable par les mesures des stations urbaines ou périurbaines de fond,
- auquel s'ajoute l'impact (« le surplus »), noté I , de pollution lié d'une part aux émissions primaires de NO₂ (émissions à l'échappement) par le trafic sur l'axe à proximité duquel la station est implantée (contribution notée P), et d'autre part à la transformation locale d'une partie du NO primaire en NO₂, via notamment l'ozone (contribution du NO₂ secondaire notée S).

Il en résulte que le NO₂ mesuré en site trafic peut s'exprimer ainsi :

$$Ct_{NO_2} = Cf_{NO_2} + P_{NO_2} + S_{NO_2}$$

Ct_{NO_2} NO₂ total mesuré en site trafic

Cf_{NO_2} niveau « de fond » urbain en NO₂

P_{NO_2} NO₂ dû aux émissions primaires du trafic (émissions à l'échappement)

S_{NO_2} NO₂ dû à la transformation du NO primaire en NO₂ au niveau du site trafic et par chimie atmosphérique

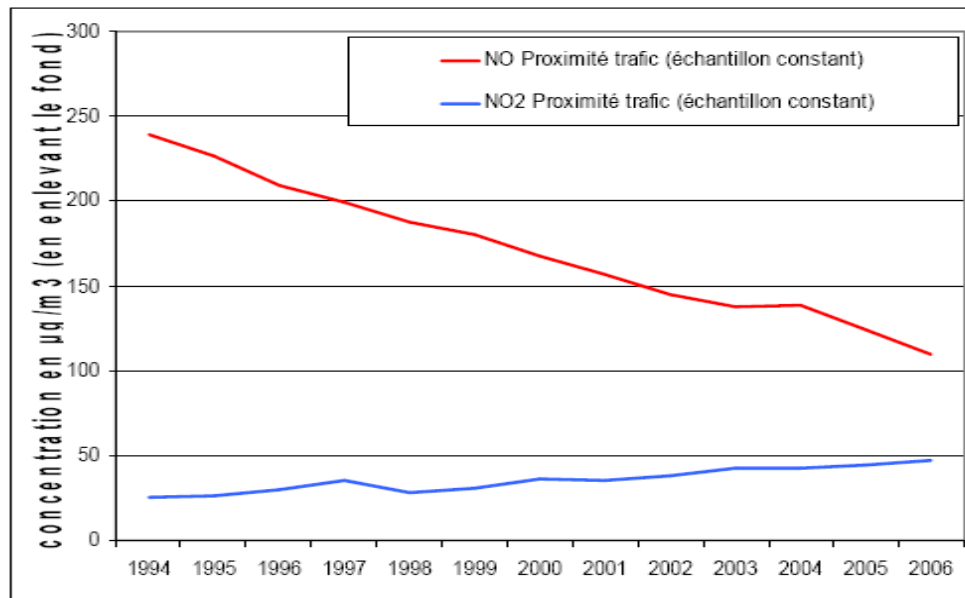
$$I_{NO_2} = P_{NO_2} + S_{NO_2}$$

I_{NO_2} impact de pollution imputable de façon primaire et secondaire au trafic routier

Soit :
$$I_{NO_2} = Ct_{NO_2} - Cf_{NO_2}$$

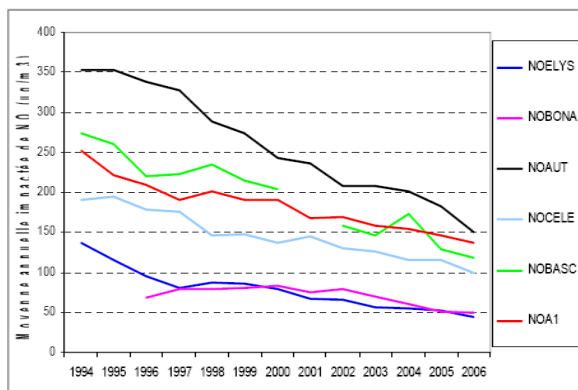
De même pour NO :
$$I_{NO} = Ct_{NO} - Cf_{NO}$$

Ainsi, en retranchant pour chaque année aux niveaux relevés en situation de proximité au trafic, le niveau moyen de fond représentatif de l'agglomération parisienne, un impact lié au trafic de proximité peut être estimé. Les Figures 31 et 32 illustrent pour la période 1994 - 2006, l'évolution des impacts I_{NO} et I_{NO_2} pour un échantillon constant de sites de proximité puis pour 6 stations « trafic » du réseau de surveillance. Le Tableau III associé permet en outre de décrire les caractéristiques du trafic sur les axes concernés.

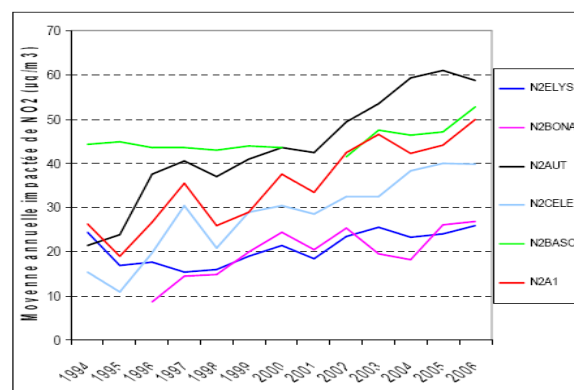


(Source : Airparif)

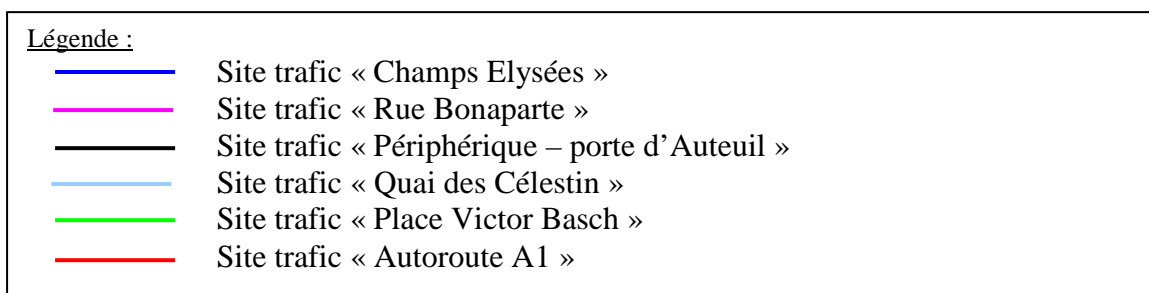
Figure 31 : Impact du trafic I_{NO} et I_{NO_2} sur un échantillon constant de cinq stations trafic de 1994 à 2006



(a) monoxyde d'azote (NO)



(b) dioxyde d'azote (NO₂)



(Source : Airparif)

Figure 32 : Impact trafic I_{NO} et I_{NO_2} (µg/m³) au niveau de l'ensemble des sites trafic de 1994 à 2006

Tableau III : Trafic moyen journalier annuel observé sur les axes équipés de station de proximité

Nom du Site de proximité	Implantation	TMJA*	Année	Source
AVENUE DES CHAMPS-ELYSEES	Avenue des Champs-Élysées	70 290	2004	Mairie de Paris
RUE BONAPARTE	Rue Bonaparte (rue canyon)	9 100	2006	Mairie de Paris
Bd PERIPHERIQUE AUTEUIL	Bd périphérique porte d'Auteuil	246 439	2004	Mairie de Paris
QUAI DES CELESTINS	Quai des Célestins	53 693	2004	Mairie de Paris
PLACE VICTOR BASCH	Place Victor Basch	108 000	2004	Mairie de Paris
AUTOROUTE A1 - SAINT-DENIS	Autoroute A1	208 793	2004	DDE93
AUTOROUTE A1 - SAINT-DENIS	Av du Président Wilson - RN1	20 381	2004	DDE93

* Trafic moyen journalier annuel (véh/j)

Il apparaît sur ces graphiques une diminution de l'impact du trafic I_{NO} pour le NO, alors que pour le NO₂, c'est une augmentation du niveau impacté I_{NO2} . Par ailleurs, on observe que I_{NO2} évolue de façon différente en fonction des stations : au niveau des stations « périphérique – porte d'Auteuil » et « autoroute A1 » par exemple, l'augmentation est beaucoup plus importante qu'au niveau des stations de la « place Victor Basch » et de la « rue Bonaparte » par exemple.

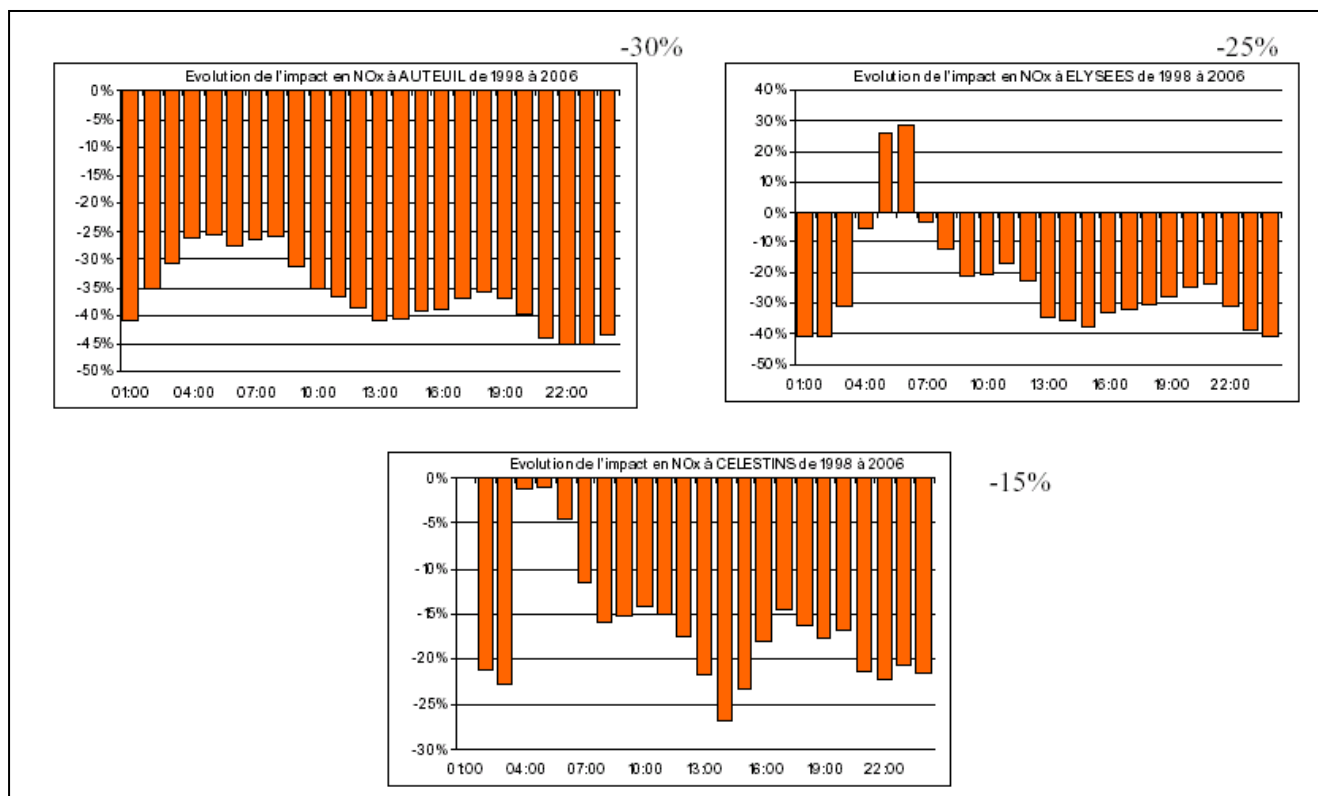
Les hypothèses pouvant être avancées afin d'expliquer cette différence d'évolution entre NO et NO₂ sur site de proximité au trafic sont les suivantes :

- Une modification du comportement des automobilistes : une intensification de trafic l'après-midi par exemple pourrait entraîner des émissions d'oxydes d'azote plus importantes l'après-midi, période favorable à la formation de NO₂ en raison des concentrations d'ozone ;
- Un changement des conditions chimiques atmosphériques et notamment l'influence des niveaux d'ozone de fond ;
- Une modification du ratio NO₂/NO_x des émissions du trafic.

Hypothèse relative à une modification du comportement des automobilistes :

Un changement des habitudes des automobilistes, entre 1998 et 2006, qui entraînerait plus de trafic l'après-midi pourrait entraîner des émissions d'oxydes d'azote plus importantes l'après-midi, période de la journée propice à la production de NO₂. Cette hypothèse peut être testée par l'étude de l'évolution des comptages horaires du trafic routier entre 1998 et 2006, sur les axes faisant l'objet d'une surveillance des niveaux de pollution de proximité. A défaut de disposer de ces données de comptage, il a été admis que l'impact horaire de NO_x I_{NOx} ($=I_{NO} + I_{NO2}$) permet indirectement d'estimer les émissions liées au trafic routier sur l'axe considéré.

La figure suivante montre, sur trois sites de proximité automobile du réseau de surveillance d'Airparif, l'évolution au cours de la journée des niveaux d'impact de NO_x I_{NOx} entre 1998 et 2006.



(Source : Airparif)

Figure 33 : Evolution au cours de la journée des niveaux d'impact de NO_x I_{NO_x} entre 1998 et 2006 sur 3 stations de proximité au trafic en Ile-de-France

La baisse moyenne de I_{NO_x} sur ces stations trafic s'explique par les progrès technologiques des véhicules (émissions de NO_x en baisse). On observe cependant que l'évolution de I_{NO_x} n'est pas constante au cours de la journée, ceci pouvant traduire une modification du trafic routier sur ces axes. On observe ainsi, tôt le matin, principalement entre 3h00 et 6h00, une stagnation (Quai des Célestins, Porte d'Auteuil) voir une augmentation (Champs Elysées) de I_{NO_x} , malgré la diminution des émissions de NO_x entre 1998 et 2006. Cette observation tend à démontrer, de façon indirecte, un trafic routier plus important en 2006 à cette période de la journée, que celui de 1998.

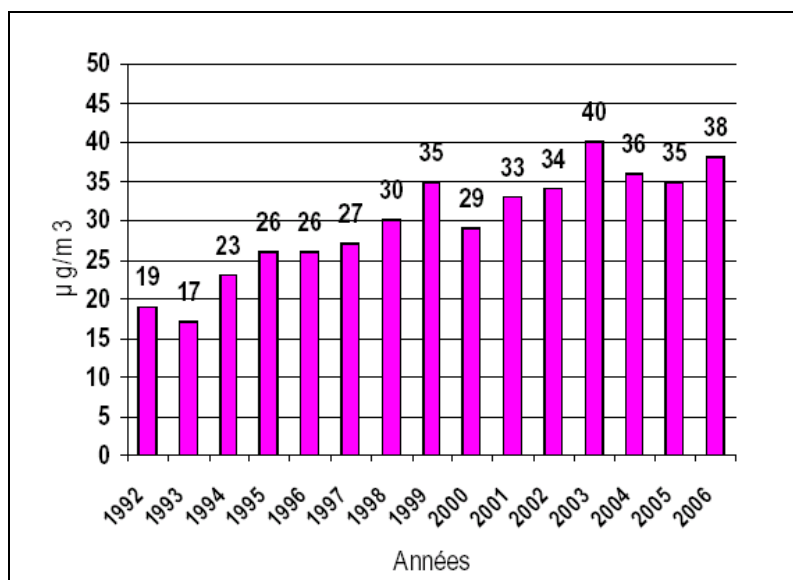
Cependant, pour ce qui est de la plage horaire de l'après-midi, on n'observe pas de telle tendance, ce qui sous-entend que l'hypothèse posée ici ne se vérifie pas et donc que la différence d'évolution entre NO et NO₂ sur site de proximité au trafic n'est pas liée à une modification de comportement des automobilistes.

L'hypothèse relative à une modification du comportement des automobilistes pourrait être vérifiée plus précisément par l'apport de données de comptage du trafic routier.

Hypothèse relative à un effet de la chimie atmosphérique :

Les émissions de NO_x par les automobiles se font sous la forme de NO et de NO₂. Sous l'action de l'ozone (O₃), le NO se transforme rapidement en NO₂. Ainsi, en première approche, si le réservoir d'ozone disponible est plus important, le taux de transformation de NO en NO₂ sera *a priori* plus élevé. Dans ce qui suit, différentes analyses sont proposées pour examiner cette hypothèse.

La Figure 34 montre que depuis le début des années 90, les niveaux d'ozone enregistrés en agglomération parisienne sont en nette augmentation.

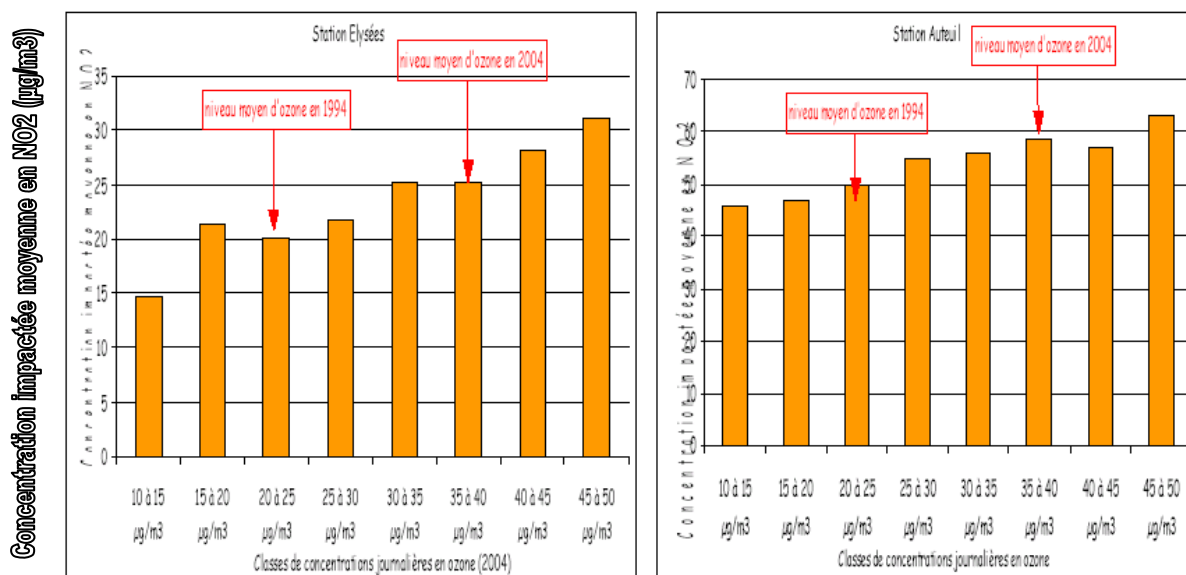


(Source : Airparif)

Figure 34 : Evolution de la concentration moyenne annuelle en ozone dans l’agglomération parisienne (échantillon constant de 3 stations urbaines de fond)

Un premier niveau d’analyse a consisté à évaluer l’influence des concentrations journalières d’ozone sur le niveau journalier de NO₂ en situation de proximité afin de s’affranchir des éventuelles évolutions liées au trafic routier et aux émissions en résultant.

La Figure 35 présente, pour les stations trafic « Champs Elysées » et « Périphérique – Porte d’Auteuil », l’évolution de la variable *I*_{NO₂} moyenne (différence entre le niveau de proximité au trafic et le niveau de fond) pour différentes classes de concentrations journalières d’ozone relevées, et ce pour l’année 2004.



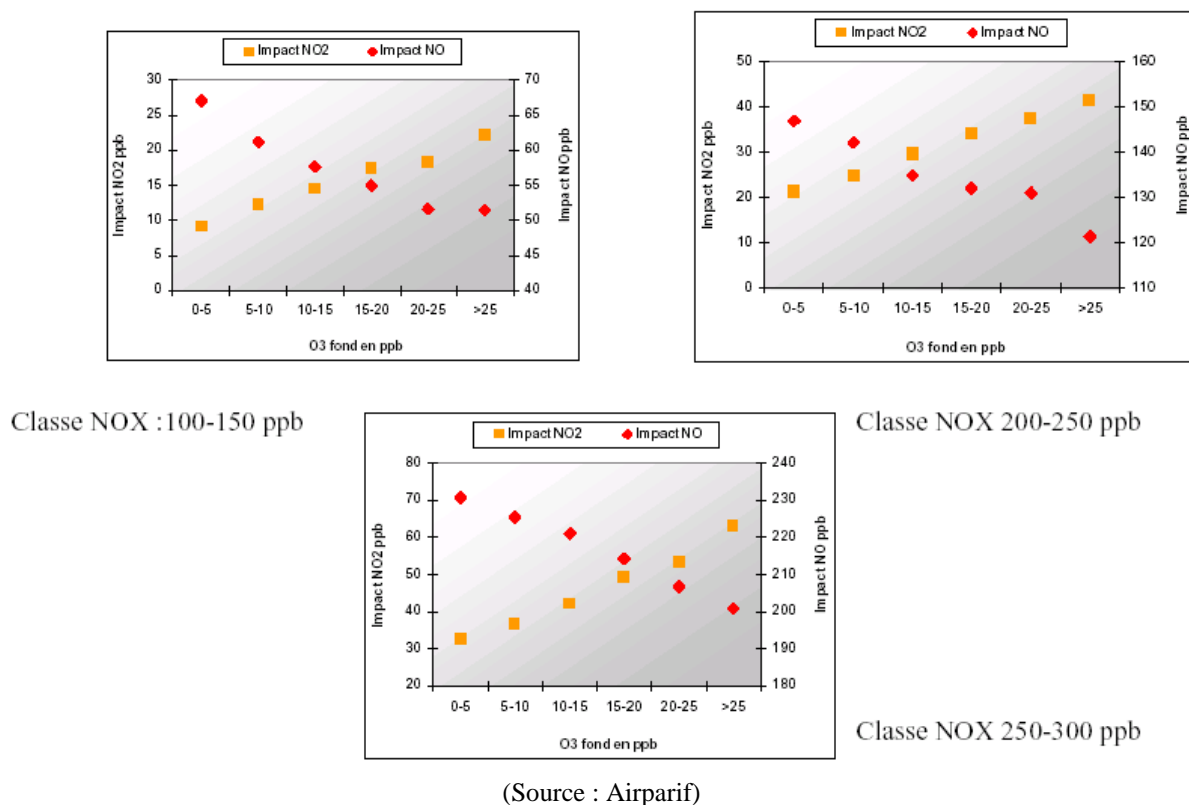
(Source : Airparif)

Figure 35 : Impact *I*_{NO₂} moyen (µg/m³) au niveau de 2 stations de proximité au trafic en fonction des classes de concentration journalière moyenne d’ozone (µg/m³) en 2004

En première approche, il ressort de la Figure 35 que plus le niveau journalier d’ozone de fond est important, plus la variable I_{NO_2} est élevée. Si l’on fait l’hypothèse que cette relation empirique pour l’année 2004 peut s’appliquer aux concentrations annuelles d’ozone présentées en Figure 34, cela démontrerait alors que l’augmentation de l’ozone depuis le début des années 90 est impliquée dans l’augmentation des niveaux d’ I_{NO_2} en situation « trafic ». La chimie atmosphérique est cependant plus complexe, les concentrations d’ozone étant elles-mêmes dépendantes des émissions d’oxydes d’azote au fil du temps.

Un second niveau d’analyse est donc présenté dans les Figures 36 et 37, considérant une période plus courte supposée aux émissions « constantes ». L’analyse qui suit concerne les niveaux horaires d’ozone et d’impact de NO I_{NO} et de NO₂ I_{NO_2} sur une période hivernale (rôle de la photochimie minimisé) pour différentes classes d’impact de NO_x I_{NO_x} (reflétant des classes d’émission du trafic semblables).

La Figure 36 illustre les résultats tels que présentés dans l’étude Airparif, soit des moyennes de données horaires. La Figure 37 tient compte des mêmes données horaires utilisées par Airparif pour la Figure 36, et représente ces données sous forme d’un nuage de points assortie d’une droite de tendance correspondant à une régression linéaire. La présentation des résultats de la Figure 37 permet d’affiner l’évaluation des tendances des niveaux d’ I_{NO} et I_{NO_2} en fonction des niveaux d’ozone de fond, et d’obtenir une appréciation semi-quantitative de ces tendances.



(Source : Airparif)
Figure 36 : Impacts I_{NO} et I_{NO_2} moyens en fonction du niveau d’ozone de fond, pour différentes classes d’impact de NO_x (I_{NO_x}), sur la période du 1^{er} nov. 2004 au 31 mars 2005 (station : Périphérique, porte d’Auteuil)

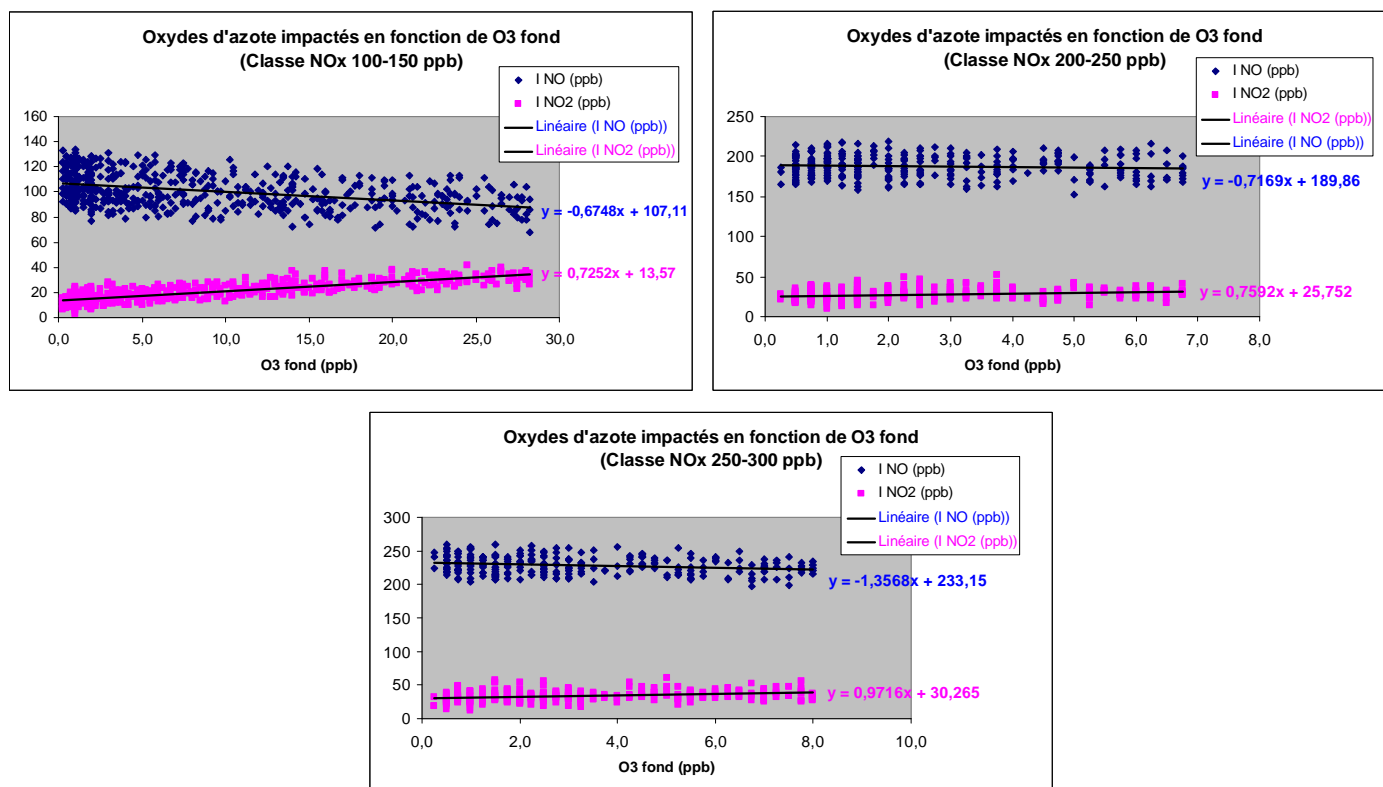


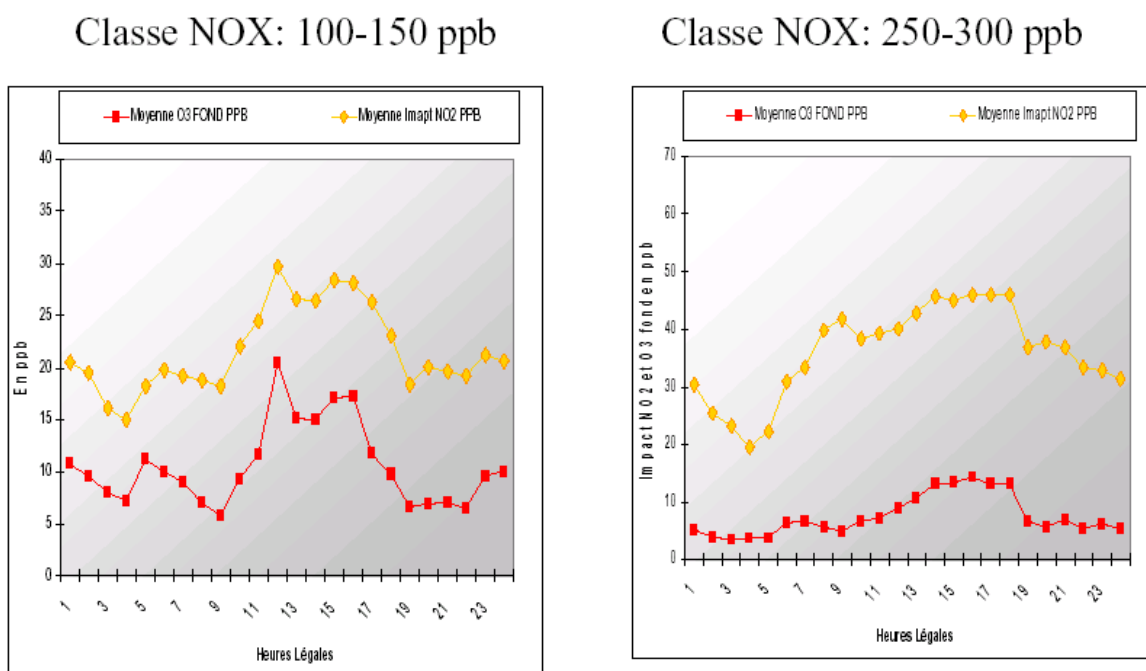
Figure 37 : Impacts I_{NO} et I_{NO2} moyens en fonction du niveau d’ozone de fond, pour différentes classes d’impact de NO_x (I_{NOx}), sur la période du 1^{er} nov. 2004 au 31 mars 2005 (station : Périphérique, porte d’Auteuil)

La Figure 36 montre que, pour différents niveaux d’émission de NO_x (approchés par le biais des classes d’impact de NO_x), plus le niveau d’ozone de fond augmente, plus le niveau impacté de NO₂ augmente. A l’inverse, on observe une baisse de l’impact en NO au fur et à mesure de l’augmentation de l’ozone. Ces deux relations apparaissent linéaires et anti-corrélées. Ces constatations sont conformes à ce qui est attendu des réactions liant les NO_x et l’ozone (cf p.55) et attestent surtout du fait que ces réactions se produisent rapidement suite à l’émission de NO par les pots d’échappement puisqu’elles sont mises en évidence sur les sites « trafic ».

La Figure 37 conduit à une interprétation similaire, avec des tendances linéaires relativement bien anti-corrélées entre I_{NO} et I_{NO2} , pour différents ordres de grandeur d’émission de NO_x (autrement dit, les valeurs absolues des coefficients directeurs des équations de droite de I_{NO} et I_{NO2} sont relativement proches pour une même classe de NO_x).

Par ailleurs, une tendance à l’augmentation de la pente des droites de I_{NO} et I_{NO2} (voir coefficients directeurs des équations de droite) est observée pour des classes de NO_x croissantes. Dans une certaine mesure, cette observation peut refléter l’influence de la réaction de titration du NO par l’ozone. En effet, le NO étant reconnu comme le polluant majoritaire de la pollution aux oxydes d’azote en proximité du trafic routier, plus la classe impact NO_x (I_{NOx}) augmente, plus le NO disponible augmente, donc plus la réaction « $NO + O_3 \rightarrow NO_2 + O_2$ » est favorisée (déplacée vers la droite), conduisant en théorie à une formation accrue de NO₂ et une diminution accrue de NO (observée par l’augmentation de la pente des droites de tendance de I_{NO} et I_{NO2}). On rappellera toutefois que la chimie atmosphérique des NO_x et de O₃ ne peut se résumer à cette seule réaction de titration et dépend d’un système complexe de réactions impliquant notamment les émissions de COV et de CO.

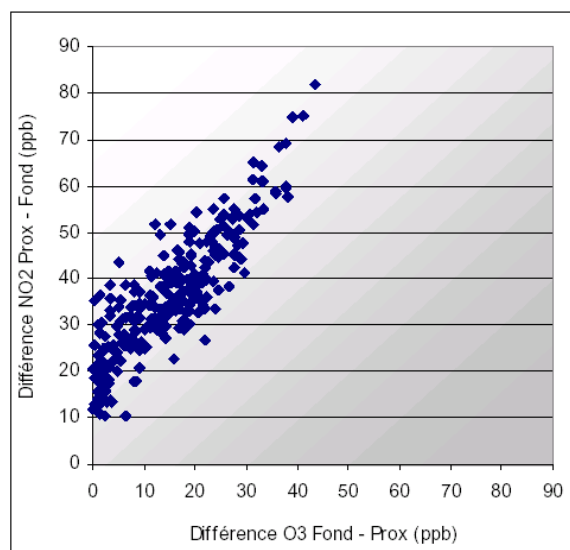
La Figure 38 suivante présente le profil journalier du NO₂ impacté I_{NO_2} (station de la porte d’Auteuil) ainsi que le niveau de fond d’ozone, pour deux classes d’impact de NO_x. On observe que tout au long de la journée, les niveaux d’impact de NO₂ à proximité du trafic I_{NO_2} et d’ozone de fond sont assez bien corrélés. Ainsi, I_{NO_2} relevé à proximité du trafic est notamment lié au niveau d’ozone de fond. On remarque cependant une différence des niveaux d’ozone de fond et de I_{NO_2} entre les deux classes d’impact de NO_x présentées. Pour la classe d’impact de NO_x de 250 à 300 ppb, on observe une différence plus marquée pour l’impact en NO₂ par rapport à une différence mineure de l’ozone de fond. Cette observation montre que pour cette classe d’impact en NO_x, il existe d’autres facteurs, comprenant entre autres les émissions primaires de NO₂ du trafic, et pouvant influencer sensiblement les concentrations ambiantes de NO₂ attribuables au trafic de voisinage (I_{NO_2}).



(Source : Airparif)

Figure 38 : Profil journalier de l’impact du NO₂ (station : Périphérique – porte d’Auteuil) et du niveau de fond d’ozone pour 2 classes d’impact de NO_x (100-150 ppb et 250-300 ppb) sur la période du 1^{er} nov. 2004 au 31 mars 2005

Enfin, de façon exploratoire, Airparif a fait procéder à des mesures d’ozone au niveau de la station de proximité au trafic de la porte d’Auteuil du 26 août au 12 octobre 2005. La Figure 39 présente la différence entre les concentrations d’ozone de fond et celles relevées au niveau de la porte d’Auteuil (ozone transformé) en fonction de l’impact en NO₂ sur ce même site.



(Source : Airparif)

Figure 39 : Niveaux impactés de NO₂ (I_{NO_2}) en fonction de la quantité d’ozone transformé (fond – proximité) sur la période du 26 août au 12 octobre 2005 à la station de la porte d’Auteuil (exemple de la classe d’impact de NO_x de 150 – 200 ppb)

Cette figure montre à nouveau une corrélation entre l’ozone transformé au niveau de la station de la porte d’Auteuil et l’impact en NO₂. Au delà, elle révèle également une part de l’impact en NO₂ dont l’origine n’est pas liée à l’ozone qui se traduit par un décalage de l’origine de la droite de corrélation sur l’axe des ordonnées.

3.3.1.4 Principales Conclusions

Les analyses menées en région parisienne mettent en évidence les éléments suivants sur Paris et la région :

- Les niveaux moyens d’oxydes d’azote (NO_x, NO et NO₂) sont en baisse sur les sites de fond.
- Sur les stations de proximité au trafic, on observe une baisse constante des concentrations de NO et de NO_x depuis 1994, mais une stagnation des concentrations de NO₂.
- Entre 1994 et 2006, il a été constaté sur l’ensemble des sites trafic une diminution des concentrations en NO attribuables au trafic de voisinage, mais une augmentation de cette contribution en ce qui concerne le NO₂.
- Les niveaux de NO₂ attribuables au trafic de voisinage sont liés aux niveaux ambiants d’ozone de fond et une part de l’augmentation du NO₂ attribuable au trafic de voisinage est de ce fait imputable à la titration du NO par l’ozone. Une autre part de cette augmentation est tributaire d’un ou plusieurs autres facteurs tels que les émissions unitaires des véhicules et les évolutions du parc roulant. Ces diverses contributions respectives n’ont pu être quantifiées de manière précise à ce stade, et sont sans doute quantitativement variables selon les sites.
- L’objectif de qualité fixé à 40 µg/m³ de NO₂ en moyenne annuelle (correspondant à la valeur limite à respecter à partir de 2010) est loin d’être respecté au niveau des stations de proximité au trafic du réseau de mesure francilien.

On notera par ailleurs que ces approches ne couvrent pas l'ensemble des phénomènes complexes de la chimie atmosphérique pouvant intervenir (NO_x, O₃, COV..) et sont utilisées à défaut de données de comptage disponibles du trafic routier. Aussi, le développement d'une étude multiparamétrique plus complète nécessitant le recours à des modélisations serait utile dans l'objectif d'une analyse plus détaillée des différents facteurs contribuant aux niveaux de NO₂ en proximité du trafic.

3.3.2 Observations au niveau d'autres agglomérations françaises

3.3.2.1 Introduction

Sur la base des observations et de la méthodologie adoptée en région parisienne, des extractions et traitements de données similaires ont été menés sur d'autres agglomérations métropolitaines.

3.3.2.2 Observations

Des traitements de données ont été fournis au groupe de travail par différentes AASQA de métropole. Ces données concernent les stations identifiées en annexe 7. Ces stations répondent en particuliers à plusieurs critères qui avaient été fixés au préalable (conformité des stations aux descriptions fournies dans le guide Ademe « *Classification et critères d'implantation des stations de surveillance de la qualité de l'air* » de juin 2002 – historique de mesures suffisant (depuis 1998 si possible) - absence de modification majeure dans l'environnement proche des stations « trafic » considérées – existence d'une station de fond mesurant NO et NO₂ représentative de la pollution de fond au niveau du secteur où se situe la station « trafic » considérée – absence d'influence d'activités aéroportuaires).

Les traitements de données correspondant aux Figures 30, 31, 37 et 38 précédentes ont été menés par les AASQA consultées et ont conduit aux résultats présentés en annexe 7.

3.3.2.3 Conclusions

Les conclusions qui se dégagent des analyses de l'évolution, ces dernières années, des niveaux d'oxydes d'azote sur 8 sites trafic, sont les suivantes :

- Les tendances générales confirment dans leurs grandes lignes les observations au niveau francilien et au niveau national : des évolutions variables à la stagnation ou à la hausse du NO₂ sur certains sites, et une diminution sur d'autres sites pouvant être liée à des changements de circulation.
- Une diminution systématique des niveaux moyens annuels de NO sur l'ensemble des sites trafic étudiés.
- Globalement, l'augmentation des niveaux de NO₂ impactés par le trafic (I_{NO2}) est plus marquée que l'augmentation des niveaux moyens de NO₂ relevés en proximité du trafic. De même, la diminution observée des niveaux de NO impactés par le trafic (I_{NO}) est plus marquée que la diminution des niveaux moyens de NO relevés en proximité du trafic. Ce constat met en évidence le fait que, bien que classifiées « trafic », les stations de proximité automobile ne permettent de relever précisément les niveaux « directement » impactés par le trafic. Leur finalité demeure en effet la caractérisation de niveaux d'exposition à la pollution atmosphérique générale en vue de veiller au respect des directives européennes sur l'air ambiant.

Sur les 5 sites ayant fait l'objet d'une analyse plus approfondie des niveaux de NO₂ et de NO impactés par le trafic (I_{NO_2} , I_{NO}) en fonction des niveaux d'ozone de fond, pour différents ordres de grandeur d'émission trafic de NO_x (approchés par le biais des classes d'impact de NO_x), sur la période hivernale du 1^{er} novembre 2005 au 31 mars 2006 :

- Plus le niveau d'ozone de fond augmente, plus le niveau de NO₂ impacté par le trafic (I_{NO_2}) augmente. A l'inverse, on observe une baisse du niveau de NO (I_{NO}) impacté au fur et à mesure de l'augmentation de l'ozone.
- Les niveaux de NO et NO₂ impactés par le trafic (I_{NO} et I_{NO_2}) ont globalement des tendances linéaires bien anti-corrélées, pour l'ensemble des ordres de grandeur d'émission de NO_x (à l'exception de ceux extrêmes sur 4 des 5 sites). Ceci va dans le sens d'une influence de la titration du NO par l'ozone en site trafic.
- Concernant les niveaux extrêmes d'émission NO_x (classe d'impact NO_x) pour lesquels l'anti-corrélation est moins évidente entre les tendances de niveau de NO et NO₂, deux hypothèses sont avancées pour en partie l'expliquer :
 - pour les plus faibles émissions NO_x : on observe une augmentation du NO₂ impacté plus faible que la diminution du NO impacté. Ceci peut s'expliquer par le fait que le NO émis devient le facteur limitant dans la réaction de titration du NO par l'ozone. Seule une quantité d'ozone peut alors réagir et le surplus d'ozone qui n'est pas transformé faute de NO, n'intervient alors pas dans l'augmentation des niveaux de NO₂ impactés ;
 - pour les plus fortes émissions NO_x : la différence entre l'augmentation du NO₂ impacté et la diminution du NO impacté est variable selon le site considéré. Une explication résiderait dans le nombre de données horaires disponibles plus limité pour les classes de NO_x élevées, qui rendrait les résultats plus sensibles à quelques valeurs extrêmes et donc moins robustes.
- Une accentuation de l'augmentation des niveaux de NO₂ impactés par le trafic (I_{NO_2}), et de la diminution des niveaux de NO impactés par le trafic (I_{NO}) est observée pour des ordres de grandeur croissants des émissions trafic de NO_x (classes d'impact de NO_x). Dans une certaine mesure, cette observation peut également refléter l'influence de la réaction de titration du NO émis par le trafic par l'ozone, puisque cette réaction est logiquement favorisée lorsque les niveaux de NO (contributeur majoritaire des niveaux de NO_x) et d'O₃ disponibles augmentent.
- Tout au long de la journée, les niveaux de NO₂ impactés par le trafic (I_{NO_2}) et d'ozone de fond sont globalement bien corrélés (à l'exception des sites de Rouen et Grenoble pour des émissions NO_x minimales). Ainsi, I_{NO_2} relevé à proximité du trafic est notamment lié au niveau d'ozone de fond. Pour les cas de Rouen et Grenoble dans des conditions reflétant des émissions minimales de NO_x, on observe alors en milieu de journée un « pic » d'ozone de fond qui n'est pas corrélé à la stagnation du niveau de NO₂ impacté par le trafic I_{NO_2} . Ceci pourrait s'expliquer par les trop faibles émissions en NO_x du trafic pour que les niveaux de NO₂ impactés I_{NO_2} soient significativement influencés par la titration du NO émis par l'ozone.
- Sur l'ensemble des sites étudiés, pour des conditions d'émission trafic croissantes (classes de NO_x croissantes), l'ordre de grandeur des niveaux d'ozone de fond varie peu, alors que les niveaux de NO₂ impactés augmentent sensiblement. Si l'on peut considérer que le niveau d'ozone de fond reflète le niveau de pollution à l'ozone sur la zone géographique du site, cette observation montre qu'il existe d'autres facteurs, comprenant entre autres les émissions primaires de NO₂ du trafic, et pouvant influencer sensiblement les concentrations ambiantes de NO₂ attribuables au trafic de voisinage (I_{NO_2}).

En l'absence de données plus détaillées disponibles sur les stations de mesure, la typologie des sites et les caractéristiques du trafic, l'analyse de la contribution du trafic à la pollution atmosphérique au NO₂ n'a pu être affinée davantage. Le développement de données de comptage véhicule apparaît utile à l'appréciation des parts de responsabilité attribuables à chaque configuration de véhicules (par exemple : norme, carburant, système de post-traitement) et à leur évolution.

Principales conclusions :

- Tendances à la stagnation ou à la hausse des niveaux ambiants de NO₂ sur certains sites trafic.
- Tendances à la baisse des niveaux ambiants de NO sur l'ensemble des sites trafic étudiés.
- Une part des niveaux de NO₂ attribuables au trafic de voisinage est imputable à la photochimie, et une autre part est tributaire d'un ou plusieurs autres facteurs tels que les émissions unitaires des véhicules et les évolutions du parc roulant. Ces diverses contributions respectives n'ont pu être quantifiées de manière précise à ce stade, et sont sans doute quantitativement variables selon les sites.

3.4 Analyse de données de pollution européennes

L'analyse des données de surveillance décrites dans le chapitre précédent met en évidence sur certains sites de trafic français une tendance à la stagnation voire à l'augmentation des niveaux de NO₂ en proximité des axes routiers. Afin d'enrichir l'analyse de cette problématique de pollution atmosphérique au NO₂ impactée par le trafic, et de mieux en apprécier la portée, une collecte et analyse de données issues d'études européennes, enrichies d'éléments d'information apportés par l'audition d'experts à l'international, ont été réalisées.

Sur la base de ces éléments, sont détaillés en annexe 9 :

- les tendances globales des niveaux moyens de NO₂ dans l'air observés à l'échelle européenne,
- les tendances des niveaux moyens de NO₂ observées en proximité du trafic au niveau de quelques agglomérations européennes,
- l'occurrence en Allemagne de dépassements des valeurs limites de qualité de l'air du NO₂ fixées à l'horizon 2010,
- l'analyse d'études ayant investigué la responsabilité du trafic, voire des technologies de post-traitement dans les niveaux de pollution atmosphériques au NO₂.

La tendance à la stagnation voire à l'augmentation des niveaux de NO₂ en proximité du trafic ne se restreint pas au cas français et est rapportée sur plusieurs agglomérations dans la communauté européenne, notamment au Royaume-Uni, en Allemagne et aux Pays-Bas.

Plusieurs études investiguent la problématique des relations entre les émissions NO₂ du trafic routier, leur répercussion sur les niveaux de NO₂ ambiants, et l'introduction dans le parc de technologies de post-traitement. La mise en évidence des tendances précédemment évoquées est associée entre autres à :

- l'augmentation du ratio NO₂/NO_x à l'échappement de certaines technologies de post-traitement telles que le CRT,
- un recours croissant aux technologies de post-traitement dans le cadre des réglementations Euro.

Les observations des concentrations NO₂ ambiantes et de leur évolution suggèrent une future non-conformité au niveau européen avec les valeurs limites fixées pour 2010.

- Alors que les concentrations NO_x ambiantes ont une tendance à la baisse, les concentrations NO₂ ambiantes à proximité du trafic ont souvent une tendance à stagner, voire à augmenter.
- La chimie atmosphérique de l'ozone est un facteur explicatif des tendances observées pour les concentrations ambiantes de NO et NO₂, mais ne peut être le seul pour certains cas.
- Des réductions supplémentaires des concentrations de NO₂ sont essentielles pour se conformer à la valeur limite annuelle d'ici à 2010.
- Afin de concevoir des mesures efficaces, il est nécessaire de comprendre les causes des niveaux de concentration en NO₂ observés.

3.5 Données de mesure dans le flux de circulation

3.5.1 Introduction

Au-delà des observations faites dans l'environnement extérieur, que ce soit en situation de proximité au trafic routier ou bien en situation de fond urbain, le Groupe de Travail s'est également intéressé aux niveaux de dioxyde d'azote susceptibles d'être rencontrés dans l'habitacle de véhicules insérés dans le trafic. Ce micro-environnement représente en effet un lieu d'exposition qui peut s'avérer non négligeable au regard du temps que la population générale ou professionnelle peut y passer. Ainsi, ces éléments s'avèrent d'un intérêt particulier notamment pour la suite des travaux développés au chapitre 5.

Deux études françaises récentes mesurant le NO₂ dans l'habitacle de véhicules insérés dans le trafic ont été identifiées, l'une réalisée par Airparif, l'autre par l'INSERM, le CERTAM et Air normand. Ces deux études ont été présentées au GT et discutées dans le cadre d'auditions le 8 juillet 2008.

3.5.2 Etude exploratoire menée en Ile-de-France par Airparif

3.5.2.1 Moyens mis en œuvre

Entre avril et juillet 2007, Airparif a procédé à différentes mesures exploratoires avec la mise au point d'un système mobile permettant de mesurer la qualité de l'air à l'intérieur d'un véhicule test lors de déplacements, et ainsi de caractériser les niveaux de pollutions auxquels les automobilistes peuvent être exposés.

Les mesures réalisées ont concerné le NO₂ et ont été effectuées dans l'habitacle et à l'extérieur immédiat d'un véhicule (le long de la portière) équipé d'analyseurs automatiques mettant en œuvre le principe de la chimiluminescence et permettant au final de disposer de données de concentration sur un pas de temps de 10 secondes. Les mesures intérieures ont été réalisées avec la mise en fonctionnement de la ventilation du véhicule en position 1 et les vitres fermées. La Figure 40 illustre les emplacements des points de prélèvements sur le véhicule.



(a) Prélèvement extérieur au véhicule

(b) Prélèvement dans l'habitacle

(Source : Airparif)

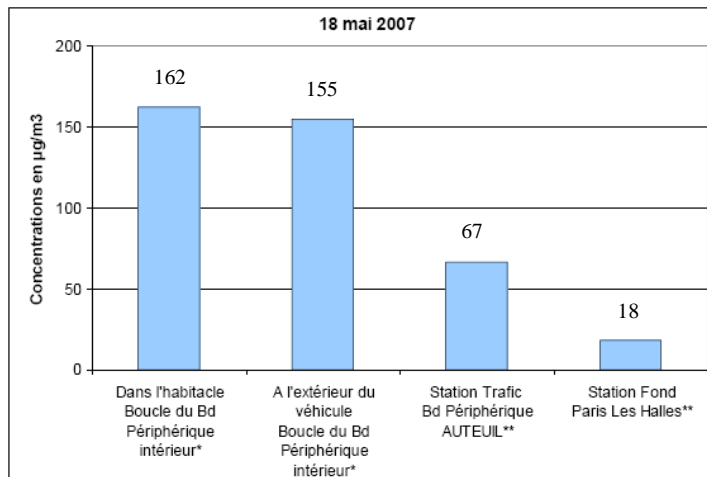
Figure 40 : Emplacements des prélèvements sur le véhicule

Différents trajets représentatifs des déplacements des franciliens ont été effectués ; les différents parcours réalisés ont permis notamment d'étudier l'influence de la typologie des axes routiers (autoroute, Boulevard Périphérique, tunnels...) fréquentés ainsi que celle des conditions de circulation (congestion ou fluidité du trafic, types de véhicules précédent le véhicule test...).

3.5.2.2 Principaux résultats

□ Comparaison de concentrations relevées en habitacle avec celles issues des stations fixes du réseau de surveillance

Les deux figures suivantes montrent les résultats de mesure obtenus par Airparif pour un trajet effectué sur le Boulevard Périphérique et un second sur l'avenue des Champs Elysées.

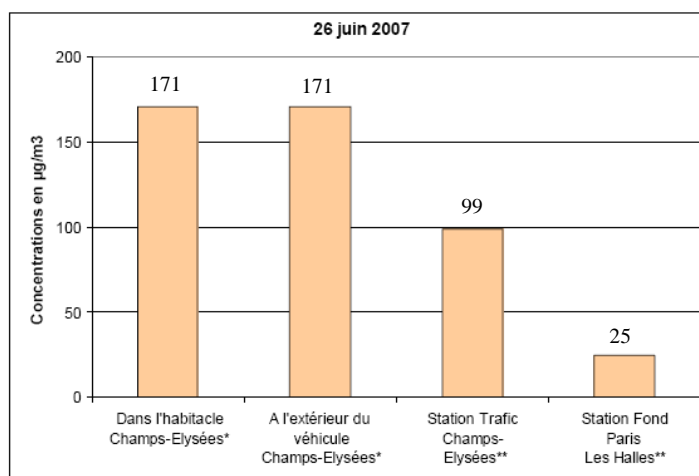


* Mesures dans l'habitacle et à l'extérieur du véhicule entre 11h09 et 11h41.

**Station fixe du réseau AIRPARIF : mesures entre 11h et 11h45.

(Source : Airparif)

Figure 41 : Concentrations de NO₂ relevées le 18 mai 2007 sur des stations fixes du réseau Airparif et dans l'habitacle du véhicule et à l'extérieur immédiat lors d'une boucle de Boulevard Périphérique



*Mesures dans l'habitacle et à l'extérieur du véhicule entre 12h01 et 12h17.

**Station fixe du réseau AIRPARIF : mesures entre 12h et 12h15.

(Source : Airparif)

Figure 42 : Concentration de NO₂ relevées le 28 juin 2007 sur des stations fixes du réseau Airparif et dans l'habitacle et à l'extérieur immédiat lors d'un passage sur les Champs Elysées

A l'occasion du trajet sur le Boulevard Périphérique, les niveaux de NO₂ relevés à l'intérieur du véhicule sont en moyenne 2,5 fois supérieurs à ce qui s'observe au même moment en bordure du Boulevard Périphérique (station trafic de la Porte d'Auteuil).

De la même manière, les niveaux de NO₂ dans le flux de circulation sur les champs Elysées et à l'intérieur de l'habitacle sont supérieurs à ceux mesurés au même moment sur le trottoir (station trafic des Champs Elysées) : le niveau moyen dans le véhicule est 1,7 fois plus élevé que celui auquel sont exposés les piétons.

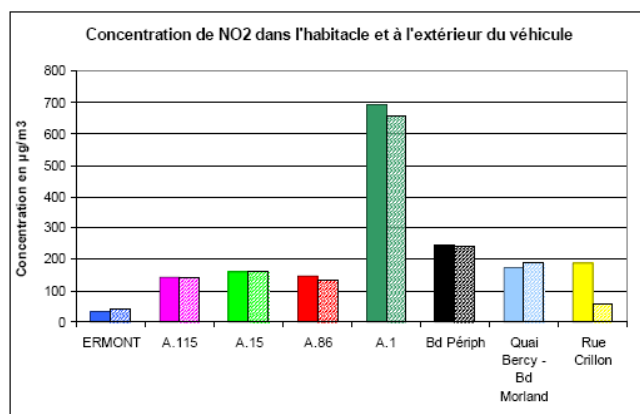
▣ Différence observée entre l'air de l'habitacle et l'air extérieur du véhicule

A l'occasion de la boucle du Boulevard Périphérique réalisée le 18 mai 2007, des mesures intérieures et extérieures au véhicule ont été réalisées. Ainsi, lors du parcours réalisé le 18 mai 2007 sur le Boulevard Périphérique, jour de trafic fluide, les niveaux enregistrés de NO₂ à l'intérieur de l'habitacle, plus stables, sont compris entre 110 et 260 µg/m³ alors que dans le même temps, ils vont de 40 à 520 µg/m³ à l'extérieur du véhicule.

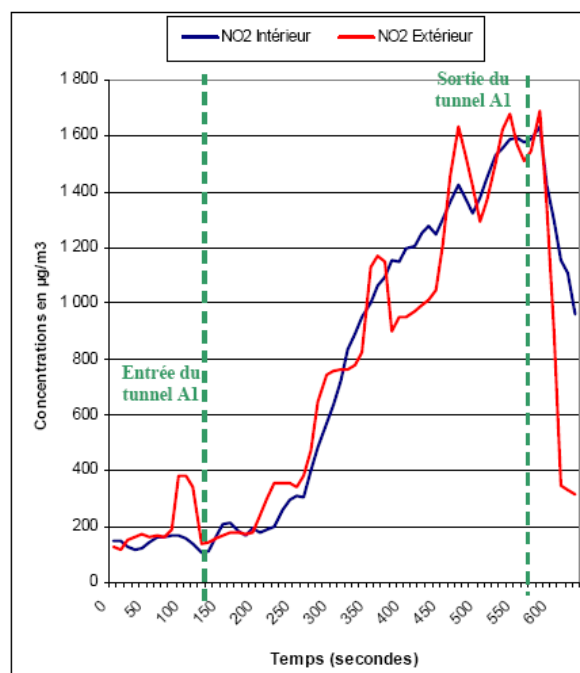
Au-delà, Airparif montre également qu'un pic de concentration à l'extérieur du véhicule se répercute à l'intérieur du véhicule avec un décalage dans le temps (plus ou moins long) et une persistance plus longue, en particulier liée au délai de renouvellement d'air dans l'habitacle.

▣ Influence de la typologie de l'axe emprunté

Airparif a réalisé un parcours banlieue-Paris de 34 km entre la commune d'Ermont dans le Val d'Oise et le 4^{ème} arrondissement le 4 juillet 2007 dans des conditions de trafic très congestionné (vitesse moyenne de 16 km/h). Il est montré des niveaux moyens de NO₂ mesurés d'ampleur variable en fonction de la typologie de l'axe. La Figure 43 ci-dessous illustre ces observations : parmi les différents tronçons, Airparif indique que c'est celui de l'autoroute A1 qui présente les concentrations de NO₂ les plus importantes (dans l'habitacle et à l'extérieur immédiat). Ce constat apparaît essentiellement dû à la caractéristique du tronçon de l'A1 emprunté lors de ce trajet qui présente une tranchée couverte (tunnel).



(a)



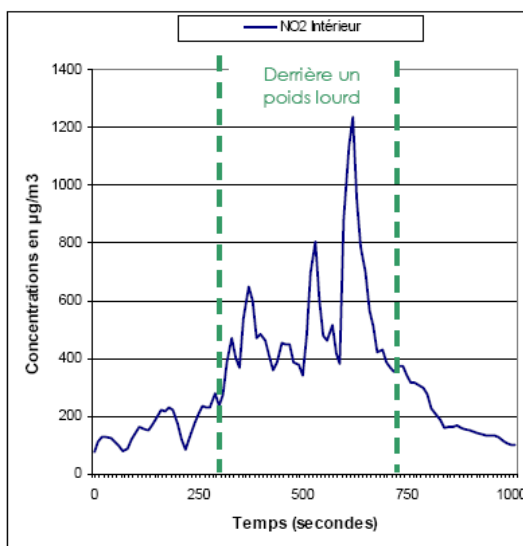
(b)

(Source : Airparif)

Figure 43 : (a) Résultats des mesures dans l'habitacle (histogramme plein) et à l'extérieur du véhicule (histogramme hachuré) lors du trajet entre Ermont et Paris le 4 juillet 2007 et (b) Concentrations de NO₂ relevées dans le tunnel de l'A1

☐ Influence du véhicule précédant le véhicule test

Il apparaît également que les concentrations mesurées dans l'habitacle sont influencées par les véhicules situés devant le véhicule test. A l'occasion d'un trajet réalisé dans Paris, au sein d'un trafic congestionné avec une vitesse de circulation de 3 km/h, une part des mesures ont été enregistrées alors qu'un poids lourd précédait le véhicule test. Les données enregistrées par Airparif montrent alors des teneurs en NO₂ pouvant atteindre des niveaux très importants représentant jusqu'à 10 fois celles mesurées dans l'habitacle avant que le véhicule test ne soit derrière le poids lourd : la figure ci-dessous illustre ce phénomène avec des niveaux de NO₂ pouvant atteindre 1 200 µg/m³ durant plusieurs secondes.



(Source : Airparif)

Figure 44 : Concentration de NO₂ relevée dans l'habitacle

Au-delà, Airparif indique que ce sont essentiellement les véhicules avoisinants qui sont à l'origine des niveaux de NO₂ mesurés dans l'habitacle, d'où l'influence des conditions de circulation. Pour un même parcours effectué (boucle du Boulevard Périphérique intérieur) un jour de trafic fluide (vitesse moyenne de 70 km/h) et un jour de trafic plus congestionné (vitesse moyenne de 23 km/h), Airparif relève que la moyenne des concentrations en NO₂ dans l'habitacle passe de 151 µg/m³ dans le 1^{er} cas à 264 µg/m³ dans le second.

☐ Premières conclusions

En première approche, Airparif conclut notamment que les concentrations de NO₂ relevées dans l'habitacle et à l'extérieur du véhicule dépendent de la typologie de l'axe routier, de l'importance du trafic routier et des véhicules avoisinants.

3.5.3 Principaux résultats de mesures dynamiques embarquées en habitacle de véhicules insérés dans le trafic réalisées par l'Inserm et le Certam

Egalement en 2007, une équipe de recherche de l'INSERM de Rouen (U644), associé au CERTAM et à Air Normand, a réalisé une campagne de mesures dynamiques de polluants (dont le NO₂) dans l'habitacle d'un véhicule automobile inséré dans le trafic.

3.5.3.1 Moyens mis en œuvre

Le dispositif de mesure mis en œuvre s'appuie sur un véhicule équipé d'un appareillage complet qui a notamment permis le suivi des concentrations de NO₂ mais également de particules. Grâce à une petite caméra placée à l'avant du véhicule, les enregistrements des concentrations mesurées dans l'habitacle ont pu être corrélés à ce qui se passe devant lui et, grâce à un GPS, à sa vitesse et à sa position géographique.

Un parcours de 72 km en agglomération rouennaise répété 50 fois et un parcours de 200 km en agglomération parisienne répété 6 fois ont été réalisés entre mai et juillet 2007, aboutissant à un total de 5000 km. Chaque parcours était composé de plusieurs tronçons aux caractéristiques de circulation, infrastructures et architectures urbaines différentes. Les données collectées à l'occasion du parcours rouennais ont été confrontées à celle obtenues par le réseau de surveillance de la qualité de l'air Air Normand.

3.5.3.2 Principaux résultats

L'INSERM indique que les niveaux moyens de NO₂ relevés dans l'habitacle du véhicule sont près de 10 fois supérieurs à ceux relevés en situation urbaine de fond (plus de 200 µg/m³ contre 22 µg/m³ en moyenne relevé au niveau de la station de fond Palais de justice à Rouen). Par rapport au niveau moyen relevé en situation de proximité au trafic (75 µg/m³ - station trafic Guillaume le Conquérant – Rouen), ces mêmes niveaux relevés dans l'habitacle du véhicule apparaissent près de 3 fois supérieurs.

Des résultats des mesures de NO₂ dans l'habitacle sont détaillés dans le Tableau IV et illustrés dans la Figure 45.

Tableau IV : Concentrations de NO₂ (µg/m³) dans l'habitable (données INSERM/CERTAM/Airnormand)

	Type de trajets					
	global-hors tunnel	autoroute	urbain	voie rapide	péri urbain	total tunnel
Agglomération de Rouen						
moyenne	249	248	257	253	259	431
écart type	181	153	217	171	189	308
centile5	46	48	44	44	46	81
centile25	133	137	137	141	139	178
médiane	212	212	208	222	222	314
centile75	323	331	323	327	347	637
centile95	561	529	609	583	565	929
Km cumulé (Km)	2558	908	343	246	1061	119
Km parcouru (Km)	55,80	19,80	7,52	5,42	23,06	2,59
temps cumulé (sec)	242667	53105	68804	43282	77476	14932
temps moyen (sec)	5300	1159	1506	951	1684	325
>400µg/m ³ (%)	15,53	11,05	16,07	15,83	17,96	43,97
>200µg/m ³ (%)	53,68	47,08	52,52	57,49	56,95	69,63
Agglomération de Paris						
moyenne	307	X				516
écart type	162					325
centile5	96					126
centile25	200					270
médiane	302					452
centile75	379					706
centile95	541					1089
Km cumulé (Km)	1200					60,68
>400µg/m ³ (%)	19,92					54,4
>200µg/m ³ (%)	74,49					85,37

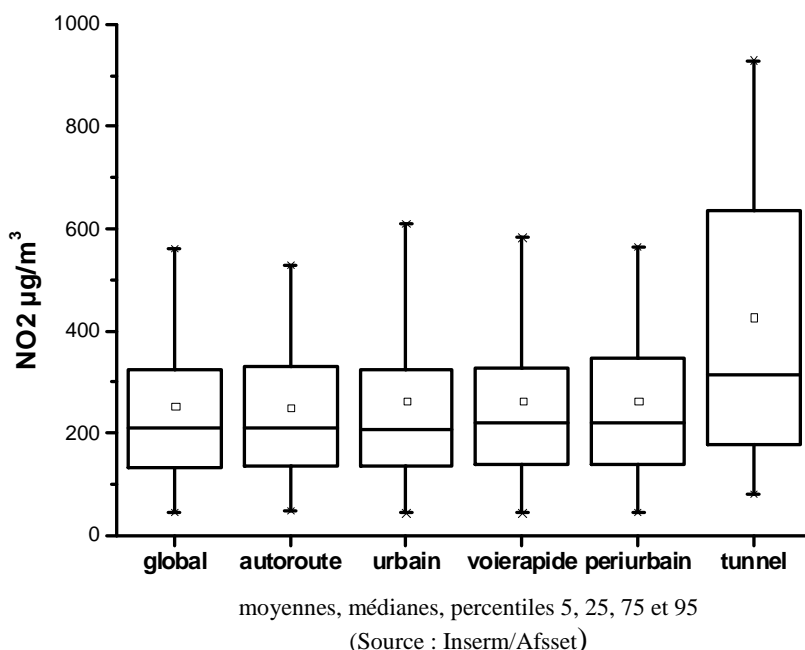


Figure 45 : Concentrations de NO₂ mesurées dans l’habitable, selon différents types de trajet dans l’agglomération de Rouen

Par ailleurs, l’INSERM montre qu’un paramètre majeur influençant l’exposition dans l’habitable d’un véhicule est le fait d’être dans le sillage d’un véhicule fortement émetteur et est peu dépendant de la densité de la circulation. Un exemple de suivi d’un véhicule fortement émetteur (Bus EuroIII dépollué par FAP-CRT) est proposé pour illustrer ce phénomène : sur une période de 6 minutes dans le sillage du bus, la concentration moyenne de NO₂ dans l’habitable s’est établie à 1 781 µg/m³, le maximum observé ayant été de 13 000 µg/m³ (Figure 46). Le suivi du bus a duré 6 minutes sur un axe urbain à faible densité de circulation, puis le bus a été dépassé et les 6 minutes suivantes ont été enregistrées sur le même axe de circulation avec une faible densité de circulation. Les données chiffrées représentent les valeurs moyennes de NO et NO₂ sur chaque période de 6 minutes. Le ratio NO₂/NO_x était de 0,76 derrière le bus dénotant d’une très active catalyse d’oxydation.

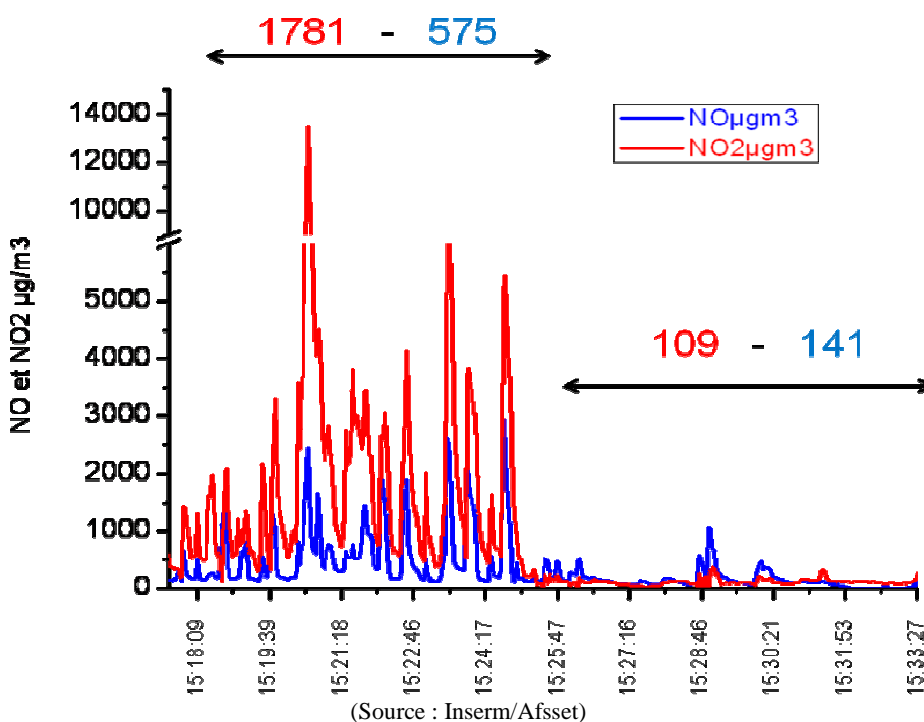


Figure 46 : Concentrations de NO et NO₂ mesurées dans l’habitable, lors du suivi d’un bus Euro III équipé d’un FAP-CRT

Les conclusions de l'étude INSERM U644 / CERTAM / Air Normand s'appuyant sur cette campagne de mesures sont les suivantes :

- « Très forte dynamique des concentrations de polluants particulaires et gazeux ;
- Relative homogénéité des concentrations moyennes entrantes dans l'habitacle hors zones confinées (tunnels), généralement comprises entre 200 et 300 µg/m³ ;
- Impact important de la technologie et de la distance du véhicule émetteur du sillage (PM, NO, NO₂) (position de l'échappement, dispositif de post-traitement) ;
- Relative indépendance de la densité du trafic : le sillage prime largement sur le fond ;
- Impact des infrastructures sur la dispersion des polluants. »

Un traitement statistique par ANOVA²⁰ effectué dans le cadre de cette étude a conclu que, « en dehors des espaces confinés (tunnels), les niveaux moyens de NO₂ dans l'habitacle ne dépendent ni du type de voie, ni de l'état du trafic ».

3.5.4 Conclusions

Au vu des éléments présentés ci-dessus, il apparaît que les observations faites par Airparif à l'occasion de mesures exploratoires et celles formulées par l'équipe de recherche de l'INSERM U644 sont relativement cohérentes.

Ainsi, les mesures réalisées dans le flux de circulation et notamment à l'intérieur de l'habitacle de véhicules montrent que les niveaux de NO₂ relevés sont largement supérieurs à ceux que l'on peut observer au niveau de stations de surveillance de proximité au trafic.

L'un des paramètres majeurs influençant les niveaux de dioxyde d'azote dans l'habitacle est constitué par les émissions des véhicules avoisinant le véhicule considéré, en particulier celui le précédant immédiatement. Les concentrations dans l'habitacle du véhicule augmentent nettement lors des passages en tunnel.

Au vu des résultats présentés ici, il ne peut cependant être exclu que d'autres paramètres (typologie de l'axe routier emprunté, état de congestion du trafic, topographie des lieux, etc.) influencent également les concentrations à l'intérieur de l'habitacle.

²⁰ Analyse de la variance du niveau moyen de NO₂ dans l'habitacle en fonction des variables qualitatives « fluidité du trafic », « type de voie » et « type de voie × fluidité » (afin de tenir compte de la non-indépendance de ces deux variables)

4 Aspects sanitaires liés au NO₂, notamment associé aux différentes technologies de post traitement des émissions diesel

4.1 Synthèse des effets sanitaires du NO₂

Les éléments issus de la revue publiée par l'OMS dans le cadre des « Air Quality Guidelines, Global Update 2005 » (OMS, 2006, p.333-394) ont été repris et complétés en annexe 10.

Au final, les données toxicologiques montrent que le dioxyde d'azote induit des effets toxiques sur le système respiratoire, incluant l'immunodéficience envers les microorganismes pathogènes, l'augmentation de l'hypersensibilité bronchique aux allergènes et autres stimuli irritants chez les asthmatiques. Ces effets sont décrits dans des études expérimentales à la suite d'expositions à des concentrations en dioxyde d'azote supérieures aux valeurs guides couramment citées. Aucune nouvelle étude publiée sur le sujet considérant des concentrations à des niveaux environnementaux et séparant les effets du dioxyde d'azote de ceux des autres polluants n'a été relevée par le groupe de travail depuis la publication de la synthèse de l'OMS (OMS, 2006, p.333-394).

Dans le domaine des effets sanitaires de la pollution atmosphérique, les études épidémiologiques sont pour la plupart fondées sur l'observation : elles consistent à mettre en relation les niveaux d'exposition récents ou passés des individus avec leur état de santé, afin d'étudier les liens à court et à long terme entre pollution atmosphérique et santé.

Cette approche présente notamment l'avantage de s'appuyer sur des observations en conditions réelles, et ainsi tant les niveaux que les conditions d'exposition à la pollution atmosphérique sont pertinents au regard de ceux auxquels peut être confrontée la population. Mais cela entraîne aussi des limites pour les études épidémiologiques, en particulier pour répondre à des questions du type de celle posée ici, c'est-à-dire l'identification des effets sanitaires d'une substance particulière.

En effet, dans le cadre des études épidémiologiques la caractérisation des niveaux d'exposition à la pollution atmosphérique se réduit en fait quasiment toujours à l'évaluation de l'exposition à quelques polluants « indicateurs », qui ne représentent donc qu'une infime partie de l'ensemble des composés constituant la pollution atmosphérique. Il en découle que l'observation, dans le cadre d'une étude épidémiologique, de liens entre les niveaux d'un indicateur de pollution et une variable sanitaire n'est pas nécessairement la conséquence de l'existence d'effets propres du polluant considéré sur la santé, mais peut refléter les effets sanitaires d'un ou plusieurs polluants parmi l'ensemble de ceux émis ou formés avec ce polluant indicateur (Goldberg M.S., 2007). De plus, dans les études épidémiologiques, l'exposition réelle des individus est très rarement considérée car très rarement accessible. Ce sont le plus souvent les concentrations dans l'air extérieur qui sont alors utilisées comme un reflet des contrastes d'exposition au sein des populations étudiées.

Les études épidémiologiques relatives aux expositions au NO₂ sont limitées par leur incapacité à séparer les effets du NO₂ de ceux des autres polluants émis ou formés avec lui. Ainsi, les liens observés de façon relativement cohérente entre niveaux de NO₂ et santé dans les études épidémiologiques (cf. annexe 10) pourraient être reliés aux effets sanitaires d'autres composés produits ou formés simultanément, plutôt qu'à des effets propres du NO₂ (OMS, 2006 ; Brook J.R. et al., 2007 ; Kim J.Y., 2007). En particulier, le NO₂ est souvent utilisé comme marqueur de la pollution émise par les combustions, notamment celle émise par la circulation routière.

De plus, entre autres facteurs, la forte corrélation observée entre les niveaux de NO₂ et ceux d'autres polluants émis par ces processus, notamment les particules fines, amène à des difficultés pour identifier au moyen d'études épidémiologiques les effets propres éventuels de chacun de ces polluants, bien que de nombreux travaux méthodologiques soient en cours à ce sujet (Kim D. et al., 2006).

Les estimations de risque associé aux niveaux de NO₂ dans de nombreuses études épidémiologiques étaient fortement réduites et devenaient souvent non significatives après ajustement sur les niveaux de particules. Dans certaines études, cependant, l'effet le plus fort était retrouvé pour le dioxyde d'azote, alors que les particules avaient un effet plus faible voire nul. Les indications les plus fortes d'un effet indépendant du dioxyde d'azote proviennent en particulier des études ayant investigué les admissions hospitalières ou les recours aux urgences pour pathologies respiratoires et cardiovasculaires, les aggravations de l'asthme, l'évaluation des effets en milieu intérieur particulièrement chez les nourrissons et enfants asthmatiques ou risquant de le devenir. Une revue récente de la littérature sur les effets du dioxyde d'azote sur la santé humaine vient conforter les éléments précités (Latzka U. et al., 2008).

En conclusion, il ne semble pas correct d'interpréter les relations produites par les études épidémiologiques et liant les niveaux de NO₂ ambiants à des risques sanitaires comme reflétant exclusivement les effets propres du NO₂. Au contraire, il semble raisonnable, en l'état actuel des connaissances, de se limiter, pour ce qui concerne ces relations, à une interprétation des niveaux de NO₂ comme un marqueur de l'ensemble des polluants émis ou formés avec lui. Cette constatation amène plusieurs implications, notamment pour ce qui concerne l'utilisation de ces relations concentration-risque pour l'évaluation des impacts sanitaires du NO₂ :

- L'extrapolation (géographique ou temporelle) de ces relations à des situations dans lesquelles la composition de la « soupe » de polluants émis ou formés avec le NO₂ n'est pas similaire à celle des conditions de réalisation de l'étude épidémiologique à l'origine de la relation concentration-risque représente une source d'incertitude non négligeable pour les résultats de l'évaluation d'impact sanitaire ;
- Les conditions de mesure des concentrations de NO₂ prises en compte pour établir les relations concentration-risque doivent être cohérentes entre l'étude épidémiologique à l'origine de la relation, et les conditions de réalisation de l'évaluation de l'impact sanitaire. En particulier, dans le cadre de la question posée ici, la modification des émissions de NO₂ des véhicules diesels est susceptible en premier lieu d'entraîner une modification des concentrations de NO₂ dans l'air à proximité immédiate des voies de circulation. Or, les relations liant les niveaux de NO₂ dans l'air à des augmentations des risques relatifs de décès ou d'hospitalisation dans les jours suivant l'exposition sont pour la plupart obtenues au moyen d'études de séries temporelles (voir par exemple les études multicentriques américaine, européenne, et française) (Samet J.M. et al., 2000 ; Samoli E. et al., 2006 ; Larrieu S. et al., 2007). Ces études écologiques se fondent sur les niveaux mesurés par les stations de fond dans le cadre de la surveillance de la qualité de l'air pour construire un indicateur d'exposition dont les variations temporelles reflètent celles de la moyenne des expositions individuelles au sein de la population étudiée (Sørensen M. et al., 2005 ; Kim D. et al., 2006). Les relations produites par ces études lient ainsi les variations d'un jour à l'autre des concentrations de fond de NO₂ et des augmentations des risques relatifs de décès ou d'hospitalisation. L'application de ces relations concentration-risque à une augmentation de concentration à proximité d'un axe routier n'est donc pas cohérente, et entraînerait nécessairement d'importantes incertitudes sur l'évaluation de l'impact sanitaire de cette augmentation.

Les apports de l'approche épidémiologique dans le cadre de la question posée ici semblent donc relativement limités, tant pour ce qui concerne la connaissance des effets sanitaires du NO₂ émis par les véhicules diesel proprement dits, que pour la réalisation d'une évaluation des impacts sanitaires associés à l'introduction dans le parc de véhicules de nouvelles technologies de post-traitement.

4.2 Effets sanitaires du NO₂ contenu dans les émissions diesel

4.2.1 Apport des études expérimentales d'exposition chez l'animal en chambre d'inhalation

4.2.1.1 Introduction

Il n'a pas été trouvé de publication relative à l'impact des dispositifs de post-traitement sur la toxicité des émissions diesel dans leur globalité (phases gazeuse et particulaire) incluant des mesures de NO₂.

Les seuls résultats d'études expérimentales disponibles proviennent des travaux de l'équipe INSERM U644/CERTAM/INERIS, réalisés dans le cadre d'un programme de recherche Primequal/Predit. Ces travaux ont pour l'instant fait l'objet de la mise en ligne d'un rapport sur le site Internet Primequal/Predit (INSERM/CERTAM/INERIS, 2008) et d'une publication relative à la validation des systèmes d'exposition in vitro à des flux continus d'aérosol en tant qu'alternatives aux expérimentations in vivo pour l'évaluation de la toxicité par inhalation (Morin J-P et al., 2008).

Les données issues de ces travaux ont fait l'objet d'une réanalyse rapportée dans ce chapitre.

Ces travaux visaient à étudier l'impact d'une exposition à des émissions diluées de moteurs diesel traitées ou non par catalyse d'oxydation associée ou non à un filtre à particules et enrichies ou non en NO₂, sur les fonctions cardiaques, rénales et reproductives de cobayes et rats sains ou de rats rendus insuffisants cardiaques parallèlement au suivi de l'inflammation systémique et du stress oxydant pulmonaire et systémique. De nombreux travaux de la littérature ont en effet montré le rôle majeur joué par le stress oxydant dans les effets biologiques induits par les particules et le NO₂.

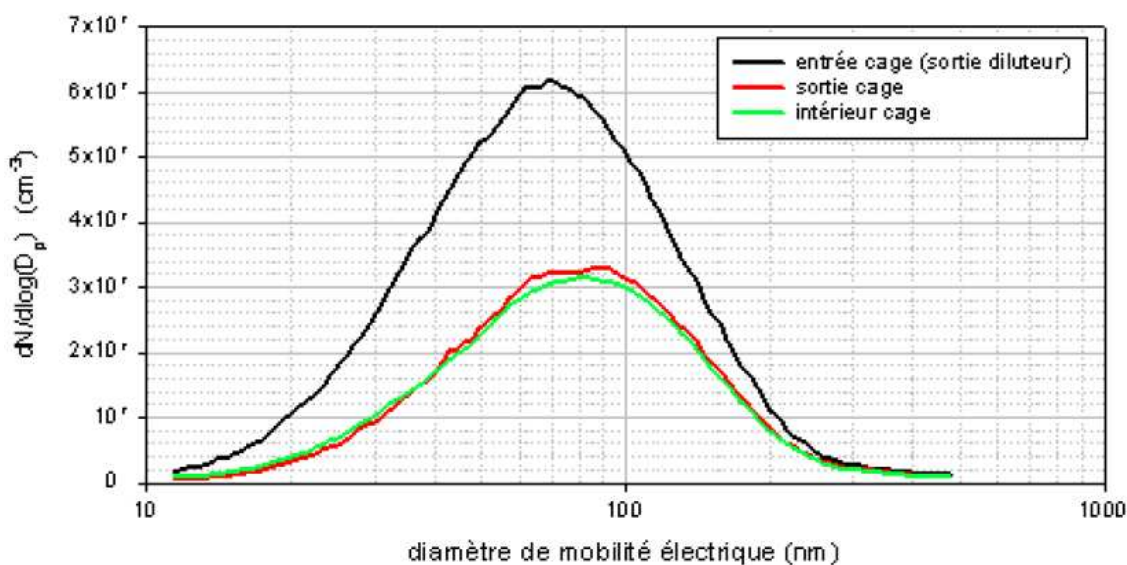
Dans ce but ont été mis en œuvre :

- d'une part, un banc de production d'aérosols issus de moteurs diesel modulés par l'adjonction ou non d'un catalyseur d'oxydation, de filtres et de gaz (NO₂).
- et d'autre part, une enceinte d'inhalation mise au point et caractérisée (données non disponibles dans le rapport INSERM/CERTAM/INERIS) dans le cadre d'un projet européen (MAAPHRI) pour permettre le maintien des caractéristiques physico-chimiques de la phase particulaire.



(Source : INSERM/CERTAM/INERIS)

Figure 47 : Enceinte individuelle d'inhalation pour animal vigile, non contraint
entrée cage / sortie cage



(Source : INSERM/CERTAM/INERIS)

Figure 48 : Distribution de taille des particules en amont et aval des cages d'exposition

Trois types d'études ont été réalisés mettant en œuvre deux moteurs et différentes technologies de dépollution :

- étude A : comparaison de différentes dilutions d'un échappement provenant d'un moteur diesel monocylindrique d'ancienne technologie
- étude B : comparaison d'échappements issus d'un moteur Diesel type Euro 3²¹ traités ou non par filtration²² ou catalysés²³ et filtrés²².
- étude C : comparaison d'échappements issus d'un moteur Diesel type Euro 3²¹ catalysés²³ ou non, et dopés au NO₂.

L'évaluation du stress oxydant s'est faite au travers de la mesure de l'activité d'enzymes anti-oxydantes : catalase (CAT), superoxyde dismutase (SOD), glutathion peroxydase (GPX), glutathion réductase (GR) et glutathion-S-transférase (GST) dans des homogénats de poumon, foie, rein et cœur.

21 Moteur 2L, 4 cylindres, injection haute pression, rail commun.

22 Filtre carbure de silicium de type monolithe fermé

23 Catalyseur à forte charge en Platine

Tableau V : 3 études (A, B et C) : différents types d'échappements

	ETUDE A	ETUDE B	ETUDE C
Moteur	Diesel monocylindre ancienne technologie	Diesel type Euro 3: moteur 2L, 4 cylindres, injection haute pression, rail commun	Diesel type Euro 3: moteur 2L, 4 cylindres, injection haute pression, rail commun
Traitement de l'échappement		<u>Filtré</u> (filtre de carbure de silicium de type monolithe fermé) <u>Catalysé et filtré</u> : catalyseur à forte charge en platine	<u>Catalysé</u> : catalyseur à forte charge en platine
Concentrations testées	Particules: 520 et 1030 µg/m ³ NO ₂ : 0,4 et 0,7 ppm	<u>Non traité</u> : particules, NO ₂ : 1 ppm <u>Filtré</u> : particules (1% des émissions non traitées par un filtre), NO ₂ : 1 ppm <u>Cata+filtre</u> : particules (1% des émissions non traitées par un filtre), NO ₂ : 3,8 ppm	<u>NO₂</u> : 4 ppm <u>Non traité</u> : particules, NO ₂ : 1 ppm <u>Non traité</u> : particules, <u>dopé NO₂</u> : 4 ppm <u>Cata dox</u> : particules, NO ₂ : 4 ppm
Effets biologiques étudiés	Activités des enzymes anti-oxydantes Fonction rénale Fonction cardiaque	Activités des enzymes anti-oxydantes Inflammation systémique Fonction de reproduction	Activités des enzymes anti-oxydantes Inflammation systémique Fonction cardiaque (sur rats insuffisants cardiaques)

Les études B et C font par la suite l'objet d'une analyse descriptive afin d'en tirer des conclusions quant à l'influence des technologies de dépollution (filtre à particules, catalyseur d'oxydation) sur le potentiel toxique des émissions à l'échappement. L'étude A ne s'intéressant pas à des échappements traités par des technologies de dépollution n'a pas été analysée.

Afin de faciliter la compréhension de ces analyses, un bref rappel des principaux mécanismes antioxydants impliquant les enzymes antioxydantes dosées dans cette étude est présenté au préalable (Figure 49).

4.2.1.2 Evaluation du stress oxydant: mesure des activités des enzymes antioxydantes

Les mesures enzymatiques effectuées dans ces études sont des mesures de l'activité enzymatique instantanée et non de la quantité d'enzymes. La transcription de ces enzymes est un autre niveau de leur régulation qui n'est pas mesuré ici. Concernant la modulation de leur activité en réaction à un stress oxydant, elle n'est pas monotone. L'activité enzymatique aura tendance à augmenter pour contrer un stress oxydant modéré, et aura tendance à diminuer lorsque le stress oxydant est trop important. Le niveau de stress oxydant pour lequel se produit cette modulation peut varier en fonction de l'organe considéré. Le foie par exemple dispose d'un stock important d'enzymes antioxydantes et peut donc faire face à des niveaux de stress oxydant plus importants.

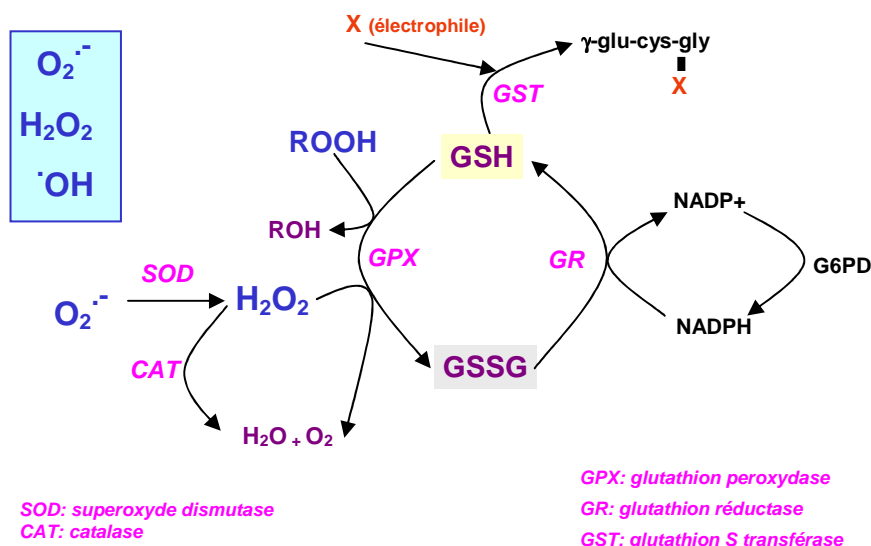


Figure 49 : Principaux mécanismes antioxydants impliquant des enzymes antioxydantes

A titre indicatif, la voie des peroxy-nitrites et des radicaux NO₂ (oxyde nitrique) impliquant le métabolisme du glutathion est représentée sur la Figure 50.

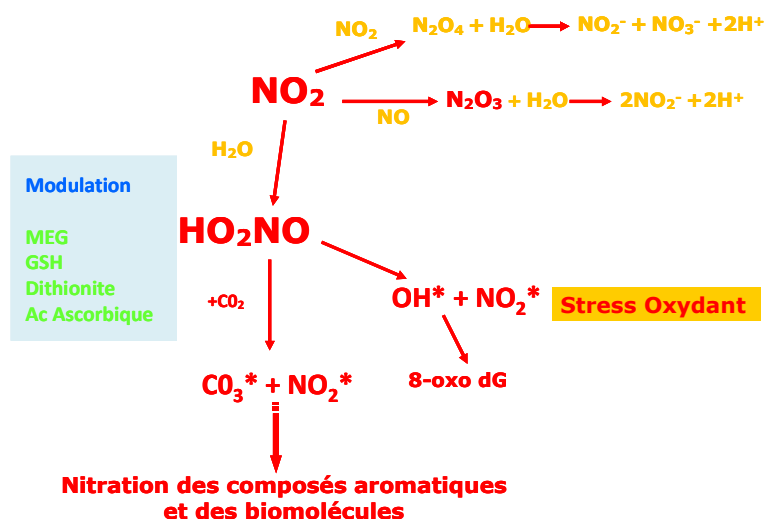


Figure 50 : Voie des peroxy-nitrites et des radicaux NO₂

A noter que :

- l'étude B décrite par la suite fournit des éléments statistiques pour des comparaisons d'une condition d'exposition par rapport au témoin mais pas pour des comparaisons entre les différentes conditions d'exposition ;
- toutes les enzymes impliquées dans le système antioxydant n'ont pas été évaluées dans le cadre de ces études ;
- les résultats de ces études ne permettent pas de connaître la dynamique de l'activité enzymatique puisque qu'ils représentent une « photographie » de l'activité au 3^{ème} jour d'exposition (dosage enzymatique), alors que l'équilibre redox est en constant ajustement surtout quand l'organisme entier est mis en jeu avec la prise en charge du stress oxydant par un ensemble d'organes et de systèmes antioxydants autres que les systèmes enzymatiques.

4.2.1.3 Etude B : comparaison d'échappements issus d'un moteur Diesel type Euro 3 traités ou non par filtration ou catalysés et filtrés : effets sur les activités enzymatiques anti-oxydantes, l'inflammation systémique et la fonction de reproduction

4.2.1.3.1 *Effet sur les activités enzymatiques anti-oxydantes*

Les rats (8 par groupe) ont été exposés 3 heures par jour, 3 jours consécutifs à des dilutions de 2 % d'échappements provenant d'un moteur type Euro 3 utilisé avec un gazole à 50 ppm de soufre à un régime de 2500 rpm et à forte charge (50 Nm). Trois groupes d'animaux ont été considérés, ceux exposés :

- à l'échappement non traité (NT)
- à l'échappement filtré (Filtré) : filtre monolithe en carbure de silicium placé sur la ligne de prélèvement (actif à plus de 99% sur la rétention des particules)
- à l'échappement catalysé et filtré (CataFAP) : même type de filtre décrit ci-dessus. Les données fournies montrent l'efficacité du catalyseur d'oxydation en termes de suppression du CO et des hydrocarbures et révèlent une augmentation du ratio NO₂/NO_x (de 19 à 72%). Bien que des mesures en aval du FAP n'aient pas été réalisées en continu, le filtre utilisé n'était pas préalablement chargé en suies. Il n'y a donc vraisemblablement pas eu de modification sensible des concentrations de NO₂ sur la période expérimentale entre les émissions en amont du FAP et en aval du FAP (ce qui est susceptible de se produire lors d'une charge importante du FAP avec des suies) (Morin J-P et al., 2006). Ainsi, l'élimination des particules est le seul paramètre modifié entre les émissions en amont du FAP et les émissions en aval du FAP.

Les données disponibles sur les caractéristiques de l'aérosol utilisé sont une concentration en NO₂ de 1 ppm pour les conditions NT et filtrées et de 3,8ppm pour le CataFAP.

On notera que l'âge des animaux n'est pas précisé dans le rapport INSERM/CERTAM/INERIS (INSERM/CERTAM/INERIS, 2008).

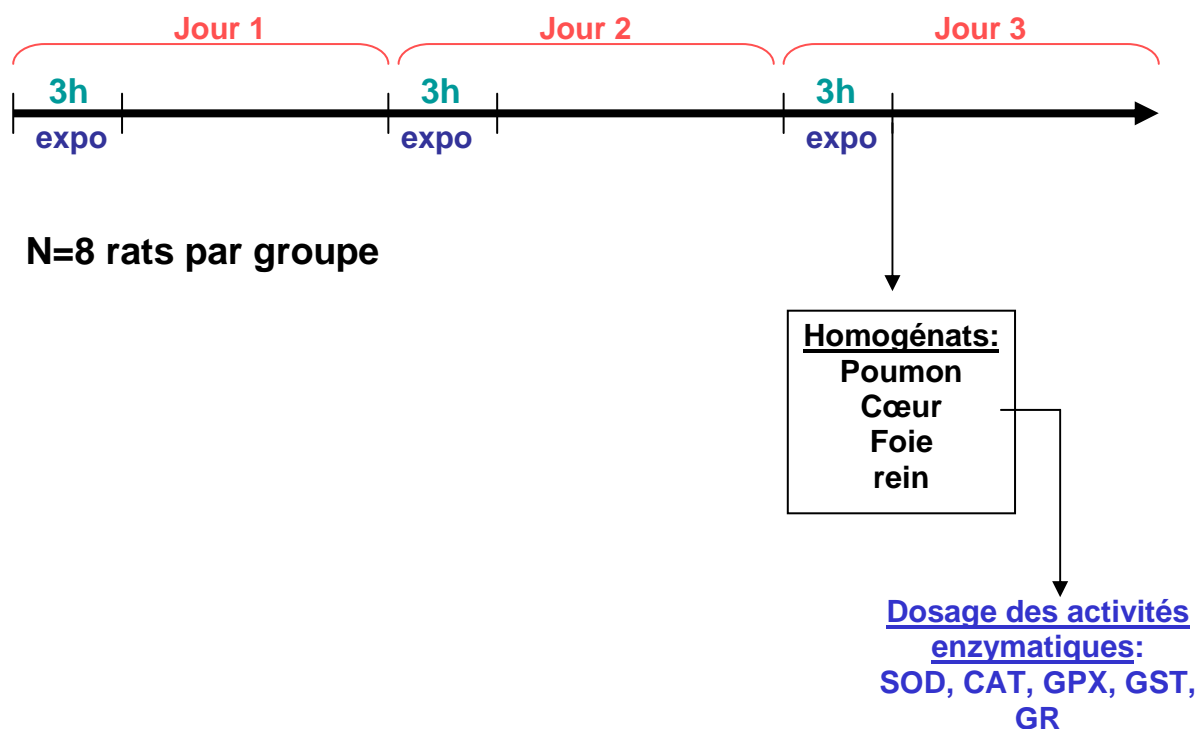
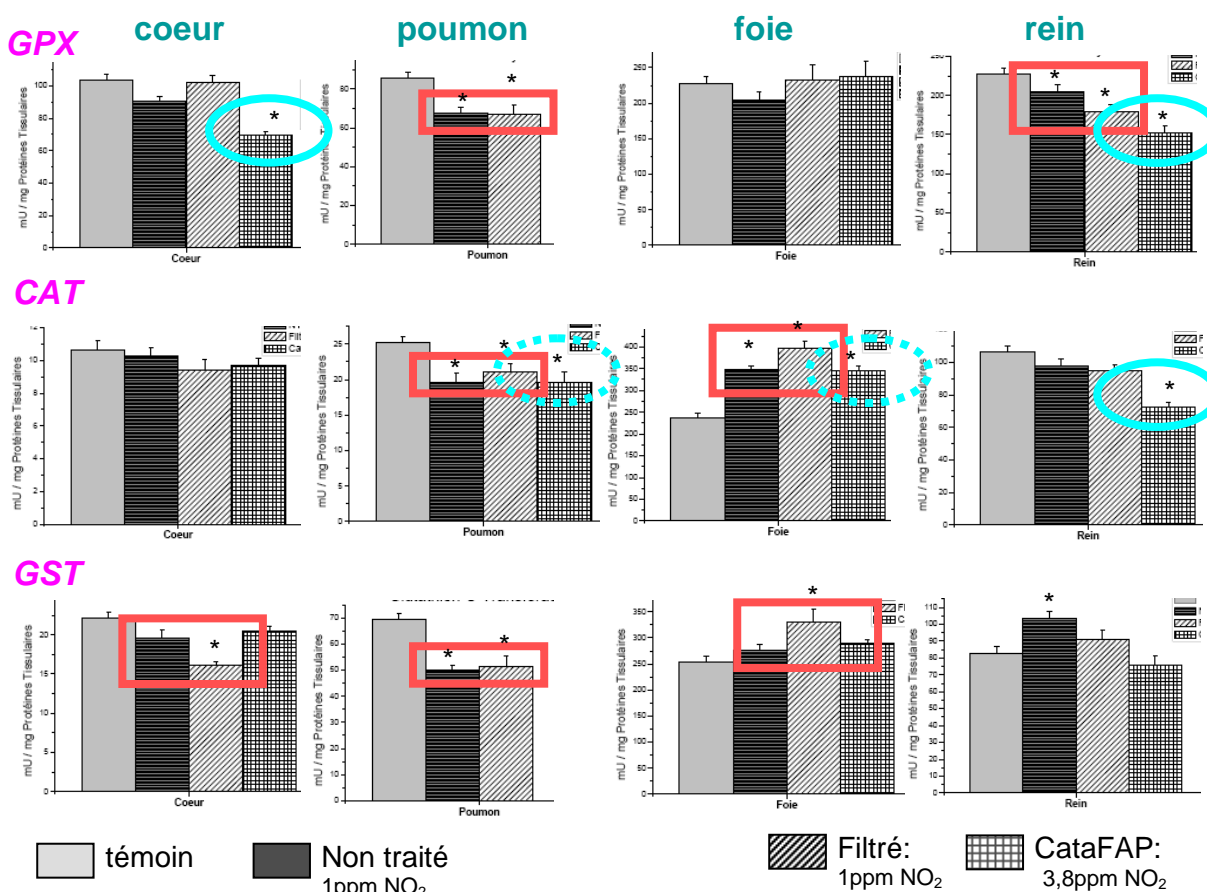


Figure 51 : Etude B : Méthodologie d'étude des enzymes antioxydantes

Pour la condition CataFAP, les concentrations de NO₂ ont été mesurées en aval du catalyseur, en amont du FAP.

Les quantités de particules, leur granulométrie, teneur en fraction organique soluble et métaux ne sont pas documentées pour chacune des conditions d'émission. Une publication mise en ligne sur le site technique DieselNet rapporte que le catalyseur d'oxydation peut diminuer ou augmenter les émissions totales de particules, notamment selon la teneur en soufre du carburant, la composition des particules émises par le moteur (notamment la fraction organique soluble) et le type de catalyseur d'oxydation (DieselNet, 2002). Il n'aurait pas d'effet significatif sur les émissions particulaires exprimées en carbone élémentaire (DieselNet, 2002). Enfin, la littérature rapporte des effets contradictoires du catalyseur d'oxydation sur les émissions de particules exprimées en nombre, selon la création ou non par nucléation de sulfates qui peuvent être comptés comme des particules (DieselNet, 2002). Toutefois, concernant les conditions d'émissions particulaires, la granulométrie et la teneur en particules ne sont en principe pas sensiblement modifiés par la catalyse d'oxydation par rapport à la filtration. La fraction organique soluble en l'absence de post-traitement des émissions est inférieure à 5% et ne peut qu'être réduite en aval du catalyseur d'oxydation (Ademe, 2005 ; DieselNet, 2002). La catalyse d'oxydation n'a pas de rôle connu sur la teneur en métaux.



Ces résultats permettent des comparaisons d'une condition d'émission (non traité, filtré, CataFAP) par rapport au témoin, mais pas de comparaisons entre les différentes conditions d'émission.

* Significativité de la différence par rapport au témoin

(Source : INSERM/CERTAM/INERIS)

Figure 52 : Etude B : Modulation des activités des enzymes antioxydantes

En ce qui concerne les activités enzymatiques anti-oxydantes au niveau pulmonaire, on assiste à une diminution des activités CAT, GPX et GST que les émissions non catalysées aient été filtrées ou non (Figure 52). Le fait que les résultats soient similaires pour l'émission non traitée et celle filtrée suggère un rôle de la phase gazeuse dans cette diminution des activités enzymatiques.

Au niveau pulmonaire, l'effet du CataFAP n'a pu être mesuré que sur la CAT²⁴ qui est diminuée (Figure 52). Cette diminution est du même ordre que celle provoquée par les deux autres conditions d'émission (NT, filtré) et suggère donc, là aussi, un rôle de la phase gazeuse des échappements dans cet effet.

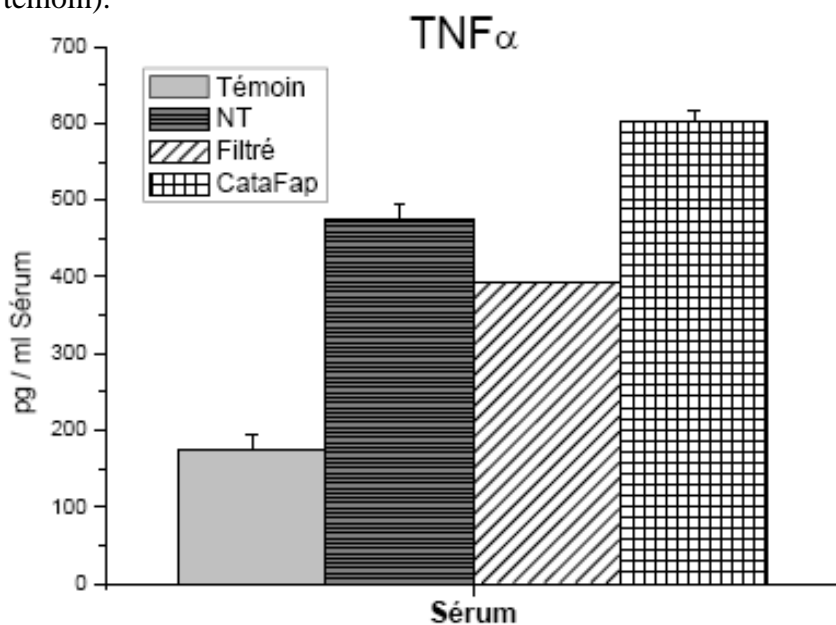
En ce qui concerne les activités enzymatiques anti-oxydantes au niveau rénal, ce sont à nouveau des diminutions d'activité qui sont observées pour la CAT mais uniquement dans la condition CataFAP, et pour la GPX pour toutes les conditions mais de façon plus importante pour le CataFAP (Figure 52).

Au niveau cardiaque, une diminution de l'activité de la GPX est observée dans la condition CataFAP (Figure 52).

Enfin pour les activités enzymatiques anti-oxydantes au niveau hépatique, une augmentation de la CAT et un niveau équivalent au témoin pour la GPX et GST sont observés avec la condition non filtrée (Figure 52). Avec la condition filtrée, l'activité de la CAT est là encore augmentée par rapport au témoin, ainsi que l'activité de la GST. Cette augmentation peut s'expliquer par le niveau de base élevé de ces enzymes dans le foie. Le stock important de ces enzymes permet au foie de faire face au stress oxydant alors que dans les autres organes où les niveaux d'enzymes sont moindres, si le niveau de stress oxydant est trop élevé ceci aboutit à une inhibition de l'activité des enzymes. Si l'on compare maintenant les niveaux de modulation des activités selon les systèmes de post traitement utilisés, il n'est pas observé de différence.

4.2.1.3.2 Effet sur l'inflammation systémique

Ces modulations des activités enzymatiques anti-oxydantes sont accompagnées d'une inflammation systémique révélée par une augmentation du taux de TNF α sérique avec la condition non filtrée (facteur 3 d'induction par rapport au témoin) (Figure 53). Le TNF α sérique n'est que modérément réduit par la filtration de l'échappement suggérant un rôle majeur de la phase gazeuse dans cet effet systémique. Il est clairement augmenté en présence du CataFAP (facteur 4 d'induction par rapport au témoin).



(Source : INSERM/CERTAM/INERIS)

Figure 53 : Etude B : Modulation du taux de TNF α sérique

24 Les données GPX et GST pour la condition CataFAP n'ont pu être obtenues à cause d'un problème de conservation des échantillons.

On notera que le taux de TNF α dans le lavage broncho-alvéolaire, en tant que marqueur d'un éventuel effet prooxydant sur la cible primaire des échappements, n'a pas été étudié, ni la cellularité du lavage bronchoalvéolaire.

4.2.1.3.3 Effet sur la fonction de reproduction

Ce même moteur équipé ou non du CataFAP, mais fonctionnant à faible charge, a été utilisé pour étudier l'impact sur la fonction de reproduction. Cependant ce sont des échappements qui ont été dilués à 4% (soit 2 ppm de NO₂) pour exposer des groupes de 6 rats Wistar pendant 4 ou 8 semaines à raison de 3 heures par jour, 5 jours par semaine. Les effets ont été mesurés 4 à 8 semaines après la fin de l'exposition. Il n'a pas été observé de modifications du nombre de spermatozoïdes comptés au niveau du testicule ou de l'épididyme ni d'atteinte de la mobilité spermatique.

En résumé on retiendra de l'étude B :

- **une réponse similaire en condition filtrée ou non filtrée pour les enzymes pulmonaires, qui suggère un rôle prépondérant de la phase gazeuse dans ces réponses,**
- **pour les enzymes hépatiques, rénales et cardiaques dont l'activité est modulée, une réponse accentuée en condition filtrée, confortant un rôle prépondérant de la phase gazeuse dans ces réponses,**
- **un effet plus marqué des émissions produites en aval du CataFAP sur la diminution de quelques activités enzymatiques anti-oxydantes rénales (GPX et CAT) et cardiaques (GPX),**
- **l'induction d'une inflammation systémique caractérisée par le niveau de TNF α sérique s'observe dans les trois conditions testées mais est plus marquée en présence du CataFAP, c'est à dire après filtration des particules et en présence d'émissions à l'échappement les plus chargées en NO₂ (Morin J-P et al., 2008) et les plus oxydantes. Les marqueurs de l'effet prooxydant sur la cible primaire des échappements que sont le TNF α du lavage bronchoalvéolaire et la cellularité de ce lavage, n'ont pas été étudiés.**

4.2.1.4 Etude C : comparaison d'échappements issus d'un moteur Diesel type Euro 3 catalysé ou non et dopé au NO₂ : effets sur les activités enzymatiques anti-oxydantes, l'inflammation systémique et la fonction cardiaque

Les rats ont été exposés 3 heures par jour, 3 jours consécutifs, à des dilutions de 2 % d'échappements provenant d'un moteur type Euro 3 utilisé avec un gazole à 50 ppm de soufre à un régime de 2500 rpm et à forte charge (50 Nm) (conditions semblables à l'étude B, voir Figure 51). Des rats sains et des rats rendus insuffisants cardiaques (IC) ont été utilisés. A chaque fois 4 groupes d'au moins 8 rats ont été considérés, ceux exposés :

- (a) à de l'air enrichi en NO₂ à 4 ppm.
- (b) à l'échappement non traité par la catalyse. Sa teneur en NO₂ est semblable à celle de l'étude B, soit 1 ppm.
- (c) à l'échappement non traité par la catalyse et dopé en NO₂ à 4 ppm.
- (d) à l'échappement catalysé, mais non filtré (Catadox) ayant une teneur en NO₂ de 4 ppm.

Le type de catalyseur et ses caractéristiques sont semblables à ceux utilisés dans l'étude B.

On notera que l'âge des animaux n'est pas précisé dans le rapport INSERM/CERTAM/INERIS (INSERM/CERTAM/INERIS, 2008). Au préalable, il convient également de noter qu'aucune analyse statistique n'est associée aux résultats présentés dans les figures 53 à 55 et issus du rapport INSERM/CERTAM/INERIS (INSERM/CERTAM/INERIS, 2008).

4.2.1.4.1 Effet sur les activités enzymatiques anti-oxydantes

Bien que la condition non traitée par catalyse (b) soit similaire à celle de l'étude précédente (étude B), on note une non reproductibilité de certains résultats entre les deux séries d'expérience pour les rats sains. Ainsi pour la CAT hépatique qui était augmentée d'environ 55% dans l'étude B, elle est maintenant diminuée d'environ 35%. D'ailleurs le niveau basal de cette enzyme (témoin) est très différent dans les deux études : de l'ordre de 220 mU/mg de protéines dans l'étude B et de 500 mU/mg de protéines dans l'étude C. Pour la GST pulmonaire, les niveaux du témoin entre B et C sont semblables mais les émissions non traitées sont associées à une diminution de son activité en B alors qu'elle reste stable en C. Pour la GPX pulmonaire, on observe là aussi une réaction inversée avec une diminution en B et une augmentation en C. L'âge des animaux pourrait être un des éléments explicatifs de ces différences observées entre les deux séries d'études. Les études B et C étant distantes de 18 mois, la source des protéines alimentaires apportées aux animaux durant cet intervalle est une autre hypothèse pouvant expliquer la différence observée pour les niveaux du témoin.

Ces différences et l'absence de test statistique entre les groupes exposés conduisent donc à interpréter les résultats suivants (Figure 54) avec précaution.

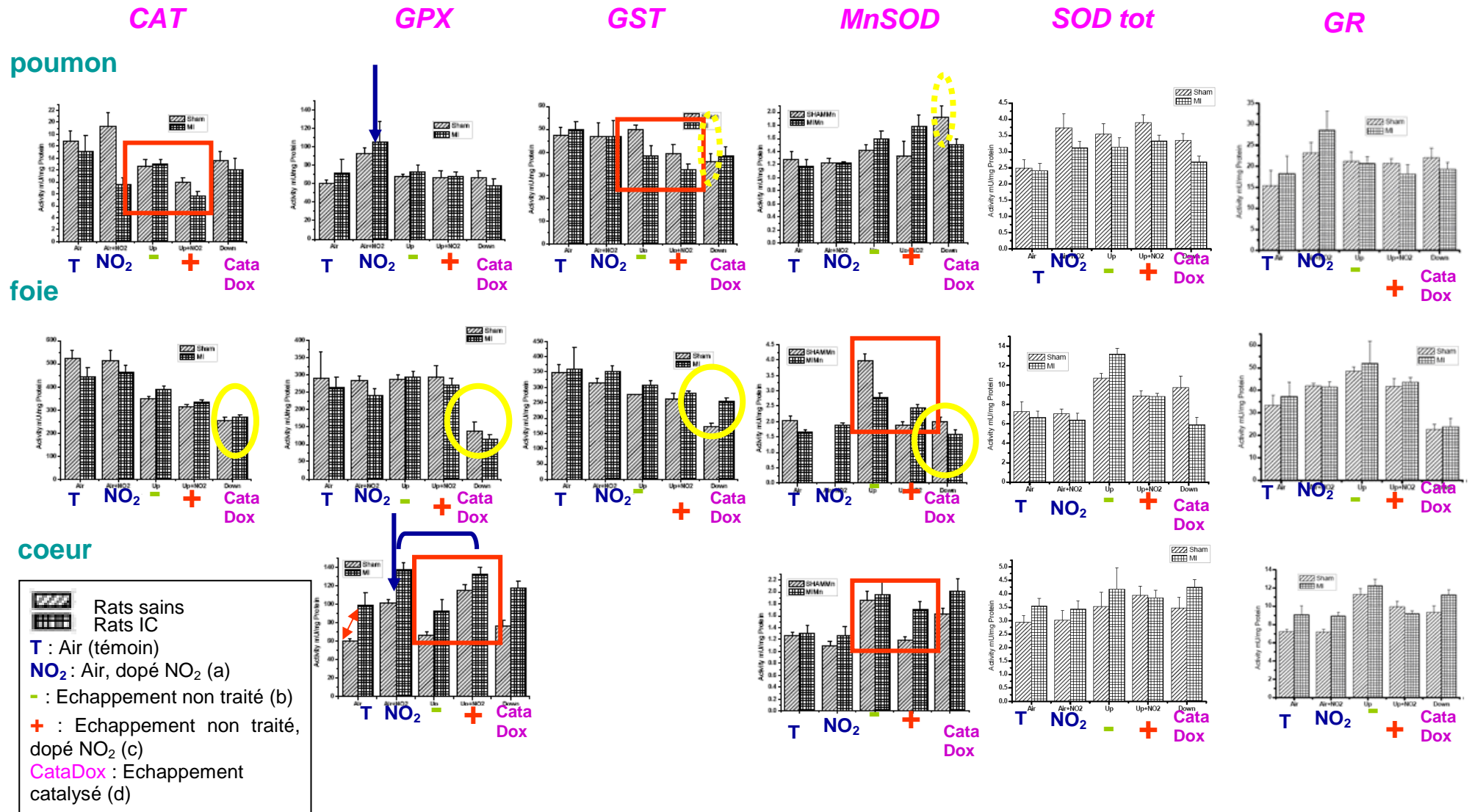
Lorsque l'on compare les échappements non catalysés dopés (c) ou non (b) au NO₂ (Figure 54), il n'apparaît pas de différences majeures en terme d'activités enzymatiques anti-oxydantes chez les rats sains à l'exception de la GPX cardiaque qui est nettement augmentée en présence de NO₂ et des MnSOD cardiaque et hépatique qui inversement sont fortement induites par l'échappement non supplémenté en NO₂ (b) et reviennent à un niveau identique au témoin en présence de NO₂ (c). Le NO₂, en passant de 1 à 4 ppm, ne jouerait donc pas de rôle majeur dans une modulation plus importante des activités enzymatiques anti-oxydantes lorsqu'il est associé à l'atmosphère complexe d'un échappement. De plus lors d'une exposition au NO₂ gaz seul à 4 ppm (a), on ne reproduit pas les réponses obtenues avec l'échappement dopé au NO₂ 4ppm (c), soulignant la contribution conjointe d'autres éléments présents dans l'échappement diesel à ces réponses. On notera que le NO₂ gaz augmente principalement les activités enzymatiques anti-oxydantes pulmonaires (GPX, GR, SOD totale) conformément aux résultats décrits par Ichinose et Sagai (1982) ainsi que la GPX cardiaque.

En conclusion, le NO₂ gaz (a) induit des activités enzymatiques pulmonaires et le dopage de l'échappement non catalysé au NO₂ (c) n'affecte que deux activités enzymatiques cardiaques et une hépatique, et ne modifie donc pas profondément le profil d'activités des enzymes anti-oxydantes.

En ce qui concerne la catalyse d'oxydation (d) (Figure 54), des effets importants se manifestent uniquement au niveau du foie où la CAT, la MnSOD, la GPX, la GST et la GR présentent une diminution importante de leur activité par rapport aux échappements non traités dopés (c) ou non (b) au NO₂ (sauf pour la MnSOD par rapport aux échappements non traités dopés). La catalyse d'oxydation produit un stress oxydant hépatique qui n'est donc pas reproduit par le NO₂ seul ou par le dopage au NO₂ d'un échappement non traité, suggérant l'implication conjointe du NO₂ et d'autres composés oxydants dans l'échappement Catadox. Par ailleurs, ces effets hépatiques n'avaient pas été observés dans l'étude B où le catalyseur était associé à un FAP. Ce constat suggère, pour les échappements catalysés non filtrés (d), une contribution des particules aux effets hépatiques observés.

Au niveau des enzymes pulmonaires, les émissions traitées avec un catalyseur d'oxydation (sans FAP) (d) présentent un impact limité et variable (parfois augmentation, parfois diminution de l'activité de l'enzyme) par rapport aux échappements non traités dopés (c) ou non (b) au NO₂.

En conclusion, il apparaît clairement que l'inhalation d'émissions traitées par catalyse d'oxydation provoque le stress oxydant le plus marqué au niveau hépatique.



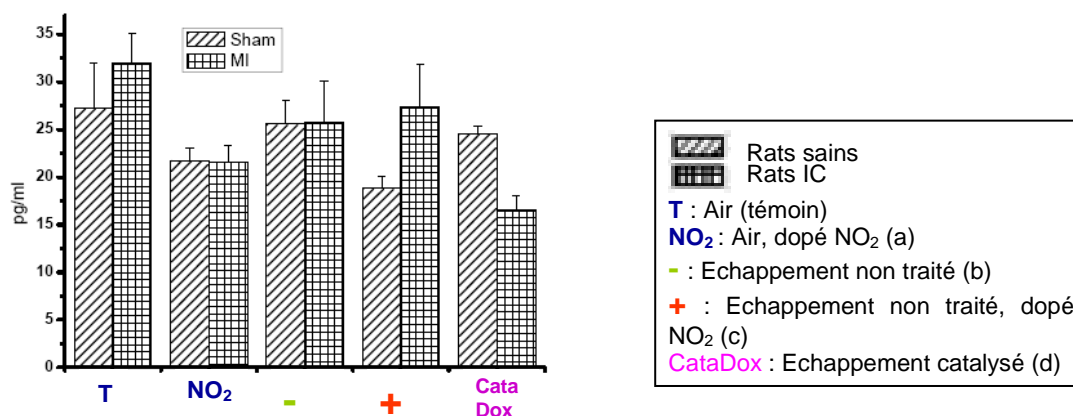
Ces résultats permettent des comparaisons d'une condition d'émission (non traité, CataDox, ...) par rapport au témoin, mais pas de comparaisons entre les différentes conditions d'émission.

(Source : INSERM/CERTAM/INERIS)

Figure 54 : Etude C : Modulation des activités des enzymes antioxydantes

Les rats sains diffèrent des rats insuffisants cardiaques (IC) par leur niveau basal de GPX et GR cardiaque qui est plus élevé chez les insuffisants cardiaques (Figure 54) avec, pour la GPX, une augmentation d'activité plus marquée pour toutes les conditions d'exposition par rapport aux rats sains (le statut oxydant des rats IC est connu pour être perturbé par rapport à celui des rats sains). Globalement les rats IC ne répondent pas de façon fondamentalement différente des rats sains aux différents échappements à l'exception de la CAT pulmonaire qui est davantage inhibée lors de l'exposition des rats IC au NO₂ gaz (a) et à l'échappement non catalysé et dopé au NO₂ (c).

Parallèlement aux activités enzymatiques anti-oxydantes, le niveau de peroxydation lipidique a été évalué par la mesure des isoprostanes plasmatiques (Figure 55) mais il n'est apparu aucune modification quels que soient les échappements considérés et l'état de santé des rats (rats sains, rats IC).

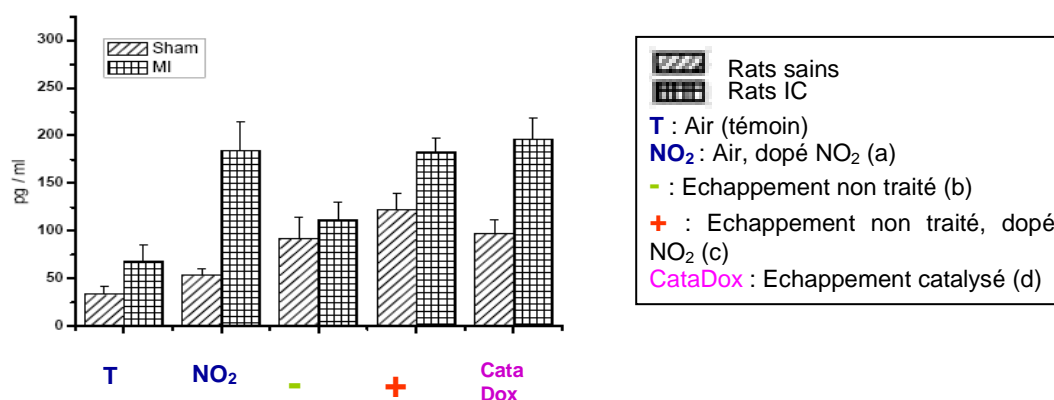


(Source : INSERM/CERTAM/INERIS)

Figure 55 : Etude C : Modulation du taux d'isoprostanes plasmatiques

4.2.1.4.2 Effet sur l'inflammation systémique

Il a été observé dans certaines conditions d'exposition une inflammation systémique caractérisée par une augmentation de la concentration de TNF α sérique (Figure 56).



(Source : INSERM/CERTAM/INERIS)

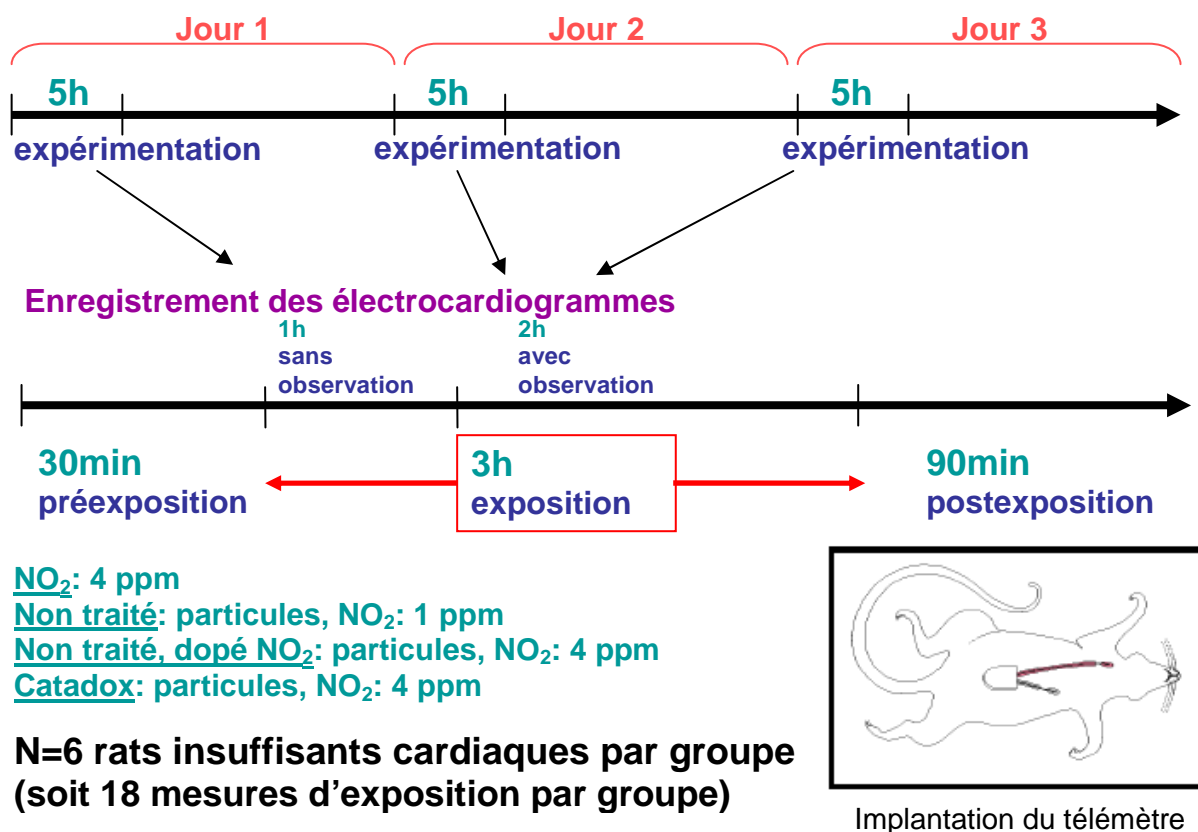
Figure 56 : Etude C : Modulation du taux de TNF α sérique

Ainsi chez les rats sains, le TNF α sérique n'est pas induit par le NO₂ seul (a) mais par les trois autres conditions, sans que toutefois il semble y avoir de différence significative entre elles. De plus, l'effet est maintenu lors de la filtration des émissions (Figure 53). Ces constats suggèrent un rôle de composés non particulaires autres que le NO₂ des échappements diesel dans l'induction d'une inflammation systémique mesurée par le taux de TNF α sérique.

Par contre, chez les rats insuffisants cardiaques, on assiste à une très forte augmentation du TNF α sérique, qui est d'ailleurs du même niveau, dans toutes les conditions où il y a 4ppm de NO₂ (a, c et d). Il n'est cependant pas possible d'impliquer ni d'exclure avec certitude le seul stress oxydant induit par le NO₂ dans cette réponse puisqu'il n'a pas été observé de différences claires entre les deux populations d'animaux ni dans la réponse de leurs activités enzymatiques anti-oxydantes (sauf pour la glutathion peroxydase chez les rats IC), ni dans les niveaux d'isoprostanes, quels que soient les types d'échappement.

4.2.1.4.3 Effet sur la fonction cardiaque

Seuls des rats IC ont été utilisés, à raison de 6 rats par condition d'exposition. Les conditions d'exposition correspondent à celles utilisées pour l'étude des activités enzymatiques soit 3 heures par jour, 3 jours consécutifs à des dilutions de 2 % d'échappements provenant d'un moteur type Euro 3 utilisé avec un gazole à 50 ppm de soufre à un régime de 2500 rpm et à forte charge (50 Nm) avec les conditions d'émission (a), (b), (c) et (d). Un même rat n'a été exposé qu'à une seule condition d'émission (NO₂ seul, échappement catalysé, ...), chaque rat étant son propre témoin afin de pouvoir considérer la variabilité intra-espèce des effets cardiaques étudiés chez des rats rendus insuffisants cardiaques.

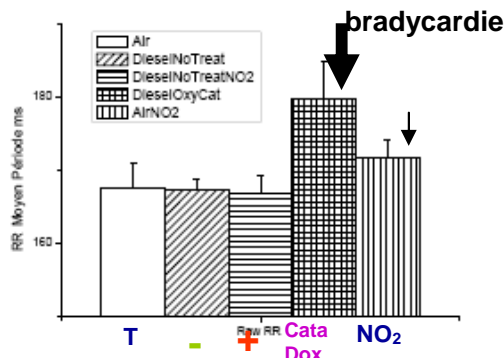


(Source : INSERM/CERTAM/INERIS)

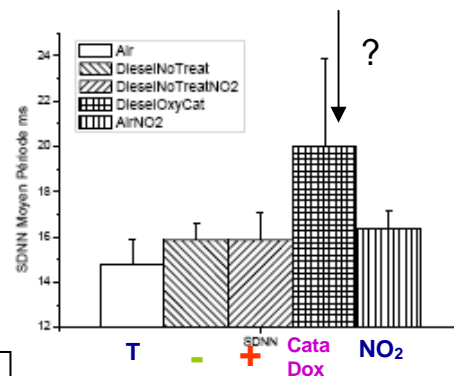
Figure 57 : Etude C : Méthodologie d'étude de la fonction cardiaque

Pour chaque groupe, les 18 mesures d'exposition ont été enregistrées et analysées individuellement, les moyennes obtenues étant rapportées dans la Figure 58.

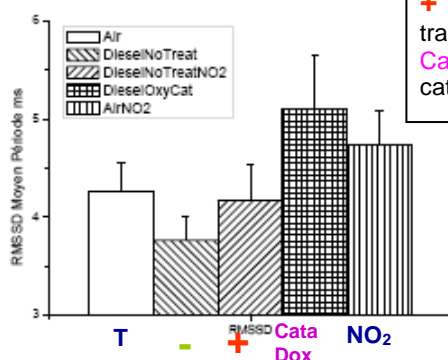
RR (fréquence cardiaque)



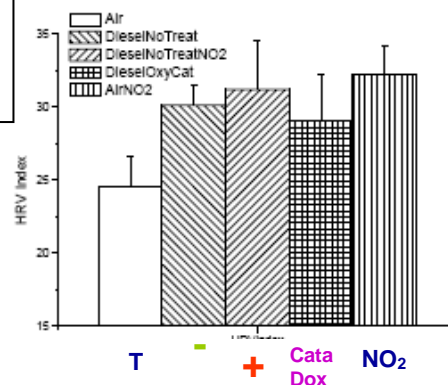
SDNN



RMSSD



HRV



T : Air (témoin)
 NO₂ : Air, dopé NO₂ (a)
 - : Echappement non traité (b)
 + : Echappement non traité, dopé NO₂ (c)
 CataDox : Echappement catalysé (d)

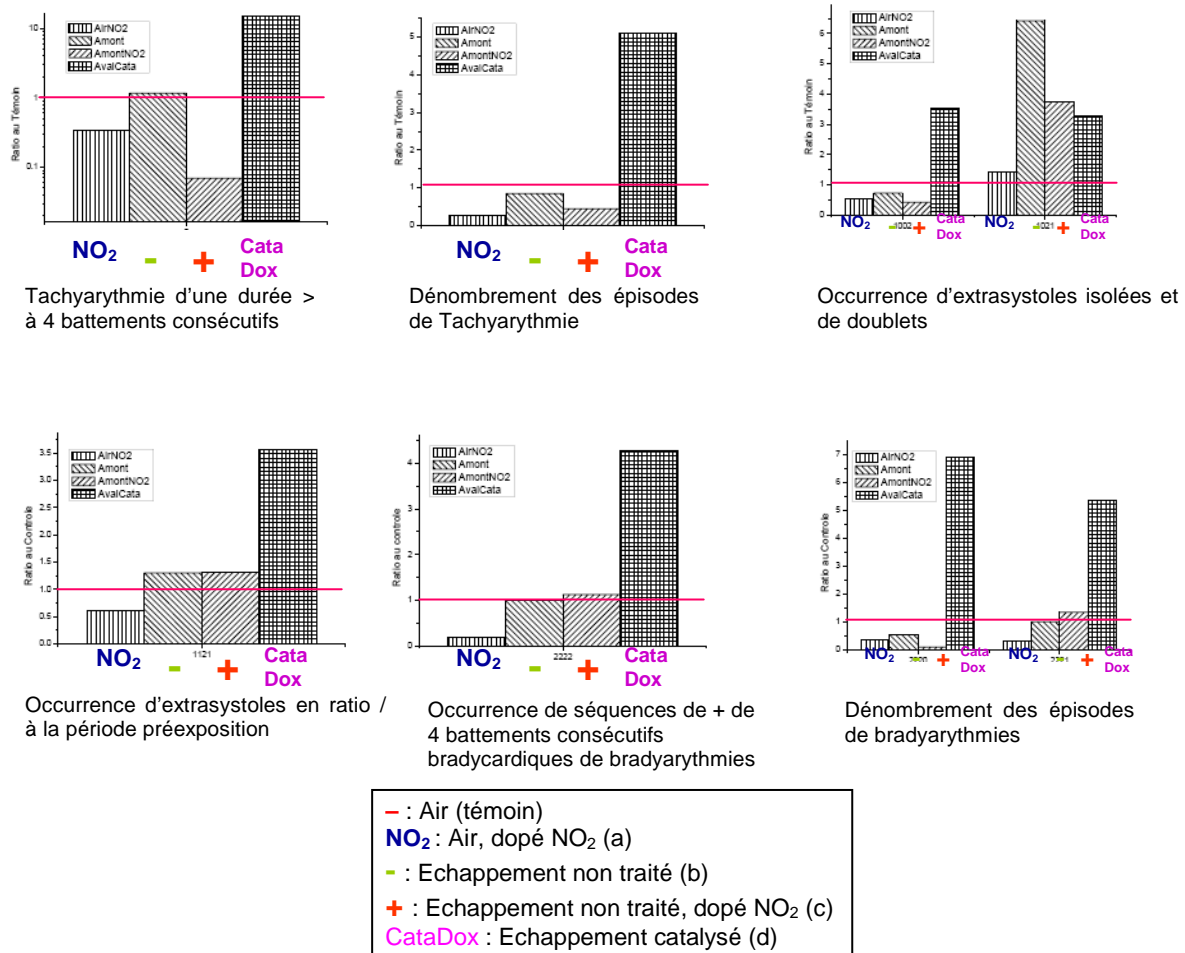
(Source : INSERM/CERTAM/INERIS)

Figure 58 : Etude C : Modulation des paramètres de fréquence et variabilité du rythme cardiaque

Pour la lecture de la Figure 58, une diminution des paramètres de variabilité cardiaque (SDNN, RMSSD et HRV triangle index) suggère un pronostic cardiaque défavorable. Une augmentation du paramètre de fréquence cardiaque (RR) indique un effet bradycardisant.

Il apparaît une nette bradycardie (diminution de la fréquence cardiaque) et une augmentation du SDNN et RMSSD lors de l'exposition aux échappements catalysés alors que le HRV index n'est pas modifié. L'augmentation du RMSSD est liée à une plus grande variabilité entre chaque battement cardiaque qui est communément observée en condition de bradycardie. De plus la situation de bradycardie est généralement plus propice au déclenchement d'événements arythmiques.

L'analyse par dynamique symbolique présentée dans le rapport INSERM/CERTAM/INERIS (INSERM/CERTAM/INERIS, 2008) conclut en une forte augmentation de battements arythmiques lors de l'exposition aux échappements catalysés (Figure 59).



(Source : INSERM/CERTAM/INERIS)

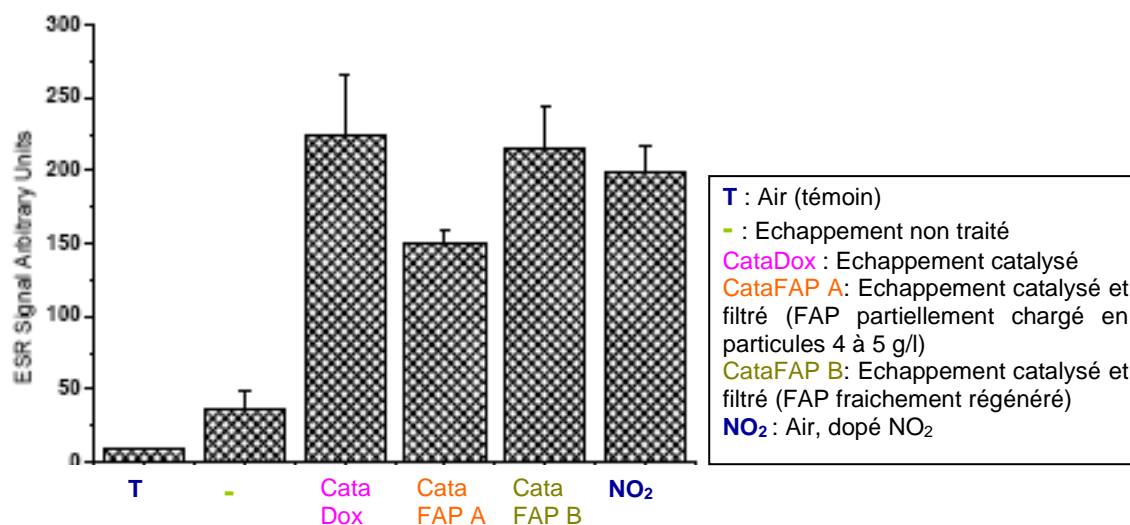
Figure 59 : Etude C : Quantification des épisodes arythmiques par dynamique symbolique

On notera qu’au niveau cardiaque chez les rats IC, il n’y a pas de modifications majeures des enzymes antioxydantes en particulier pour la catalyse d’oxydation (seule la GR est réduite) (Figure 54) pour laquelle les effets cardiaques (bradycardie, arythmie) sont les plus importants (Figure 58 et 59).

4.2.1.5 Mesures de radicaux libres en conditions abiotiques par résonance paramagnétique électronique (RPE)

Le potentiel oxydant des émissions, évalué dans les études B et C par la mesure de l’activité d’enzymes anti-oxydantes chez le rat, a été par ailleurs étudié en conditions abiotiques par des mesures en RPE réalisées dans le cadre du programme MAAPHRI et considérées dans les travaux INSERM/CERTAM/INERIS (INSERM/CERTAM/INERIS, 2008).

Les mesures du signal de RPE ont été réalisées dans le système d’exposition de tranches pulmonaires décrit par Bion et al. (Bion A. et al., 2002), en l’absence de tissu biologique, les fioles d’exposition contenant 1,5 ml de milieu de culture DMEM / Ham F12 additionné de carboxy-hydroxy-pyrrolidine (CPH) comme piègeur de radicaux. L’exposition a été effectuée pendant 45 minutes à un flux continu d’atmosphère test. Les échappements moteurs ont été dilués au 1/10ème. Pour la condition d’exposition à l’air dopé en NO₂, la concentration de NO₂ a été ajustée à 4 ppm pour correspondre à la concentration de NO₂ dans les échappements catalysés.



(Source : INSERM/CERTAM/INERIS)

Figure 60 : Mesures des radicaux libres O₂^{°-} et ONOO⁻ par résonance paramagnétique électronique

Il apparaît que le potentiel oxydant de l'atmosphère test, caractérisé ici par une mesure des radicaux O₂^{°-} et ONOO⁻, est fortement augmenté par le traitement par catalyse d'oxydation en conditions filtrées ou non filtrées, et par l'addition de NO₂ dans de l'air « propre » (Figure 60). La charge partielle du filtre avec des particules, qui induit une diminution des émissions de NO₂ expliquée par l'interaction NO₂/suies dans le FAP, conduit à une diminution partielle du potentiel oxydant de l'émission.

On notera que le statut oxydant des émissions, sur la base des radicaux mesurés en milieu de culture (Figure 60) n'est pas corrélé au niveau d'inflammation systémique induit par ces mêmes émissions chez le rat sain par inhalation (Figure 53 et Figure 56).

4.2.1.6 Conclusions

Ces travaux renseignant sur les effets chez l'animal d'échappements diesel traités (catalyseur d'oxydation et/ou filtre à particules) ou non, dopés ou non au NO₂, ont attiré l'attention du groupe de travail au regard de la problématique qui lui était posé et en l'absence d'autres travaux de ce type retrouvés dans la littérature.

En conclusion, toutes les émissions contenant du NO₂ sont génératrices de radicaux libres mesurés en condition abiotique (par résonance paramagnétique électronique). Dans les conditions d'expérience, les niveaux de radicaux libres produits en condition abiotique sont similaires pour des teneurs en NO₂ équivalentes.

- **Chez le rat sain :**

La phase gazeuse de l'échappement non catalysé semble particulièrement impliquée dans la modulation de l'activité d'enzymes anti-oxydantes, notamment au niveau pulmonaire.

Le NO₂ seul permet d'expliquer ces modulations uniquement dans le cas de la GPX au niveau du cœur, suggérant que pour les autres cibles, le NO₂ intervienne conjointement à d'autres oxydants.

L'exposition à des émissions issues d'un moteur catalysé provoque un stress oxydant hépatique qui ne s'observe plus si cet échappement est filtré.

Quelles que soient les conditions d'échappements testées, il n'a pas été observé d'élévation du taux d'isoprostanes plasmatiques, biomarqueur d'une peroxydation lipidique.

Les différentes émissions testées induisent toutes une inflammation systémique évaluée par la mesure du TNF α sérique et la phase gazeuse de ces émissions semble responsable de cet effet.

L'élévation du TNF α sérique n'est pas reliée à la teneur en NO₂ des échappements ni à leur potentiel oxydant en condition abiotique.

- **Chez le rat insuffisant cardiaque :**

L'exposition de rats insuffisants cardiaques à des émissions catalysées (non filtrées) provoque :

- **une inflammation systémique et une activation de la GPX cardiaque en lien avec les niveaux de radicaux produits en condition abiotique ;**
- **une importante bradycardie ;**
- **une importante bradyarythmie.**

Lors de l'exposition au NO₂ seul, une bradycardie de moindre importance est observée. Par ailleurs, les émissions diesel non traitées dopées au NO₂ n'entraînent aucune modification significative par rapport au témoin.

4.2.2 Etude expérimentale in vitro

4.2.2.1 Introduction

En complément des études expérimentales d'exposition chez l'animal en chambre d'émission présentées ci-dessus, une étude in vitro menée dans le cadre du programme de recherche MAAPHRI-PCRD5²⁵ apporte également des éléments intéressants quant à l'impact d'un catalyseur d'oxydation sur la toxicité des échappements Diesel et l'évaluation du rôle de la phase gazeuse.

Certains résultats relatifs à cette étude et retenus par le groupe de travail sont présentés ci-dessous. Ils sont en particulier issus de l'analyse de l'article intitulé « *prevalidation of in vitro continuous flow exposure systems as alternatives to in vivo inhalation safety evaluation experiments: outcome from MAAPHRI-PCRD5 research program* » (Morin J-P et al, 2008).

4.2.2.2 Objectifs de l'étude

L'étude dont fait l'objet la publication susmentionnée a eu deux objectifs principaux :

- Validation d'un modèle de cultures organotypiques de poumon exposées in vitro à une atmosphère complexe par comparaison du profil toxicologique induit par cette même atmosphère chez le rat exposé par inhalation.
- Évaluation de l'impact d'un catalyseur d'oxydation sur la toxicité des échappements Diesel et évaluation du rôle de la phase gazeuse.

Seule la seconde partie de ces travaux, en lien avec l'impact de la catalyse d'oxydation en condition filtrée ou non, est ici exploitée.

4.2.2.3 Description de l'étude

Le principe de l'étude repose sur l'exposition de tranches de poumons de rats, dans les 72 heures suivant le prélèvement des poumons et la réalisation des coupes, à des émissions Diesel. La durée d'exposition est de 3 heures.

Quatre types d'émissions ont été testés :

Panel A₁ : émissions Diesel totales (phases gazeuse et particulaire) présentant un **faible ratio NO₂/NO_x** (système avec EGR, sans catalyse d'oxydation) ;

Panel A₂ : émissions Diesel filtrées (phase gazeuse uniquement) présentant un **faible ratio NO₂/NO_x** (système avec EGR, sans catalyse d'oxydation)

Panel B₁ : émissions Diesel totales (phases gazeuse et particulaire) présentant un **fort ratio NO₂/NO_x** (système sans EGR, avec catalyse d'oxydation).

Panel B₂ : émissions Diesel filtrées (phases gazeuse uniquement) présentant un **fort ratio NO₂/NO_x** (système sans EGR, avec catalyse d'oxydation).

Pour chacun de ces panels, 1 témoin et 3 tests ont été réalisés. Pour chaque test, une chambre d'exposition comporte 5 fioles avec chacune 3 tranches de poumon.

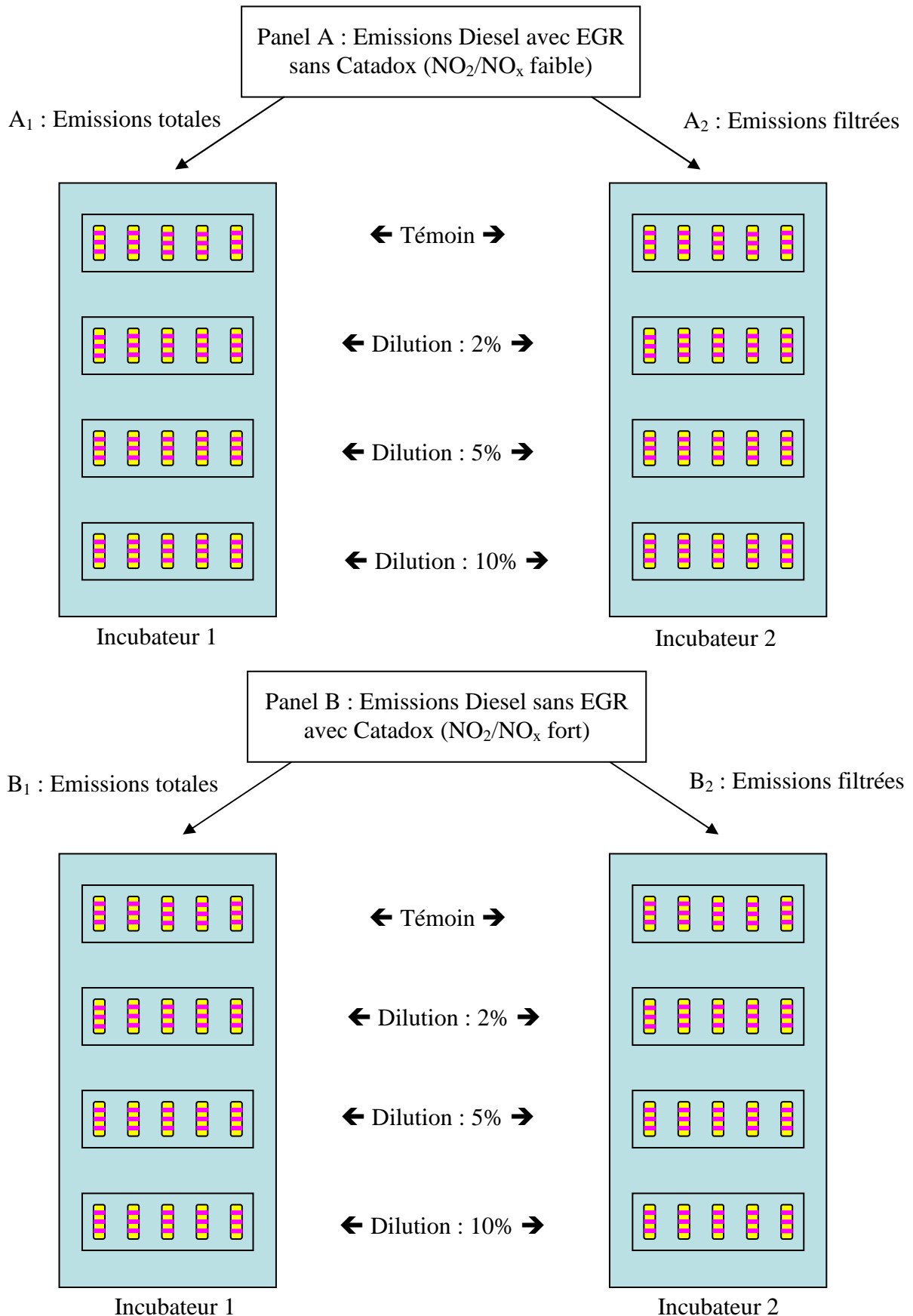
Test 1 : l'air auquel sont exposées les tranches de poumon contient 2% d'émissions Diesel (concentration en NO₂ de 0,4 ppm pour les panels A₁ et A₂, et de 8 ppm pour les panels B₁ et B₂) ;

Test 2 : l'air auquel sont exposées les tranches de poumon contient 5% d'émissions Diesel (concentration en NO₂ de 1 ppm pour les panels A₁ et A₂, et de 20 ppm pour les panels B₁ et B₂) ;

²⁵ Multidisciplinary approach to airborne pollutant health related issues

Test 3 : l'air auquel sont exposées les tranches de poumon contient 10% d'émissions Diesel (concentration en NO₂ de 2 ppm pour les panels A₁ et A₂, et de 40 ppm pour les panels B₁ et B₂) ;

La figure ci-dessous schématise les différents essais réalisés.



La toxicité a ensuite été évaluée au regard de réponses, positives ou négatives, sur différents paramètres biologiques tels l'ATP, différents traceurs du stress oxydant (GPX, GST, CAT, GSH, SOD, 8-oxo), le TNF α (marqueur d'une réponse pro-inflammatoire), et différents marqueurs d'apoptose (nucléosomes, tunel, DNA ladder).

4.2.2.4 Résultats et conclusions retenus par le groupe de travail

Compte tenu de l'analyse de l'article réalisée, le groupe de travail a retenu de façon consensuelle les éléments suivants :

- In vitro, l'exposition pendant 3 heures de tranches de poumons de rats à des émissions de moteur Diesel produit des effets toxiques dont la publication ne permet pas cependant d'apprécier précisément l'importance quantitative.
- La filtration des émissions avec EGR sans catalyseur d'oxydation fait disparaître les effets sur l'apoptose et sur l'inflammation et atténue ceux observés sur le stress oxydant indiquant un rôle de la phase particulaire dans ces effets.
- L'exposition aux émissions de moteur Diesel sans EGR et avec catalyseur d'oxydation produit des effets toxiques marqués qui se maintiennent lorsque l'émission est filtrée indiquant un rôle de la phase gazeuse dans ces effets.
- Cependant, ces conclusions sont à nuancer par la très forte cytotoxicité constatée à ces niveaux d'exposition et attestée par la déplétion en ATP et glutathion ainsi que l'absence de réponse des marqueurs de l'apoptose, ce qui indique une mort cellulaire par nécrose.
- La comparaison des résultats obtenus avec et sans catalyseur d'oxydation montre des effets toxiques plus importants avec catalyseur d'oxydation confortant en cela les résultats observés in vivo.

4.2.3 Conclusion

Le potentiel oxydant mesuré en conditions abiotiques est fortement corrélé à la teneur en NO₂ de l'émission.

Les impacts d'expositions chez le rat (sain et insuffisant cardiaque) à des émissions diluées de moteurs diesel :

- traitées ou non par catalyse d'oxydation²⁶,
- associée ou non à un filtre à particules, et
- enrichies (7200 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) ou non en NO₂,

sur les fonctions cardiaques, rénales et reproductives, et sur le stress oxydant pulmonaire et systémique, et sur l'inflammation systémique ont été étudiés.

Les résultats présentés ici proviennent d'une réanalyse des travaux de l'équipe Inserm/Certam/Ineris.

Ces expositions correspondent à des niveaux élevés par rapport à celles habituellement rencontrées en milieu ambiant.

²⁶ Catalyseur à forte charge en Platine

Au final :

- D'une part, concernant les émissions de moteurs diesels traitées par catalyse d'oxydation (non filtrées), les résultats obtenus suggèrent une augmentation de l'inflammation systémique, un stress oxydant marqué au niveau hépatique et un effet sur la fonction cardiaque (bradycardie et bradyarythmie) qui semblent plus importants que pour les émissions non catalysées pour ces deux derniers effets. La teneur en NO₂ de ces émissions constitue un traceur de leur traitement par catalyse d'oxydation et de leur potentiel oxydant ;
- D'autre part, concernant les émissions de moteurs diesels traitées par catalyse d'oxydation associée à un filtre à particules, les résultats obtenus suggèrent aussi des effets plus marqués que pour les émissions non catalysées : modulation de l'activité de quelques enzymes impliquées dans la défense anti-oxydante, inflammation systémique. L'existence d'effets sur l'inflammation systémique, après filtration des échappements, suggère un rôle de la phase gazeuse dans ces effets.

Par ailleurs, les effets de l'exposition de tranches de poumons de rat à des émissions de moteur diesel sur le stress oxydant, l'apoptose²⁷ et l'inflammation ont été étudiés. La comparaison des résultats obtenus avec et sans catalyseur d'oxydation montre des effets toxiques plus importants avec catalyseur d'oxydation confortant en cela les résultats observés précédemment in vivo.

En résumé, les émissions de moteurs diesels traitées par catalyse d'oxydation, qu'elles soient ou non filtrées, semblent induire chez le rat des effets biologiques plus marqués que les émissions non catalysées. La teneur en NO₂ de ces émissions constitue un traceur de leur traitement par catalyse d'oxydation et de leur potentiel oxydant. Cependant, tant les données épidémiologiques que les données toxicologiques ne permettent pas d'exclure le rôle d'autres espèces pro oxydantes émises conjointement.

²⁷ Mort cellulaire programmée

5 Mise en perspective de niveaux d'exposition au NO₂ (actuels et prospectifs) au regard de différentes valeurs de référence (VTR, AQG, VLEP)

5.1 Introduction

Le troisième axe de travail du GT prévoit notamment d'identifier différents « scénarios types » d'exposition (dont des scénarios de type « travailleurs »), de rechercher dans la littérature récente des données de concentrations d'exposition pour ces scénarios et de fournir à minima une évaluation qualitative du risque (cf .1.3.1).

Dans le cadre de cette analyse, la démarche retenue a consisté à :

- identifier et sélectionner les valeurs toxicologiques de référence (VTR), les valeurs guides de qualité de l'air (AQG), et les valeurs limites d'exposition professionnelle (VLEP) qui pouvaient être mises en perspectives avec des niveaux d'exposition au NO₂ ;
- identifier les principaux déterminants de l'exposition : milieux pouvant être sensiblement impactés par une modification des technologies de véhicules du parc roulant, populations principalement exposées, voie(s) d'exposition concernée(s), durées et fréquences d'exposition ;
- estimer les niveaux d'exposition en fonction des émissions de NO₂ du parc automobile entre 2007 et 2014 ;
- mettre en perspective les niveaux d'exposition estimés avec les valeurs de référence retenues pour la population générale d'une part, et pour la population professionnelle d'autre part.

Pour estimer les niveaux d'exposition, le GT s'est notamment appuyé, en complément des données d'émission de NO et NO₂ des véhicules routiers produites au préalable par le GT (cf 2.), sur les données produites dans le cadre de deux études françaises récentes mesurant le NO₂ dans l'habitacle de véhicules insérés dans le trafic (cf 3.5), et notamment sur les observations convergentes entre ces deux études (cf 3.5.4).

5.2 Identification et sélection de valeurs « sanitaires » de référence (VTR, AQG, VLEP) pour le NO₂

5.2.1 Méthode

Afin d'identifier les valeurs « sanitaires » de référence existantes et relatives au dioxyde d'azote, différentes bases de données ont été consultées :

1) Les valeurs toxicologiques de référence (VTR) disponibles pour des expositions aiguës et/ou chroniques par inhalation ont été recherchées dans les bases de données toxicologiques internationales (US-EPA/IRIS, ATSDR, OMS, RIVM, Santé Canada et OEHHA).

Une valeur toxicologique de référence, ou VTR, est un indice toxicologique qui permet de qualifier ou de quantifier un risque pour la santé humaine. Elle établit le lien entre une exposition à une substance toxique et l'occurrence d'un effet sanitaire indésirable. Les VTR sont spécifiques d'une durée d'exposition (aiguë, subchronique ou chronique) et d'une voie d'exposition (orale ou respiratoire).

2) Les valeurs guides de qualité de l'air existantes, basées pour tout ou partie sur des critères sanitaires, ont été recherchées dans le document Air Quality Guidelines, global update 2005 – OMS Europe, 2006 (OMS, 2006).

Une valeur guide de qualité d'air est, selon l'OMS, une valeur numérique associée à un temps d'exposition correspondant à une concentration dans l'air d'une substance chimique en dessous de laquelle aucun effet sanitaire ou (dans le cas de composés odorants) aucune nuisance ou aucun effet indirect important sur la santé n'est en principe attendu pour la population générale. Une valeur guide ne garantit néanmoins pas l'exclusion absolue d'effet à des concentrations en dessous de la valeur proposée.

Remarque : cette définition est généralement applicable dans le cadre de valeurs guides construites pour protéger d'effets à seuil de dose. Dans le cas d'effet sans seuil, tels que les effets cancérigènes dont le mode d'action est génotoxique, il existe aussi des valeurs guides mais celles-ci sont exprimées sous la forme de niveaux de risque correspondant à une probabilité de survenue de la maladie.

3) Les valeurs limites d'exposition professionnelle (VLEP) ont été recherchées au sein de la base de données GESTIS²⁸ qui recense les principales VLEP en Europe et de quelques pays non européens. Cette base de données est administrée par le BGIA, institut allemand pour la protection et la sécurité des travailleurs. En complément, les données américaines issues de l'ACGIH (American conference of governmental industrial hygienists), du NIOSH (National institute for occupational safety and health) et de l'OSHA (Occupational safety and health administration) ont également été recherchées.

Une valeur limite d'exposition professionnelle est, pour un composé chimique donné, la concentration dans l'air que peut respirer une personne pendant un temps déterminé sans risque d'altération pour sa santé, même si des modifications physiologiques réversibles sont parfois tolérées. Aucune atteinte organique ou fonctionnelle de caractère irréversible ou prolongé n'est raisonnablement prévisible. Ce niveau de concentration est déterminé en considérant que la population exposée (les travailleurs) est une population qui ne comprend ni enfants ni personnes âgées (INRS, 2007).

Au niveau européen, la notion de valeur limite est actuellement définie par la directive 98/24/CE du 7 avril 1998. Un comité d'experts européen (Scientific committee on occupational exposure limits ou SCOEL) s'est vu chargé de l'élaboration de valeurs limites.

Remarques :

- Les valeurs limites doivent être considérées comme des objectifs minimaux.
- L'existence de VLEP suppose des méthodes connues pour l'échantillonnage, l'analyse et le dosage des substances.
- La notion même de valeur limite admet l'existence d'une nuisance sur les lieux de travail ; elle ne peut donc définir une qualité optimale de l'air ambiant. Dans ce contexte, certaines personnes particulièrement sensibles développent une réponse anormale (gêne insupportable à des niveaux considérés comme faibles, révélation ou induction d'un état pathologique, allergie...) et ne sont pas protégées valablement.
- Jusqu'en 2005, en France, la fixation des valeurs limites intégrait non seulement des critères scientifique et techniques, mais également sociaux et économiques, voire psychologiques. Depuis, c'est à l'Afsset qu'a été confiée l'organisation de l'expertise scientifique nécessaire à la fixation

28 http://dguv.de/bgia/en/gestis/limit_values/index

des VLEP. Cette phase d'expertise consiste, d'une part à évaluer les effets des substances chimiques sur la santé humaine, en vue de fournir des recommandations quant aux valeurs éventuelles à retenir afin de protéger la santé des travailleurs et d'autre part, à évaluer les méthodes de mesure disponibles, en vue de recommander des méthodes de mesure techniquement applicables pour le mesurage des niveaux d'exposition sur les lieux de travail. Les niveaux de concentration proposés à l'administration pour la fixation des VLEP sont déterminés en considérant que la population exposée (les travailleurs) est une population qui ne comprend ni enfants ni personnes âgées.

D'autres types de valeurs ont également été identifiés ; il s'agit de seuils d'intervention ou seuils limites d'exposition.

En France, l'Inéris propose deux types de seuils : les seuils d'effets irréversibles (SEI) et les seuils d'effets réversibles (SER). Ces seuils ont été établis afin d'être utilisés dans des scénarios d'émission accidentelle d'une substance toxique dans l'atmosphère par un site industriel. Les études utilisées pour la proposition de ces seuils considèrent des conditions d'exposition au NO₂ seul.

Aux Etats-Unis, l'US-EPA propose d'autres types de seuils nommés AEGLs (Acute exposure guideline levels). Il s'agit de seuils limites d'exposition, prévus pour décrire le risque chez l'homme résultant d'une exposition « monopolluant », unique (sur une vie) ou rare. Ils concernent la population générale, incluant les personnes dites sensibles.

Trois seuils distincts existent, concentrations atmosphériques au-delà desquelles il est pronosticable :

- AEGL-1 : une gêne notable, irritation, ou certains effets asymptomatiques non ressentis : effets non-invalidants, transitoires, et réversibles dès arrêt de l'exposition ;
- AEGL-2 : des effets néfastes irréversibles ou, sérieux et durables ou, altérant la capacité de se soustraire à l'exposition ;
- AEGL-3 : des effets affectant le pronostic vital ou décès.

5.2.2 Valeurs recensées

5.2.2.1 Valeurs toxicologiques de référence (VTR)

Source	Voie d'exposition et durée	Facteur d'incertitude	Valeur	Effet critique
OEHHA (1991)	Inhalation aiguë (1h)	1	REL* = 0,25 ppm (470 µg/m ³)	Augmentation de la réactivité bronchique chez les asthmatiques

*REL : Reference exposure level

5.2.2.2 Valeurs guides

Source	Voie d'exposition et durée	Valeur	Effet critique	Population cible
OMS Europe (2006)	Inhalation chronique (1 an)	40 µg/m ³ (AQG)	-	Population générale
OMS Europe (2006)	Inhalation aiguë (1h)	200 µg/m ³ (AQG)	Augmentation de la réactivité bronchique chez les asthmatiques	Population générale
Environnement Canada (1989)	Inhalation (24h, max acceptable)	200 µg/m ³ (NAAQO*)	?	Population générale

*NAAQO : National ambient air quality objective

5.2.2.3 Valeurs limites d'exposition professionnelle

Pays	Valeur limite sur 8 heures (ppm)	Valeur limite sur 8 heures (mg/m ³)	Valeur limite court terme (ppm)	Valeur limite court terme (mg/m ³)
Autriche	3	6	6	12
Belgique	3	5,7	5	9,5
Canada-Québec	3	5,6		
Danemark	2	4	2	4
Hongrie		9		9
Pologne		5		10
Espagne	3	5,7	5	9,6
Suède	2	4		
Suisse	3	6	3	6
Pays-Bas	0,2	0,4	0,5	1
Royaume Unis			5	9,6

Pays	Source	Voie d'exposition et durée	Valeur limite en ppm	Valeur limite en mg/m ³
Etats-Unis	OSHA	Inhalation aiguë (instantanée)	PEL = 5	PEL = 9
	ACGIH	Inhalation aiguë (15 minutes)	TLV-STEL* = 5	TLV-STEL* = 9
		Inhalation chronique (8 heures)	TLV-TWA** = 3	TLV-TWA** = 6
	NIOSH	Inhalation aiguë (15 minutes)	REL = 1	REL = 1,8

*TLV-STEL : Définie comme une exposition à une TWA (concentration moyenne pondérée dans le temps) sur 15 minutes qui ne peut être dépassée en aucun temps durant la journée de travail, même si la TWA sur 8 heures respecte la valeur limite d'exposition TLV-TWA.

**TLV-TWA : Concentration moyenne pondérée dans le temps pour une journée de travail de 8 heures et une semaine de travail de 40 heures.

Pays	Source	Voie et durée d'exposition	Valeur limite en ppm	Valeur limite en mg/m ³
Union européenne	SCOEL (1997)	Inhalation (15 minutes)	0,5	1
		Inhalation (8 heures)	0,2	0,4

Méthode de construction des valeurs du SCOEL (SCOEL, 1997) :

- Effet critique : irritation de l'appareil respiratoire profond.
- Données sources référencées :
 - LOAEL de 0,6 ppm (1,1 mg/m³) chez des volontaires sains exposés durant 3 heures (Frampton M.W. et al., 1989) ;
 - LOAEL de 0,3 ppm (0,6 mg/m³) chez des sujets souffrant d'asthme ou de bronchite chronique ; obstruction de la fonction respiratoire (Bauer M.A. et al., 1986 ; Koenig J.Q. et al., 1988 ; Avol E.L. et al., 1989 ; Roger L.J. et al., 1990 ; Morrow P.E. et al., 1992) ;
 - Une méta-analyse réalisée par Folinsbee (1992) indique que certains asthmatiques sont susceptibles de présenter une augmentation de la réactivité bronchique à des concentrations inférieures à 0,2 ppm (0,4 mg/m³).
- Il est à noter que ces valeurs doivent permettre de protéger la majeure partie de la population de travailleurs, à l'exception cependant d'individus pouvant souffrir d'asthme ou de bronchites chroniques.

Pays	Source	Voie et durée d'exposition	Valeur limite en ppm	Valeur limite en mg/m ³
France	Ministère du travail	Inhalation aiguë (15 minutes au max)	VLE = 3	VLE = 6

La valeur limite court terme française ci-dessus est issue de la Circulaire du 19 juillet 1982 non parue au Journal Officiel. La démarche mise en œuvre pour son établissement n'a pu être documentée : ces éléments ne sont en effet repris ni dans la circulaire, ni dans les documents INRS répertoriant les VLEP françaises existantes (INRS, 2007 ; INRS, 1985), et n'ont pu être obtenus par ailleurs.

5.2.2.4 Seuils d'intervention

Source	Voie d'exposition	Durée d'exposition	Valeur	Population cible
Inéris (2004)	Inhalation (sub)aiguë	1 minute	SEI = 197 000 µg/m ³ SER = 10 000 µg/m ³	Population exposée sauf sujets « hypersensibles » (p.e. : insuffisants respiratoires)
		10 minutes	SEI = 113 000 µg/m ³ SER = 10 000 µg/m ³	
		20 minutes	SEI = 103 000 µg/m ³ SER = 10 000 µg/m ³	
		30 minutes	SEI = 103 000 µg/m ³ SER = 10 000 µg/m ³	
		1 heure	SEI = 94 000 µg/m ³ SER = 75 000 µg/m ³	

Effets critiques : SEI : érosions et proliférations épithéliales respiratoires chez le singe
SER : affections respiratoires réversibles chez l'homme, le singe et le rat

Source	Voie d'exposition	Durée d'exposition	Valeur en ppm
US EPA (2006)	Inhalation	10 minutes	AEGL1 = 0,5 AEGL2 = 20 AEGL3 = 34
		30 minutes	AEGL1 = 0,5 AEGL2 = 15 AEGL3 = 25
		1 heure	AEGL1 = 0,5 AEGL2 = 12 AEGL3 = 20
		4 heures	AEGL1 = 0,5 AEGL2 = 8,2 AEGL3 = 14
		8 heures	AEGL1 = 0,5 AEGL2 = 6,7 AEGL3 = 11

AEGL-1 : une gêne notable, irritation, ou certains effets asymptomatiques non ressentis : effets non-invalidants, transitoires, et réversibles dès arrêt de l'exposition ;

AEGL-2 : des effets néfastes irréversibles ou, sérieux et durables ou, altérant la capacité de se soustraire à l'exposition ;

AEGL-3 : des effets affectant le pronostic vital ou décès.

5.2.3 Valeurs retenues par le GT pour l'exercice de mise en perspective

Considérant l'ensemble des éléments exposés ci-dessus, le groupe de travail, pour la suite de l'exercice et notamment la mise en perspective de niveaux d'exposition au NO₂ avec des valeurs de référence, choisit de retenir les valeurs ci-dessous :

Population générale : • 200 µg/m³ sur 1 heure (source : OMS)

Remarque : Cette valeur est fondée sur plusieurs études, dont une méta-analyse, réalisées chez l'homme (population sensible). Elle est par ailleurs, sur le pas de temps considéré, la plus conservatoire.

Population professionnelle : • 1000 µg/m³ sur 15 minutes (source : SCOEL)

• 400 µg/m³ sur 8 heures (source : SCOEL)

Remarque : la VLE française (6000 µg/m³ sur 15 minutes au maximum) n'est ici pas retenue compte tenu de son ancienneté par rapport aux valeurs proposées par le SCOEL ainsi que de la non disponibilité de données permettant de comprendre sa démarche de construction.

5.3 Identification des principaux déterminants de l'exposition

5.3.1 Milieux d'exposition

Les milieux aériens les plus susceptibles d'être impactés par une modification des émissions du trafic sont ceux à proximité immédiate de la source de pollution (air de l'habitacle de véhicules et à proximité immédiate de véhicules). Plus on s'éloigne de la source de pollution, plus l'impact des technologies de post-traitement sur les concentrations de NO₂ devient difficile à appréhender, notamment du fait :

- des phénomènes complexes de la chimie atmosphérique (notamment titration NO → NO₂) ;
- des phénomènes aérauliques.

De plus, compte tenu de l'importance des niveaux observés à l'intérieur des habitacles de véhicules et au cœur même du trafic, les travaux se sont concentrés sur ces milieux. La disponibilité des données de mesures a conduit à restreindre l'analyse aux habitacles de véhicules légers.

5.3.2 Populations principalement exposées

Les populations principalement exposées au sein de la population générale d'une part, et de la population professionnelle d'autre part, ont été identifiées à partir des milieux retenus précédemment et d'une recherche dans la littérature scientifique d'études relatives à l'exposition au NO₂ du trafic.

5.3.2.1 Population générale

Au sein de la population générale, les populations principalement exposées sont identifiées comme suit :

- Conducteur/passager
- Usagers de deux-roues

Le développement de scénarios s'est concentré sur les conducteurs et passagers utilisant une voiture dans le cadre de leurs déplacements en agglomération, et donc plus fréquemment et plus intensément exposés au NO₂ dans l'habitacle de leur véhicule.

5.3.2.2 Population professionnelle

Au sein de la population professionnelle, les populations principalement exposées sont identifiées comme suit : chauffeur, conducteur, passager, chauffeur de taxi, chauffeur de bus, moniteur d'auto-école, livreur, routier, conducteur de camion, conducteur de camion long parcours, conducteur de camion court-courrier, dépanneur, ambulancier, bennier, éboueur, agent de la circulation, agent de péage, garagiste, mécanicien.

Le développement de scénarios s'est concentré sur les travailleurs dont l'activité implique des déplacements fréquents et de longue durée dans un véhicule léger en agglomération.

Au sein de la population professionnelle, ces travailleurs peuvent en effet être considérés a priori comme fréquemment et intensément exposés à la pollution liée aux émissions dans le sillage de véhicule.

Par ailleurs, ils sont particulièrement concernés par la pollution dans l'habitacle de véhicule retenue précédemment, contrairement à d'autres catégories de travailleurs exposés principalement à l'air extérieur à l'habitacle de véhicules (ex : éboueurs, agents de la circulation, agents de péage, garagistes et mécaniciens).

De plus, les seules données françaises de concentrations de NO₂ mesurées dans l'habitacle, et qui soient jugées suffisamment récentes, ont été obtenues avec un véhicule utilitaire léger. Compte tenu du protocole expérimental, les niveaux moyens de NO₂ mesuré peuvent être utilisés pour des scénarios impliquant un chauffeur ou passager de véhicule léger, mais excluent de facto les usagers d'autres catégories de véhicules (camion, bus, ...) dont les caractéristiques de l'habitacle (volume, hauteur, emplacement des prises d'air, ...) diffèrent (ex : chauffeurs de bus, conducteurs de camion long parcours et court-courrier, et la majorité des dépanneurs).

5.3.3 Voie(s) d'exposition concernée(s)

Le dioxyde d'azote est un polluant gazeux potentiellement dangereux **par inhalation** (voir annexe 10).

5.3.4 Durées et fréquences d'exposition

5.3.4.1 Population générale

Pour la population générale, les enquêtes ménages déplacements (EMD) sont réalisées selon la méthode dite « standard Certu » (centre d'études sur les réseaux, les transports, l'urbanisme et les constructions publiques). L'aire d'étude se rapproche souvent de l'aire urbaine. Elle porte sur un échantillon représentatif de ménages répartis sur l'aire d'étude. Un minimum de 1500 ménages doit être enquêté. L'EMD concerne les déplacements de personnes résidant à l'intérieur de l'aire d'étude. Les enquêtes portent sur les déplacements effectués la veille du jour de l'enquête. Ces enquêtes visent à reconstituer la mobilité des personnes, pour un jour ouvrable moyen de semaine, hors vacances scolaires (CERTU, 2008a). Il apparaît d'après les résultats de ces enquêtes que les personnes exerçant un travail à plein temps sont ceux qui en moyenne passent par jour le plus de temps dans une voiture. Au sein de cette sous-population, le temps moyen passé en voiture varie de 55 à 73 min/j dans les agglomérations de province (Limoges 2005, Toulouse 2003, Chambéry 2007, Lyon 2006, Rennes 2007, Le Havre 2007, Lille 2006) (CERTU, 2008b). Il varie de 23 à 57 min/j en Ile-de-France en 2001 pour les personnes exerçant un métier (CERTU, 2008b). A noter que ces valeurs moyennes incluent dans leur calcul les personnes exerçant un travail à plein temps et ne faisant pas usage d'une voiture pour leurs déplacements.

Par ailleurs, les données de l'Insee (temps de trajet par la route calculé à l'aide d'un distancier sur la base des données contenues dans les fichiers de déclaration annuelles de données sociales de 2004) indiquent que les salariés qui résident dans les aires urbaines de plus de 200 000 habitants (Paris et province) consacrent en moyenne 70 min/j pour leurs navettes domicile-travail (en heure pleine) (INSEE, 2007). Parmi eux, 73% font usage d'une voiture (MEEDDAT, 2003).

Ainsi, il a été retenu **une durée d'exposition moyenne de 1 heure par jour pour la population générale demeurant dans les aires urbaines.**

5.3.4.2 Population professionnelle

Pour la population retenue, soit les travailleurs dont l'activité implique des déplacements fréquents et de longue durée dans un véhicule léger en agglomération, il a été retenu **une durée d'exposition moyenne de 8 heures par jour.**

Cette durée correspond à la durée moyenne, retenue en première approche par le groupe de travail, des déplacements professionnels dans un véhicule léger en agglomération.

Sachant que 8 heures par jour pour 5 jours de travail par semaine correspondent à la durée moyenne de travail considérée par défaut pour une population professionnelle, l'option retenue de considérer qu'un travailleur passe tout son temps de travail dans un véhicule inséré dans le trafic représente donc un scénario majorant pour une large partie des travailleurs en termes d'exposition.

A titre indicatif, une durée d'exposition moindre (4 heures par jour) a été retenue en seconde approche.

5.4 Estimation prospective des niveaux d'exposition dans l'habitacle d'un véhicule léger

5.4.1 Objectif

L'objectif est d'estimer l'évolution de l'exposition moyenne au NO₂ dans l'habitacle d'un véhicule léger en fonction de l'évolution des émissions globales de NO₂ du parc roulant automobile entre 2007 et 2014.

Les émissions globales de NO₂ du parc roulant automobile sont modélisées à partir de différentes hypothèses de répartition des émissions de NO₂ par famille de véhicules ; chaque famille étant caractérisée par un trio carburant / norme Euro / système de post traitement (cf 2.2.2).

5.4.2 Hypothèses

Compte tenu des lacunes en termes de données disponibles qui permettraient de réaliser une modélisation in extenso des niveaux d'exposition, plusieurs hypothèses sont posées afin de permettre une estimation quantitative des niveaux d'exposition.

Ces hypothèses s'appuient sur les échanges et décisions prises par le GT au cours de ses réunions de travail²⁹, ainsi que sur les deux études de mesures embarquées dans des véhicules réalisées en 2007 par l'équipe INSERM U644 / CERTAM / Air Normand d'une part, et par Airparif d'autre part (cf 3.5).

L'étude exploratoire d'Airparif est toutefois considérée dans une moindre mesure compte tenu de la portée plus limitée de ses résultats obtenus sur des trajets qui n'ont pas été répétés.

A contrario, les résultats de l'étude INSERM U644 / CERTAM / Air Normand sont issus d'un parcours de 72 km en agglomération rouennaise répété 50 fois et d'un parcours de 200 km en agglomération parisienne répété 6 fois. Chacun de ces deux parcours est divisé en plusieurs trajets présentant chacun des caractéristiques homogènes en termes de typologie d'axe routier (autoroutier, urbain, tunnel, ...).

Une attention particulière est également portée sur les résultats concordants entre les études INSERM U644 / CERTAM / Air Normand et Airparif (cf 3.5.4) pour l'établissement des hypothèses.

L'un des paramètres majeurs influençant les niveaux de dioxyde d'azote dans l'habitacle étant constitué par les véhicules avoisinants, en particulier celui le précédant immédiatement, et au regard des données disponibles à ce jour, les hypothèses suivantes ont été retenues :

- les niveaux moyens de NO₂ dans l'habitacle de véhicules insérés dans le trafic sont linéairement corrélés aux émissions globales de NO₂ du parc automobile national ;
- en outre, en l'absence de données sur l'évolution des émissions NO₂ du parc de PL, il est nécessaire de choisir une hypothèse pour l'évolution de ces émissions. L'hypothèse d'évolution des émissions NO₂ des PL selon une dynamique corrélée à celle des émissions des VL est sans doute majorante pour ce qui concerne les émissions des PL. Cette hypothèse est néanmoins retenue ici ;
- en un même lieu, la chimie atmosphérique et les phénomènes aérauliques ont un impact constant et limité au cours de la période d'étude sur les niveaux moyens de NO₂ dans l'habitacle ;

²⁹ Réunions du 8 juillet, 3 septembre, 17 octobre et 12 novembre 2008

- en dehors des zones confinées (tunnels), les niveaux moyens de NO₂ dans l'habitacle ne diffèrent pas significativement en fonction du type de tronçon en agglomération (urbain, périurbain, rapide urbaine, autoroutier) ;
- en l'absence de données sur les niveaux de NO₂ mesurés dans l'habitacle dans d'autres agglomérations que celles de Paris et Rouen, ces résultats sont considérés comme représentatifs de la situation générale métropolitaine.

5.4.3 Outils et méthode de calcul

5.4.3.1 Outils

Pour l'évolution des émissions de NO₂ du parc automobile, les données sont issues des trois scénarios « favorable » (**Ef**), « modéré » (**Em**) et « défavorable » (**Ed**) définis par des hypothèses plus ou moins pénalisantes en termes d'émissions unitaires de NO₂ de VL Diesel Euro 5 et de répartition des technologies FAP catalysé / FAP additivé dans le parc (cf 2.2.2).

Pour l'évolution des niveaux moyens de NO₂ dans l'habitacle, les données sont issues de l'étude INSERM U644 / CERTAM / Air Normand, avec :

- une approche favorable tenant compte du 25^{ème} percentile des concentrations mesurées à la seconde (**Cmin**)
- une approche moyenne tenant compte de la moyenne des concentrations mesurées à la seconde (**Cmoy**) ;
- une approche maximalisante tenant compte du 95^{ème} percentile des concentrations mesurées à la seconde (**Cmax**).

5.4.3.2 Méthode

Deux catégories de scénarios sont déclinées :

- scénarios « hors tunnel »
- scénarios « tunnel »

5.4.3.2.1 Scénarios « hors tunnel »

Les concentrations de NO₂ dans l'habitacle ont été mesurées en 2007. Les niveaux favorables (**C_{min}**), moyens (**C_{moy}**) et maximalisants (**C_{max}**) de concentration en NO₂ sont calculés à partir des concentrations mesurées sur l'ensemble des trajets **exceptés les trajets « tunnel » et les mesures de fond** :

$$C_{min2007} = C25p_{trajets}$$

$$C_{moy2007} = C_{moytrajets}$$

$$C_{max2007} = C95p_{trajets}$$

Partant de l'hypothèse d'une corrélation linéaire entre les niveaux moyens de NO₂ dans l'habitacle de véhicule inséré dans le trafic et les émissions globales de NO₂ du parc roulant automobile (**E₂₀₀₇** : émissions estimées en 2007), on obtient les relations suivantes pour trois scénarios « minorant », « moyen » et « maximalisant » en termes de NO₂ dans l'habitacle de véhicule :

- **Scénario « minorant » :**

$$C_{min2007} = \alpha \times E_{2007} \quad \text{soit } \alpha = \frac{C_{min2007}}{E_{2007}}$$

Donc, pour l'année 20xx, et selon les hypothèses d'étude susmentionnées qui impliquent un coefficient α constant au cours de la période d'étude :

$$C_{min20xx} = \alpha \times E_{f20xx} \quad \text{soit } \boxed{C_{min20xx} = \frac{C_{min2007}}{E_{2007}} \times E_{f20xx}}$$

Par exemple : $C_{min2014} = \frac{C_{min2007}}{E_{2007}} \times E_{f2014}$

- **Scénario « moyen » :**

$$C_{moy2007} = \beta \times E_{2007} \quad \text{soit } \beta = \frac{C_{moy2007}}{E_{2007}}$$

De même, pour l'année 20xx, et selon les hypothèses d'étude susmentionnées qui impliquent un coefficient β constant au cours de la période d'étude :

$$C_{moy20xx} = \beta \times E_{m20xx} \quad \text{soit } \boxed{C_{moy20xx} = \frac{C_{moy2007}}{E_{2007}} \times E_{m20xx}}$$

- **Scénario « maximalisant » :**

$$C_{max2007} = \gamma \times E_{2007} \quad \text{soit } \gamma = \frac{C_{max2007}}{E_{2007}}$$

De même, pour l'année 20xx, et selon les hypothèses susmentionnées qui impliquent un coefficient γ constant au cours de la période d'étude :

$$C_{max20xx} = \gamma \times E_{d20xx} \quad \text{soit } \boxed{C_{max20xx} = \frac{C_{max2007}}{E_{2007}} \times E_{d20xx}}$$

5.4.3.2.2 Scénarios « tunnel »

Les niveaux de NO₂ dans l'habitacle ont été mesurés en 2007. Les niveaux favorables, moyens et maximalisants d'exposition sont calculés **sur l'ensemble des trajets « tunnel »**. Les niveaux de NO₂ dans l'habitacle sont ensuite calculés selon la même démarche que celle développée pour les scénarios « hors tunnel », avec trois scénarios « minorant », « moyen » et « maximalisant ».

5.4.4 Résultats

Les résultats des mesures de NO₂ dans l'habitacle utilisés sont détaillés dans le Tableau IV du présent rapport.

5.4.4.1 Scénarios « hors tunnel »

Compte tenu des hypothèses faites tout au long de la modélisation et des incertitudes qui en découlent, il apparaît raisonnable de considérer les résultats de la modélisation comme des ordres de grandeur. Ainsi les résultats obtenus pour les agglomérations rouennaise et parisienne ont pu être rassemblées pour l'interprétation des résultats, dans la mesure où leurs ordres de grandeur sont similaires (Tableau VI).

- **Le scénario « minorant » conduit ainsi à des concentrations estimées dans l'habitacle de l'ordre de 100 à 150 µg/m³ en 2014.**
- **Le scénario « moyen » conduit à des concentrations de l'ordre de 220 à 270 µg/m³ en 2014.**
- **Enfin, le scénario « maximalisant » conduit à des concentrations de l'ordre de 530 à 550 µg/m³ en 2014.**

Par ailleurs, on notera qu'au cours des parcours hors tunnel réalisés en 2007 par INSERM U644 / CERTAM / Air Normand, la valeur de 400 µg/m³ est dépassée pendant 15 à 20% du temps, et la valeur de 200 µg/m³ est dépassée pendant 50 à 75% du temps.

Tableau VI : Scénarios « hors tunnel » - Concentrations NO₂ dans l'habitacle de VL (C) estimées en fonction des émissions NO₂ du parc automobile (E) entre 2007 et 2014

Paramètre	Unité	Agglomération de Rouen	Agglomération parisienne
Cmin2007	µg/m ³	133	200
Cmoy2007	µg/m ³	249	307
Cmax2007	µg/m ³	561	541
C>400µg/m3	% de durée des trajets	16	20
C>200µg/m3	% de durée des trajets	54	74
E2007	tonnes	83882	83882
Ef2014	tonnes	63236	63236
Em2014	tonnes	73389	73389
Ed2014	tonnes	82788	82788
Cmin2014	µg/m ³ (Cmin2007/E2007 x Ef2014)	100	151
Cmoy2014	µg/m ³ (Cmoy2007/E2007 x Em2014)	218	269
Cmax2014	µg/m ³ (Cmax2007/E2007 x Ed2014)	554	534

5.4.4.2 Scénarios « tunnel »

Les concentrations de NO₂ dans l'habitacle lors de parcours en tunnel sont extrêmement variables, du fait des particularités propres à chaque tunnel (longueur du tunnel, durée du parcours, pente, ventilation, ...). Au vu des résultats obtenus au cours de mesures réalisées dans quatre tunnels (Tableau VII), les niveaux de NO₂ dans l'habitacle pendant les parcours en tunnel pourraient atteindre des niveaux élevés, de l'ordre de 400 µg/m³ (moyenne des niveaux mesurés pendant les parcours en tunnel combinée au scénario d'évolution « modéré » des émissions entre 2007 et 2014), pouvant dans le scénario maximalisant dépasser 1000 µg/m³.

Par ailleurs, on notera qu'au cours des parcours en tunnel réalisés en 2007 par INSERM U644 / CERTAM / Air Normand, la valeur de 400 µg/m³ est dépassée environ 50% du temps, et la valeur de 200µg/m³ est dépassée pendant 70 à 85% du temps.

Tableau VII : Scénarios « tunnel » - Concentrations NO₂ dans l'habitacle de VL (C) estimées en fonction des émissions NO₂ du parc automobile (E) entre 2007 et 2014

Paramètre	Unité	Agglomération de Rouen	Agglomération parisienne
Cmin2007	µg/m ³	178	270
Cmoy2007	µg/m ³	431	516
Cmax2007	µg/m ³	929	1089
C>400µg/m3	% de durée des trajets	44	54
C>200µg/m3	% de durée des trajets	70	85
E2007	tonnes	83882	83882
Ef2014	tonnes	63236	63236
Em2014	tonnes	73389	73389
Ed2014	tonnes	82788	82788
Cmin2014	µg/m ³ (Cmin2007/E2007 x Ef2014)	134	204
Cmoy2014	µg/m ³ (Cmoy2007/E2007 x Em2014)	377	451
Cmax2014	µg/m ³ (Cmax2007/E2007 x Ed2014)	917	1075

5.5 Mise en perspective des niveaux d'exposition estimés avec les valeurs de référence retenues (VTR, AQG, VLEP).

5.5.1 Méthode

Les niveaux d'exposition dans l'habitacle obtenus sur les trajets « hors tunnel » d'une part, et sur les trajets « tunnel » d'autre part (cf 5.4.4), ont été comparés aux valeurs de référence sanitaires retenues par le GT, à savoir :

- pour la population générale, la valeur guide OMS de 200 µg/m³ sur une heure ;
- pour la population professionnelle, une valeur de 110 µg/m³ sur 8 heures. Cette valeur est obtenue par l'ajustement de la valeur guide OMS de 200 µg/m³ sur une heure pour une durée d'exposition de 8 heures selon la démarche développée en annexe 15.

A titre indicatif pour la population professionnelle, ces mêmes niveaux d'exposition sont également comparés aux valeurs de gestion suivantes :

- VLEP du SCOEL de 0,2 ppm (400 µg/m³) sur 8 heures (recommandation en date de 1997, appliquée aux Pays-Bas depuis le 1er janvier 2007) ;
- VLEP du SCOEL de 0,5 ppm (1000 µg/m³) sur 15 minutes (recommandation en date de 1997, appliquée aux Pays-Bas depuis le 1er janvier 2007).

5.5.2 Résultats - Scénarios « hors tunnel »

5.5.2.1 Population générale

Il apparaît que pour la population générale demeurant dans une agglomération métropolitaine, le temps passé dans l'habitacle d'un véhicule léger inséré dans le trafic est en moyenne d'une heure par jour. Ainsi, le scénario « moyen » conduit pour cette heure de trajet à une exposition dans l'habitacle (220 à 270 µg/m³) supérieure à la valeur guide de l'OMS (200 µg/m³ sur 1 heure). Seul le scénario « minorant » conduit à des valeurs inférieures à la valeur guide de l'OMS. Cette dernière est fondée sur les données épidémiologiques et toxicologiques (cf annexe 10) et correspond à l'apparition de manifestations biologiques au sein d'une population sensible (asthmatiques).

5.5.2.2 Population professionnelle

Pour un travailleur passant 8h par jour dans un véhicule inséré dans le trafic en agglomération urbaine (hypothèse majorante) :

- La valeur de 110 µg/m³ sur 8 heures (obtenue par l'ajustement de la valeur guide OMS de 200 µg/m³ sur une heure pour une durée d'exposition de 8 heures selon la démarche retenue par le GT, voir annexe 15) est dépassée quel que soit le scénario considéré. La valeur guide de l'OMS dont dérive cette valeur ajustée est fondée sur l'apparition de manifestations biologiques chez les asthmatiques, dont la présence au sein des travailleurs ne peut être exclue (SCOEL, 1997). Notons également qu'une exposition professionnelle réduite de moitié en durée (4h), conduirait pour les scénarios « moyen » et « maximalisant » à un dépassement de la valeur de 135µg/m³ (obtenue selon la même méthode d'ajustement pour une durée de 4h).
- La VLEP préconisée par le SCOEL sur 8h (400 µg/m³) est dépassée dans le scénario « maximalisant ».

5.5.3 Résultats - Scénarios « tunnel »

Pour ce qui concerne les parcours en tunnel, les niveaux peuvent dépasser la valeur de 1000 µg/m³, sur des durées, qui dans certains cas pourraient vraisemblablement atteindre ou dépasser le quart d'heure :

- Pour les populations professionnelles, le dépassement de la VLEP préconisée par le SCOEL sur 15 minutes (1000 µg/m³) ne peut être exclu.
- La population générale peut être exposée dans les mêmes conditions que la population professionnelle, et il est à signaler que cette population comprend des sous groupes plus sensibles que la population considérée pour l'établissement de la VLEP préconisée par le SCOEL (1000 µg/m³ sur 15 minutes).

5.6 Limites

Il convient en premier lieu de rappeler le champ d'application des résultats obtenus :

- Seules les situations d'expositions dans l'habitacle de véhicules légers en agglomération urbaine ont été prises en compte, les résultats obtenus ne permettent donc pas d'appréhender les autres populations pouvant être impactées par les évolutions des technologies de réduction des émissions : passagers ou conducteurs de bus, chauffeur de poids lourds, agents de péage, conducteurs d'engins de chantier, cyclistes, piétons...
- Les durées d'exposition retenues (1h en population générale, 8h pour les travailleurs exposés) ne prennent pas en compte certaines situations pouvant être plus défavorables (temps passé dans un véhicule léger supérieur à une heure par jour en population générale, notamment).

Les résultats des modélisations prospectives réalisées ici sont par ailleurs entourés de nombreuses incertitudes, découlant notamment des hypothèses simplificatrices rendues nécessaires notamment du fait de l'indisponibilité de certaines données. On citera pour mémoire :

- Pour les poids lourds, l'évolution des émissions de NO₂ a été considérée comme analogue à celle des véhicules légers. Cette approximation est sans doute grossière, mais est utilisée à défaut d'éléments détaillés sur les émissions de NO₂ du parc de poids lourds. Elle peut représenter une source majeure d'incertitudes pour les résultats de la modélisation, dans la mesure où les poids lourds représentent une part importante du total des émissions de NO_x du trafic routier.
- Les évolutions des émissions de NO₂ du parc véhicules légers sont elles-mêmes soumises aux incertitudes évoquées au chapitre 2.2.2.
- Les niveaux de NO₂ dans l'habitacle de référence sont issus de mesures sur un parcours unique réalisé sur les agglomérations de Paris et Rouen (Morin J.P., 2008 ; Morin J.P. et al., 2009). Bien qu'une grande diversité de tronçons (autoroutiers, urbains, voies rapides, ...) aient été parcourus au cours de ces études, et que les trajets aient été répétés plusieurs fois, les données utilisées ne couvrent pas nécessairement la totalité des situations pouvant être rencontrées en France.
- Sur la période d'étude, la chimie atmosphérique et les phénomènes aérodynamiques sont considérés comme ayant une influence constante et négligeable sur les niveaux moyens de NO₂ dans l'habitacle par rapport à l'évolution des émissions du trafic. Cette hypothèse n'est toutefois pas vérifiable à ce jour.

5.7 Conclusion

Dans la majeure partie des situations envisagées, les niveaux d'exposition au NO₂ projetés dépassent les valeurs de référence retenues. Les limites de cette analyse ne semblent pas à même de remettre en cause les conclusions qui peuvent en être tirées.

Actuellement, les niveaux de NO₂ auxquels sont exposés les usagers de véhicules légers en agglomérations, tant en population générale qu'en population professionnelle, peuvent induire des effets toxiques sur le système respiratoire, en particulier pour les populations sensibles (asthmatiques notamment). L'évolution de cette situation jusqu'en 2014 (entrée en vigueur de la norme Euro 6) dépendra de la répartition au sein du parc des technologies de dépollution parmi celles connues à ce jour et des mesures de gestion qui conditionnent les émissions du parc.

6 Conclusions

Sur la base de l'ensemble des éléments présentés dans ce rapport, les conclusions émises par le groupe de travail sont les suivantes :

A - Influence des technologies et des normes sur les émissions unitaires d'oxydes d'azote (NO_x et NO₂) des véhicules légers Diesel :

- Les véhicules Euro 1 présentent des émissions de NO_x inférieures en moyenne à celles des véhicules Euro 2. En effet, seule la somme HC+NO_x est réglementée pour Euro 1 et Euro 2. L'utilisation d'un catalyseur d'oxydation sur Euro 2, afin notamment d'atteindre les limites portant sur les émissions de CO, augmente fortement les émissions de NO₂. Ce catalyseur réduit également les HC, laissant ainsi la possibilité d'une augmentation des émissions de NO_x sans dépassement de la limite réglementaire portant sur la somme HC+NO_x.
- Par contre, le passage d'Euro 2 à Euro 3 se traduit bien par une baisse des émissions de NO_x sur cycles réels d'un facteur 2 à 3, sans réduction systématique des émissions de NO₂.
- La filtration proprement dite n'est pas génératrice d'une surémission de NO₂. Par contre, les technologies associant un renforcement de la catalyse d'oxydation au FAP pour gérer sa régénération entraînent une augmentation des émissions de NO₂.
- La norme Euro 4 qui impose sur le cycle d'homologation une réduction de moitié des émissions de NO_x, ne présente pas d'évolution majeure sur des cycles réels par rapport à Euro 3. Les différentes configurations présentant un renforcement de la catalyse d'oxydation (notamment pour gérer la régénération du FAP), qu'il soit en amont ou sur le FAP, affichent les plus fortes émissions de NO₂.
- A noter que pour les véhicules Euro 3, les émissions de NO, NO₂ et NO_x obtenues avec FAP additivé présentent relativement peu d'écart avec la version sans FAP, le FAP additivé ne nécessitant pas de renforcement de la catalyse d'oxydation pour sa régénération.

B - Influence des technologies et des normes sur les émissions unitaires d'oxydes d'azote (NO_x et NO₂) des véhicules lourds Diesel :

Bien que les données disponibles soient moins nombreuses pour ce type de véhicules, les points suivants ont pu être identifiés :

- Le renforcement des premières générations de normes Euro ne s'est pas toujours traduit par des réductions des émissions de NO_x en conditions réelles de circulation (ce qui a également été observé sur les véhicules légers).
- Les émissions de NO₂ sont essentiellement liées à la charge du véhicule et à la température dans le circuit d'échappement.
- La présence de catalyseur, FAP catalysé ou FAP ouvert (qui intègre un catalyseur et qui est souvent associé à l'EGR³⁰), conduit systématiquement à une augmentation des émissions de NO₂.

30 EGR : le système « Exhaust Gas Recirculation » consiste à rediriger une partie des gaz d'échappement des moteurs à combustion interne dans le collecteur d'admission du moteur.

– Les émissions de NO_x et de NO₂ sont fortement conditionnées par le point de fonctionnement du moteur. Les émissions de NO₂ sont plus faibles avec l'EGR pour une utilisation haut régime/forte charge typique des camions, alors qu'elles sont plus faibles avec la SCR³¹ pour une utilisation bas régime/faible charge sous réserve d'avoir une température suffisante pour injecter de l'urée. Pour les autobus, la solution EGR couplée avec un catalyseur présente des émissions de NO₂ supérieures à la solution concurrente SCR seul, l'ajout d'un FAP catalysé à cette dernière conduisant par contre à accroître les émissions de NO₂.

En conclusion pour les véhicules lourds, dont les conditions d'utilisation sont très variables, les points de fonctionnement moteur (régime et charge), la température d'échappement, et les catalyseurs conditionnent les émissions de NO₂. Les technologies EGR et SCR permettant de réduire les NO_x, présentent des performances variables selon les usages.

C - Influence des technologies et des normes sur les émissions globales de NO₂ dans le parc de véhicules légers :

Les travaux montrent que le ratio NO₂/NO_x à l'émission pour le parc de véhicules diesel légers évolue à la hausse depuis 1996, date à laquelle les catalyseurs d'oxydation ont été rendus obligatoires sur les véhicules neufs par la norme Euro 2, et que ceci va perdurer.

Toutefois, si le taux de pénétration des FAP additivés parmi l'ensemble des véhicules équipés de FAP dépassait 30% environ, les émissions globales de NO₂ dues aux véhicules légers devraient se réduire à minima jusqu'en 2014, plus ou moins rapidement selon les scénarii « favorable » et « modéré ».

Au contraire, si ce taux était inférieur à 30% environ, on observerait à terme une augmentation du NO₂ émis par les véhicules légers.

Depuis le début des années 2000, les émissions de NO₂ du parc sont principalement attribuables aux véhicules diesel catalysés d'Euro 2 à 4 (voire Euro 5 avec les scénarii « modéré » et « défavorable » présentant les plus fortes émissions de NO₂).

A l'heure actuelle, du fait de leur faible pénétration dans le parc, les véhicules équipés de FAP associés à un catalyseur d'oxydation ne contribuent que très peu aux émissions totales de NO₂. Cependant, cette contribution devrait augmenter à l'avenir.

D - Mesure des émissions de NO₂ dans le cadre des normes Euro VI et Euro 6 :

Les résultats confirment l'utilité de mesurer les émissions de NO₂ lors des cycles d'homologation en complément des mesures d'émission de NO_x, et de les rendre accessibles. La norme Euro VI (véhicules lourds) impose la mesure des émissions de NO₂ et laisse la possibilité de la définition ultérieure d'une valeur limite portant sur ces émissions. Ce n'est par contre pas le cas de la norme Euro 6 (véhicules légers).

31 SCR : système de réduction catalytique sélective (Selective Catalytic Reduction)

E - Niveaux de pollution liés aux oxydes d'azote relevés dans l'air :

Une tendance à la baisse des niveaux d'oxydes d'azote (NO_x et NO₂) est observée au niveau des sites de surveillance dits de « fond » urbain. Les situations restent par contre variables pour les concentrations relevées en proximité du trafic automobile que ce soit en France ou au niveau d'autres pays européens. On observe ainsi au niveau de ces sites, des tendances à la stagnation ou à la hausse des niveaux de NO₂ mesurés, et ce depuis le milieu des années 1990. Par ailleurs, la valeur limite annuelle de 40 µg/m³ fixée pour le dioxyde d'azote est dépassée sur nombre de ces sites.

Ces tendances observées en proximité du trafic pourraient être expliquées par deux facteurs, dont la part de responsabilité varie en fonction des sites considérés :

- les processus photochimiques liés entre autres à l'évolution à la hausse des niveaux d'ozone qui pourraient jouer un rôle en réagissant avec le NO primaire émis pour former du NO₂,
- L'évolution à la hausse des émissions primaires de NO₂ en lien avec la progression de la part des véhicules diesel et leurs évolutions technologiques au sein du parc automobile.

Il n'a cependant pas été possible dans le cadre des travaux du groupe de travail d'affecter précisément la part attribuable à chacun de ces facteurs.

Par ailleurs, les mesures réalisées dans le flux de circulation et notamment à l'intérieur de l'habitacle de véhicules montrent que les niveaux de dioxyde d'azote relevés sont largement supérieurs à ceux que l'on peut observer au niveau des stations de surveillance de proximité au trafic. L'un des paramètres majeurs influençant les niveaux de NO₂ dans l'habitacle est constitué par les émissions des véhicules avoisinant le véhicule considéré, en particulier celui le précédant immédiatement. Les concentrations dans l'habitacle du véhicule augmentent nettement lors des passages en tunnel. Il ne peut cependant être exclu que d'autres paramètres (typologie de l'axe routier emprunté, état de congestion du trafic, topographie des lieux, etc.) influencent également les concentrations à l'intérieur de l'habitacle.

F - Aspects sanitaires liés au NO₂, notamment associé aux différentes technologies de post traitement des émissions Diesel :

• Synthèse des effets sanitaires du NO₂

Les données toxicologiques montrent que le NO₂ induit des effets toxiques sur le système respiratoire. Ces effets sont décrits dans des études expérimentales à la suite d'expositions à des concentrations en NO₂ supérieures aux valeurs guides. Aucune étude publiée apportant des éléments nouveaux sur ce point n'a été relevée par le groupe de travail depuis la publication de la synthèse de l'OMS³².

Dans le cadre des études épidémiologiques, la caractérisation des niveaux d'exposition à la pollution atmosphérique se réduit en fait quasiment toujours à l'évaluation de l'exposition à quelques polluants « indicateurs », qui ne représentent donc qu'une infime partie de l'ensemble des composés constituant la pollution atmosphérique. Il en découle que l'observation, dans le cadre d'une étude épidémiologique, de liens entre les niveaux d'un indicateur de pollution et une variable sanitaire n'est pas nécessairement la conséquence de l'existence d'effets propres du polluant considéré sur la santé, mais peut refléter les effets sanitaires d'un ou plusieurs polluants parmi l'ensemble de ceux émis ou formés avec ce polluant indicateur.

32 « Air Quality Guidelines, Global Update 2005 » (OMS, 2006, p.333-394)

Ainsi, les études épidémiologiques relatives aux expositions au NO₂ sont limitées par leur incapacité à séparer les effets du NO₂ de ceux des autres polluants émis ou formés avec lui, bien que de nombreux travaux méthodologiques soient en cours à ce sujet. En particulier, le NO₂ est souvent utilisé comme marqueur de l'ensemble de la pollution émise par les combustions, notamment celle émise par la circulation routière.

Les apports de l'approche épidémiologique dans le cadre de la question posée ici semblent donc relativement limités, tant pour ce qui concerne la connaissance des effets sanitaires du NO₂ émis par les véhicules diesel proprement dits, que pour la réalisation d'une évaluation des impacts sanitaires associés à l'introduction dans le parc de véhicules de nouvelles technologies de post-traitement.

- **Effets sanitaires du NO₂ contenu dans les émissions Diesel**

Le potentiel oxydant mesuré en conditions abiotiques est fortement corrélé à la teneur en NO₂ de l'émission.

Les impacts d'expositions chez le rat (sain et insuffisant cardiaque) à des émissions diluées de moteurs diesel :

- traitées ou non par catalyse d'oxydation³³,
- associée ou non à un filtre à particules, et
- enrichies (7200 µg/m³) ou non en NO₂,

sur les fonctions cardiaques, rénales et reproductives, et sur le stress oxydant pulmonaire et systémique, et sur l'inflammation systémique ont été étudiés.

Les résultats présentés ici proviennent d'une réanalyse des travaux de l'équipe Inserm/Certam/Ineris.

Ces expositions correspondent à des niveaux élevés par rapport à celles habituellement rencontrées en milieu ambiant.

Au final :

- D'une part, concernant les émissions de moteurs diesels traitées par catalyse d'oxydation (non filtrées), les résultats obtenus suggèrent une augmentation de l'inflammation systémique, un stress oxydant marqué au niveau hépatique et un effet sur la fonction cardiaque (bradycardie et bradyarythmie) qui semblent plus importants que pour les émissions non catalysées pour ces deux derniers effets. La teneur en NO₂ de ces émissions constitue un traceur de leur traitement par catalyse d'oxydation et de leur potentiel oxydant ;
- D'autre part, concernant les émissions de moteurs diesels traitées par catalyse d'oxydation associée à un filtre à particules, les résultats obtenus suggèrent aussi des effets plus marqués que pour les émissions non catalysées : modulation de l'activité de quelques enzymes impliquées dans la défense anti-oxydante, inflammation systémique. L'existence d'effets sur l'inflammation systémique, après filtration des échappements, suggère un rôle de la phase gazeuse dans ces effets.

Par ailleurs, les effets de l'exposition de tranches de poumons de rat à des émissions de moteur diesel sur le stress oxydant, l'apoptose³⁴ et l'inflammation ont été étudiés. La comparaison des résultats obtenus avec et sans catalyseur d'oxydation montre des effets toxiques plus importants avec catalyseur d'oxydation confortant en cela les résultats observés précédemment in vivo.

33 Catalyseur à forte charge en Platine

34 Mort cellulaire programmée

- **Conclusion**

Au final, les émissions de moteurs diesels traitées par catalyse d'oxydation, qu'elles soient ou non filtrées, semblent induire chez le rat des effets biologiques plus marqués que les émissions non catalysées. La teneur en NO₂ de ces émissions constitue un traceur de leur traitement par catalyse d'oxydation et de leur potentiel oxydant. Cependant, tant les données épidémiologiques que les données toxicologiques ne permettent pas d'exclure le rôle d'autres espèces pro oxydantes émises conjointement.

G - Mise en perspective de niveaux d'exposition au NO₂ (entre 2007 et 2014) au regard de différentes valeurs de référence (VTR, AQG, VLEP) :

Dans la majeure partie des situations envisagées, les niveaux d'exposition au NO₂ projetés dépassent les valeurs de référence retenues. Les limites de cette analyse ne semblent pas à même de remettre en cause les conclusions qui peuvent en être tirées.

Actuellement, les niveaux de NO₂ auxquels sont exposés les usagers de véhicules légers en agglomérations, tant en population générale qu'en population professionnelle, peuvent induire des effets toxiques sur le système respiratoire, en particulier pour les populations sensibles (asthmatiques notamment). L'évolution de cette situation jusqu'en 2014 (entrée en vigueur de la norme Euro 6) dépendra de la répartition au sein du parc des technologies de dépollution parmi celles connues à ce jour et des mesures de gestion qui conditionnent les émissions du parc.

7 Recommandations

Concernant l'amélioration des connaissances :

Les travaux du groupe ont mis en exergue l'intérêt de mieux documenter les émissions de NO₂ des véhicules ; en particulier pour les véhicules déjà en circulation et notamment les véhicules lourds, afin de mieux renseigner l'influence des technologies sur les émissions, mesurées sur cycle et en conditions réelles.

Le groupe recommande l'amélioration des connaissances concernant les niveaux des polluants émis par le trafic automobile à sa proximité immédiate, et leurs déterminants (par exemple, influence de la position de l'échappement sur les niveaux mesurés dans le sillage), compte tenu de l'ampleur des populations concernées, et de l'identification dans les présents travaux de l'intérêt de ces milieux.

Le groupe a constaté au cours de ses travaux la rareté des données disponibles concernant la toxicologie des émissions des véhicules diesels équipés de dispositifs de post-traitement. Il recommande le renforcement des connaissances dans ce domaine. En particulier, il est préconisé de renforcer les travaux sur la toxicologie des émissions considérées dans leur globalité (aérosols émis comprenant les phases gazeuse et particulaire).

Concernant la prise en compte des aspects sanitaires associés aux différentes technologies de post-traitement dans les normes portant sur les émissions des moteurs diesel :

Un bénéfice sanitaire peut être attendu de la mise en œuvre de dispositifs de dépollution incluant un filtre à particules sur les véhicules diesel, du fait notamment de la forte réduction des émissions de particules dont les effets sanitaires sont reconnus. Cependant, lorsque la mise en œuvre de dispositifs de dépollution incluant un filtre à particules s'accompagne d'une surproduction de NO₂, les résultats des présents travaux montrent que la situation au regard de ce polluant demeurera préoccupante notamment pour les occupants des véhicules légers en agglomérations. D'un point de vue sanitaire, les niveaux de NO₂ auxquels ils sont d'ores et déjà exposés indiquent, au regard des valeurs de référence, la possibilité de survenue d'effets sanitaires. Dans ce contexte, le groupe de travail préconise de prendre en compte spécifiquement dans les réglementations futures les émissions de NO₂ en complément des normes relatives aux NO_x totaux à l'émission.

8 Bibliographie

8.1 Chapitre 2 : Influence des technologies et des normes sur les émissions d'oxydes d'azote (NO, NO₂ et NO_x) des véhicules routiers

Ademe. (2005). Particules de combustion automobile et leurs dispositifs d'élimination. Rapport Ademe n°5728. En ligne :

<http://www2.ademe.fr/servlet/getDoc?cid=96&m=3&id=35160&p2=14232&ref=14232>

Ademe. (2005). Peugeot 607 équipés de filtres à particules : Bilan des émissions de polluants et de la consommation en condition taxi pendant 120000 km. Publication Ademe. En ligne :

<http://www2.ademe.fr/servlet/getDoc?cid=96&m=3&id=25161&p2=14232&ref=14232>

Ademe. (2006). Opticamion : Les technologies des moteurs de véhicules lourds et leurs carburants - Les poids lourds propres et économes. Publication Ademe n°5730. Commandable :

<http://www2.ademe.fr/servlet/getDoc?cid=96&m=3&id=29970&p2=14232&ref=14232>

Ademe. (2007). Optibus 2. Publication Ademe n°6092. En ligne :

<http://www2.ademe.fr/servlet/getDoc?cid=96&m=3&id=48657&p2=14232&ref=14232>

Association for Emissions Control by Catalyst (AECC). (2006). NO₂ Emissions from Exhaust Aftertreatment Technology. Réunion européenne de travail "impact of direct emissions of NO₂ from road vehicles on NO₂ concentrations" ; le 19 septembre 2006 ; Bruxelles, Belgique. En ligne :

http://www.circa.europa.eu/Public/irc/env/cafe_baseline/library?l=/public/ambient_quality/workshop_vehicles/presentation_190906pdf/EN_1.0_&a=d

Association for Emissions Control by Catalyst (AECC). (2007). NO, NO₂ and NO_x values for 4 vehicles at 4000 km from AECC Light-duty project (single tests). *Communication personnelle*.

Bosteels D. et al. (2006). 'Regulated' and 'Non-regulated' Emissions from Modern European Passenger Cars. *SAE Technical Paper 2006-01-1516*. Détroit, USA.

Carslaw D., Beevers S. (2003). New directions Should road vehicle emissions legislation consider primary NO₂. *Atmospheric Environment* ; 38 : 1233-1234.

Carslaw D., Beevers S. (2005). Development of an urban inventory for road transport emissions of NO₂ and comparison with estimates derived from ambient measurements. *Atmospheric Environment* ; 39 : 2049-2059.

Centre Interprofessionnel Technique d'Etude de la Pollution Atmosphérique (CITEPA). (2007). Etude relative à la mise à jour du programme national de réduction des émissions atmosphériques et à la révision de la directive plafonds nationaux d'émissions. Rapport final provisoire. Paris, France.

Czerwinski J. et al. (2006). Diesel NO₂ emissions with different DPF's and DOC's. Publication du Diesel Particulate Filter Manufacturers Task Force. En ligne : <http://www.akpf.org/pubs.html>

Department for Environment Food and Rural Affairs. (2006). Trends in Primary Nitrogen Dioxide in the United Kingdom. Rapport en consultation pour commentaires du Air Quality Expert Group ; août 2006. Londres, Royaume-Uni.

Geivanidis S., Samaras Z. (2006). Evaluation of the actual NO₂/NO_x ratio of recent vehicle technologies. Rapport du Laboratory of Applied Thermodynamics. Thessaloniki, Grèce.

- Gense G. et al. (2006). NO₂ emissions from passenger cars. *Actes INRETS*, conférence "Transport and Air Pollution". Reims, France.
- Grice S. et al. (2009). Recent trends and projections of primary NO₂ emissions in Europe. *Atmospheric Environment*. [In Press]. (doi:10.1016/j.atmosenv.2009.01.019)
- Jacobs T. et al. (2006). Development of Partial Filter Technology for HDD Retrofit. *SAE Technical Paper 2006-01-1516*. Détroit, USA.
- Lambrecht U. (2007). Legislation and future requirements for NO_x reduction. Conférence IQPC ; du 24 au 26 septembre 2007 ; Francfort, Allemagne. En ligne : http://www.iqpc.co.uk/binary-data/IQPC_CONFEVENT/pdf_file/13870.pdf
- Lemaire J. (2007). Some key concepts about NO₂ and about its possible controls. En ligne : http://www.akpf.org/pub/2007_no2.pdf
- Lemaire J., Mayer A. (2004). EMPA/BUWAL studies on NO₂ emissions, NO₂ emissions by city buses. Présentation IDRAC du 5 octobre 2004. En ligne : <http://www.arb.ca.gov/diesel/presentations/empabuwalstudies.pdf>
- Mayer A. et al. (2007). Nanoparticle-Emission of EURO 4 and EURO 5 HDV Compared to EURO 3 with and without DPF. *SAE Technical Paper 2007-01-1112*. Détroit, USA.
- Momique J.C. et al. (2003). Véhicules particuliers et émissions de particules : Programmes ACEA sur les émissions de particules par les véhicules particuliers. *Actes INRETS* ; 93 : 167-172.
- Schindler K.P. (2006). LDV technology: State of the art and anticipated developments. Réunion européenne de travail "impact of direct emissions of NO₂ from road vehicles on NO₂ concentrations" ; le 19 septembre 2006 ; Bruxelles, Belgique. En ligne : http://www.circa.europa.eu/Public/irc/env/cafe_baseline/library?l=/public/ambient_quality/workshop_vehicles/klaus-peter_presentation/ EN_1.0_&a=d
- TNO. (2007). Pre-study of exhaust gases of diesel engines with open and wall-flow diesel particulate filters and their toxicity. Rapport n°MON-RPT-033-DTS-2007-01072. En ligne : http://www.tno.nl/downloads/tno_rapport_mon_rpt_033_dts_2007_01072.pdf

8.2 Chapitre 3 : Concentrations dans l'air ambiant des oxydes d'azote (NO, NO₂, NO_x) liés au trafic routier

- Ademe. (2002). Classification et critères d'implantation des stations de surveillance de la qualité de l'air. Paris, France.
- Airparif. (2006). Evolution des niveaux d'oxydes d'azote en fonction de ceux d'ozone à proximité du trafic routier. Rapport du Service Etudes et Développement.
- Airparif. (2007). Mesures dans le flux de circulation. Etude exploratoire. En ligne : http://www.airparif.asso.fr/airparif/pdf/mesures_embarquees_rapport.pdf
- Airparif. (2007). Tendances des oxydes d'azotes en Ile-de-France, Comportement du dioxyde d'azote. Audition du directeur général Philippe Lameloise par l'Afsset le 12 octobre 2007. Maisons-Alfort, France.
- Carslaw D. (2006). Direct NO₂ in the UK : evidence from ambient measurements. Réunion européenne de travail "impact of direct emissions of NO₂ from road vehicles on NO₂ concentrations" ; le 19 septembre 2006 ; Bruxelles, Belgique. En ligne : http://www.circa.europa.eu/Public/irc/env/cafe_baseline/library?l=/public/ambient_quality/workshop_vehicles/carslaw_workshoppdf/ EN_1.0_&a=d

- Carslaw D.C. (2005). Evidence of an increasing NO₂/NO_x emissions ratio from road traffic emissions. *Atmospheric Environment* ; 39(26) : 4793-4802.
- Carslaw D.C., Beevers S.D. (2005). Development of an urban inventory for road transport emissions of NO₂ and comparison with estimates derived from ambient measurements. *Atmospheric Environment* ; 39(11) : 2049-2059.
- Carslaw D.C., Carslaw N. (2007). Detecting and characterising small changes in urban nitrogen dioxide concentrations. *Atmospheric Environment* ; 41(22) : 4723-4733.
- Department for Environment Food and Rural Affairs. (2004). Nitrogen Dioxide in the United Kingdom. Rapport du Air Quality Expert Group ; Londres, Royaume-Uni.
- Department for Environment Food and Rural Affairs. (2006). Trends in Primary Nitrogen Dioxide in the United Kingdom. Rapport en consultation pour commentaries du Air Quality Expert Group ; août 2006 ; Londres, Royaume-Uni.
- EEA. (2003). Size and composition of the vehicle fleet. Indicator Factsheet, TERM 2003 32 EEA-31.
- EEA. (2003). Transport contribution to air quality. Indicator Factsheet, TERM 2003 04 EEA-31.
- EEA. (2007). Air pollution in Europe 1990–2004. EEA Report No 2/2007.
- EEA. (2007). Annual European Community LRTAP Convention. Emission Inventory report 1990–2005. EEA Technical report n° 14/2007, novembre 2007.
- Gense R. (2006). Direct NO₂ emissions : the state of knowledge and consequences. Réunion européenne de travail “*impact of direct emissions of NO₂ from road vehicles on NO₂ concentrations*” ; le 19 septembre 2006 ; Bruxelles, Belgique. En ligne : http://www.circa.europa.eu/Public/irc/env/cafe_baseline/library?l=/public/ambient_quality/workshop_vehicles/ramond_gense_ecppt/ EN 1.0 &a=d
- IFEN. (2007). Dioxyde d'azote : dépassement du seuil pour la protection de la santé. En ligne : <http://www.ifen.fr/indicateurs/indicateurs-de-performance-environnementale/air/dioxyde-d-azote-depassement-du-seuil-pour-la-protection-de-la-sante.html>. Dernière mise à jour : juillet 2007, dernière consultation : mars 2008.
- Lambrecht U. (2006). Findings in Germany ; NO_x : Development of emissions and air quality. Causes for unexpected values of ambient concentrations of NO₂. Réunion européenne de travail “*impact of direct emissions of NO₂ from road vehicles on NO₂ concentrations*” ; le 19 septembre 2006 ; Bruxelles, Belgique. En ligne : http://www.circa.europa.eu/Public/irc/env/cafe_baseline/library?l=/public/ambient_quality/workshop_vehicles/eu-workshop_2006-19-09/ EN 1.0 &a=d
- Lambrecht U. (2007). Legislation and future requirements for NO_x reduction. Conférence IQPC ; du 24 au 26 septembre 2007 ; Francfort, Allemagne. En ligne : http://www.iqpc.co.uk/binary-data/IQPC_CONFEVENT/pdf_file/13870.pdf
- Morin J.P. et al. (2009). Evaluation de l'exposition aux polluants atmosphériques des conducteurs de véhicules automobiles par la mise en œuvre de mesures dynamiques dans l'habitacle du véhicule. *Archives des Maladies Professionnelles et de l'Environnement* ; 70 : 184-192.
- Morin J.P. (2007). La pollution à l'intérieur des véhicules en circulation. Travaux INSERM / CERTAM / Air Normand présentés aux Rencontres scientifiques organisées par l'Afsset le 5 octobre 2007 ; Paris, France.

Office Fédéral Allemand de l'Environnement (UBA). (2007). NO₂ and Post Treatment Problems in Germany. Audition du chef de la section Transports Axel Friedrich par l'Afsset le 12 octobre 2007. Maisons-Alfort, France.

Schindler K.P. (2006). LDV technology : State of the art and anticipated developments. Réunion européenne de travail "impact of direct emissions of NO₂ from road vehicles on NO₂ concentrations" ; le 19 septembre 2006 ; Bruxelles, Belgique. En ligne :

http://www.circa.europa.eu/Public/irc/env/cafe_baseline/library?l=/public/ambient_quality/workshop_vehicles/klaus-peter_presentation/_EN_1.0_&a=d

8.3 Chapitre 4 : Aspects sanitaires liés au NO₂, notamment associé aux différentes technologies de post traitement des émissions diesel

Ademe. (2005). Particules de combustion automobile et leurs dispositifs d'élimination. Rapport Ademe n°5728. En ligne :

<http://www2.ademe.fr/servlet/getDoc?cid=96&m=3&id=35160&p2=14232&ref=14232>

Advisory Group on the Medical Aspects of Air Pollution Episodes. (1993). Third report: oxides of nitrogen. London, HM Stationery Office, Royaume-Uni.

Anderson H.R. et al. (1997). Air pollution and daily admissions for chronic obstructive pulmonary disease in 6 European cities : result from the APHEA project. *European Respiratory Journal* ; 10 : 1064-1071.

Atkinson R.W. et al. (1999). Short-term associations between emergency hospital admissions for respiratory and cardiovascular disease and outdoor air pollution in London. *Archives of Environmental Health* ; 54 : 398-411.

Atkinson R.W. et al. (2001). Acute effects of particulate air pollution on respiratory admissions : results from APHEA 2 project. *American Journal of Respiratory and Critical Care Medicine* ; 164 : 1860-1866.

Avol E.L. et al. (1989). Experimental exposures of young asthmatic volunteers to 0.3 ppm nitrogen dioxide and to ambient air pollution. *Toxicology and Industrial Health* ; 5 : 1025-1034.

Ayyagari V.N. et al. (2004). Pro-inflammatory responses of human bronchial epithelial cells to acute nitrogen dioxide exposure. *Toxicology* ; 197 : 148-163.

Barck C. et al. (2002). Ambient level of NO₂ augments the inflammatory response to inhaled allergen in asthmatics. *Respiratory Medicine* ; 96 : 907-917.

Barck C. et al. (2005). Brief exposures to NO₂ augment the allergic inflammation in asthmatics. *Environmental Research* ; 97 : 58-66.

Barnett A.G. et al. (2005). Air pollution and child respiratory health : a case-crossover study in Australia and New-Zealand. *American Journal of Respiratory and Critical Care Medicine* ; 171 : 1272-1278.

Bauer M.A. et al. (1986). Inhalation of 0.30 ppm nitrogen dioxide potentiates exercise-induced bronchospasm in asthmatics. *American Journal of Respiratory and Critical Care Medicine* ; 134 : 1203-1208.

Bauer M.A. et al. (1986). Inhalation of 0,30 ppm nitrogen dioxide potentiates exercise-induced bronchospasm in asthmatics. *American review of Respiratory Disease* ; 134 : 1203-1208.

- Berglund M. et al. (1993). Health risk evaluation of nitrogen oxides. Exposure. *Scandinavian Journal of Work, Environment and Health* ; 19(Suppl.2) : 14-20.
- Bion A. et al. (2002). Biphasic culture of rat lung slices for pharmacotoxicological evaluation of complex atmospheres. *Cell Biol Toxicol* ; 18 : 301-314.
- Blomberg A. et al. (1997). The inflammatory effects of 2 ppm NO₂ on the airways of healthy subjects. *American Journal of Respiratory and Critical Care Medicine* ; 156 : 418-424.
- Blomberg A. et al. (1999). Persistent airway inflammation but accommodated antioxidant and lung function responses after repeated daily exposure to nitrogen dioxide. *American Journal of Respiratory and Critical Care medicine* ; 159 : 536-543.
- Boushey H.A. et al. (1988). Studies on air pollution: Effects of nitrogen dioxide on airway caliber and reactivity in asthmatic subjects ; effects of nitrogen dioxide on lung lymphocytes and macrophage products in healthy subjects ; nasal and bronchial effects of sulfur dioxide in asthmatic subjects. California Air Resources Board, rapport n° ARB/R-89/384. Sacramento, USA.
- Brook J.R. et al. (2007). Further interpretation of the acute effect of nitrogen dioxide observed in Canadian time-series studies. *Journal of Exposure Analysis and Environmental Epidemiology* ; 17 : S36-S44.
- Bylin G. et al. (1985). Effects of short-term exposure to ambient nitrogen dioxide concentrations on human bronchial reactivity and lung function. *European journal of respiratory diseases* ; 66 : 205-217.
- Bylin G. et al. (1988). Ambient nitrogen dioxide concentrations increase bronchial responsiveness in subjects with mild asthma. *Eur Respir J* ; 1 : 606-612.
- Devalia J.L. et al. (1993). Human bronchial epithelial cell dysfunction following in vitro exposure to nitrogen dioxide. *Eur Respir J* ; 6 : 1308-1316.
- Devalia J.L. et al. (1994). Effect of nitrogen dioxide and sulphur dioxide on airway response of mild asthmatic patients to allergen inhalation. *Lancet* ; 344 : 1668-1671.
- DieselNet. (2002). Diesel oxidation catalyst. *DieselNet Technology Guide*. En ligne : http://www.dieselnet.com/tech/cat_doc.html
- Ehrlich R. (1977). Health effects of short-term inhalation of nitrogen dioxide and ozone mixtures. *Environ. Res.* ; 14 : 223-231.
- Ehrlich R., Henry M.C. (1968). Chronic toxicity of nitrogen dioxide. I. Effect on resistance to bacterial pneumonia. *Arch. Environ. Health* ; 17 : 860-865.
- Evans M.J. et al. (1975). Transformation of alveolar Type 2 cells to Type 1 cells following exposure to NO₂. *Exp. Mol. Pathol.* ; 22: 142-150.
- Filleul L. et al. (2005). Twenty five year mortality and air pollution : results from the French PAARC survey. *Occupational and Environmental Medicine* ; 62 : 453-460.
- Folinsbee L.J. et al. (1978). Effect of 0.62 ppm NO₂ on cardiopulmonary function in young male nonsmokers. *Environ. Res.* ; 15 : 199-205.
- Frampton M.W. et al. (1989). Nitrogen dioxide exposure in vivo and human alveolar macrophage inactivation of influenza virus in vitro. *Environ. Res.*, 48:179-182.
- Frampton M.W. et al. (1989). Effects of nitrogen dioxide exposure on bronchoalveolar lavage proteins in humans. *Am. J. Respir. Cell Mol. Biol.* ; 1 : 499-505.

- Fusco D. et al. (2001). Air pollution and hospital admissions for respiratory conditions in Rome, Italy. *European Respiratory Journal* ; 17 : 1143-1150.
- Gardner D.E. et al. (1997). Role of time as a factor in the toxicity of chemical compounds in intermittent and continuous exposures. Part I. Effects of continuous exposure. *J. Toxicol. Environ. Health* ; 3 : 811-820.
- Garn H. et al. (2003). Shift Toward an Alternatively Activated Macrophage Response in Lungs of NO₂-Exposed Rats. *American Journal of Respiratory Cell and Molecular Biology* ; 28 : 386-396.
- Gauderman W.J. et al. (2000). Association between air pollution and lung function growth in southern California children. *American Journal of Respiratory and Critical Care medicine* ; 162 : 1383-1390.
- Gauderman W.J. et al. (2002). Association between air pollution and lung function growth in southern California children. Results from a second cohort. *American Journal of Respiratory and Critical Care medicine* ; 166 : 76-84.
- Gauderman W.J. et al. (2004). The effect of air pollution on lung development from 10 to 18 years of age. *New England Journal of Medicine* ; 351 : 1057-1067.
- Goings S.A. et al. (1989). Effect of nitrogen dioxide exposure on susceptibility to influenza A virus infection in healthy adults. *American Review of Respiratory Disease* ; 139:1075-7081.
- Goldberg M.S. (2007). On the interpretation of epidemiological studies of ambient air pollution. *Journal of Exposure Analysis and Environmental Epidemiology* ; 17 : S66-S70.
- Graham J.A. (1987). Influence of exposure patterns of nitrogen dioxide and modifications by ozone on susceptibility to bacterial infectious disease in mice. *J. Toxicol. Environ. Health* ; 21 : 113-125.
- Hajat S. et al. (1999). Association of air pollution with daily GP consultations for asthma and other lower respiratory conditions in London. *Thorax* ; 54 : 597-605.
- Halliwell B. et al. (1992). Interaction of nitrogen dioxide with human plasma: antioxidant depletion and oxidative damage. *FEBS-Letter* ; 313 : 62-66.
- Hazucha M.J. et al. (1983). Effects of 0.1 ppm nitrogen dioxide on airways of normal and asthmatic subjects. *J Appl Physiol* ; 54 : 730-739.
- Hazucha M.J. et al. (1994). Lung function response of healthy women after exposures to NO₂ and O₃. *American Journal of Respiratory and Critical Care Medicine*. 150 : 642-647.
- Helleday R. et al. (1995). Nitrogen dioxide exposure impairs the frequency of the mucociliary activity in healthy subjects. *Eur Respir J* ; 8 : 1664-1668.
- Hoek G. et al. (2002). Association between mortality and indicators of traffic-related air pollution in the Netherlands : a cohort study. *Lancet* ; 360 : 1203-1209.
- Hussain I. et al. (2004). Effect of Nitrogen Dioxide Exposure on Allergic Asthma in a Murine Model. *Chest* ; 126 : 198-204.
- Ichinose T. et al. (1983). [Changes of lipid peroxidation and antioxidative protective systems in lungs of rats exposed acutely, subacutely and chronically to nitrogen dioxide]. *Taiki Osen Gakkaishi* ; 18 : 132-146 [en japonais].
- Ichinose T., Sagai M. (1982). Studies on biochemical effects of nitrogen dioxide. III. Changes of the antioxidative protective systems in rat lungs and of lipid peroxidation by chronic exposure. *Toxicology and Applied Pharmacology* ; 66 : 1-8.

INSERM/CERTAM/INERIS. (2008). Impacts de l'Exposition par Inhalation d'Aérosols Complexes contenant des Particules Ultra-Fines sur le coeur, le rein et le système reproducteur chez le Rat et le Cobaye Sains et Insuffisants cardiaques Chroniques ; février 2008 ; Rouen, France. En ligne : http://www.primequal.fr/index.php?v=programmes_clos

Katsouyanni K. et al. (2001). Confounding and effect modification in the short-term effects of ambient particles on total mortality : results from 29 European cities within the APHEA2 project. *Epidemiology* ; 12 : 521-531.

Kelly F.J. et al. (1996). Antioxidant kinetics in lung lavage fluid following exposure of humans to nitrogen dioxide. *Am. J. Respir. Crit. Care Med.* ; 154 : 1700-1705.

Kelly F.J., Tetley T.D. (1997). Nitrogen dioxide depletes uric acid and ascorbic acid but not glutathione from lung lining fluid. *Biochem J.* ; 325 : 95-99.

Kim D. et al. (2006). Associations between personal exposures and fixed-site ambient measurements of fine particulate matter, nitrogen dioxide, and carbon monoxide in Toronto, Canada. *J Expo Sci Environ Epidemiol.* ; 16 : 172-83.

Kim J.Y. (2007). Panel discussion review: session two – interpretation of observed associations between multiple ambient air pollutants and health effects in epidemiologic analyses. *Journal of Exposure Analysis and Environmental Epidemiology* ; 17 : S83-S89.

Larrieu S. et al. (2007). Short term effects of air pollution on hospitalizations for cardiovascular diseases in eight French cities: the PSAS program. *Sci Total Environ.* ; 387 : 105-12.

Latza U. et al. (2008). Effects of nitrogen dioxide on human health: Systematic review of experimental and epidemiological studies conducted between 2002 and 2006. *Int. J. Hyg. Environ. Health.* [In Press]. (doi:10.1016/j.ijheh.2008.06.003)

Lin M. et al. (2002). The influence of ambient coarse particulate matter on asthma hospitalization in children : case-crossover and time-series analyses. *Environmental Health Perspectives* ; 110 : 575-581.

Lin M. et al. (2003). Effect of short-term exposure to gaseous pollution on asthma hospitalization in children : a bi-directional case-crossover analysis. *Journal of Epidemiology and Community Health* ; 57 : 50-55.

Linn W.S. et al. (1985). Controlled exposure of volunteers with chronic obstructive pulmonary disease to nitrogen dioxide. *Arch Environ Health.* ; 40 : 313-317.

Linn W.S. et al. (1985). Effects of exposure to 4 ppm nitrogen dioxide in healthy and asthmatic volunteers. *Arch Environ Health.* ; 40 : 234-9.

Linn W.S. et al. (1986). Dose-response study of asthmatic volunteers exposed to nitrogen dioxide during intermittent exercise. *Arch Environ Health* ; 41 : 292-296.

Linn W.S., Hackney J.D. (1984). Short-term human respiratory effects of nitrogen dioxide: Determination of quantitative dose-response profiles. Phase II: Exposure of asthmatic volunteers to 4 ppm NO₂. Coordinating Research Council, rapport n° CRC-CAPM-48-83-02. Atlanta, USA.

McConnell R. et al. (2003). Prospective study of air pollution and bronchitic symptoms in children with asthma. *American Journal of Respiratory and Critical Care Medicine* ; 168 : 790-797.

Miller F.J. et al. (1982). Pulmonary dosimetry of nitrogen dioxide in animals and man. In: Schneider T, Grant L, eds. *Air pollution by nitrogen oxides. Proceedings of the US-Dutch International Symposium, Maastricht, Netherlands.* Amsterdam, Elsevier : 377-386 (études en Environmental Science, n°21).

- Miller F.J. et al. (1987). Evaluating the toxicity of urban patterns of oxidant gases. 2. Effects in mice from chronic exposure to nitrogen dioxide. *J. Toxicol. Environ. Health* ; 21 : 99-112.
- Morin J.P. et al. (2008). Prevalidation of in vitro continuous flow exposure systems as alternatives to in vivo inhalation safety evaluation experimentations: Outcome from MAAPHRI-PCRD5 research program. *Exp Toxicol Pathol.* [In Press]. (doi:10.1016/j.etp.2008.01.007)
- Morin J.P. et al. (2006). Des particules au NO₂ comme effecteur toxique principal des émissions de moteurs Diesel, un problème lié à l'évolution des réglementations Euro successives. *Pollution Atmosphérique* ; 191 : 327-336.
- Morrow P.E. et al. (1992). Pulmonary performance of elderly normal subjects and subjects with chronic obstructive pulmonary disease exposed to 0.3 ppm nitrogen dioxide. *American Review of Respiratory Disease* ; 145 : 291-300.
- Morrow P.E., Utell M.J. (1989). Responses of susceptible subpopulations to nitrogen dioxide. Res. Rep. Health Effect Institute, rapport de recherche n°23. Cambridge, Royaume-Uni.
- Nafstad P. et al. (2003). Lung cancer and air pollution : a 27-year follow-up of 16,209 Norwegian men. *Environmental Health Perspectives* ; 112 : 610-615.
- Ölker C. et al. (2004). Impaired superoxide radical production by bronchoalveolar lavage cells from NO₂-exposed rats. *Free Radical Biology and Medicine* ; 37 : 977-987.
- OMS. (2006). Nitrogen dioxide. In: *Air Quality Guidelines, Global Update 2005*. Copenhague : Danemark ; 331-394.
- Orehek J. et al. (1976). Effect of short-term, low-level nitrogen dioxide exposure on bronchial sensitivity of asthmatic patients. *J Clin Invest.* ; 57 : 301-307.
- Overton J.H. (1987). Significances of the variability of airway paths and their air flow rates to dosimetry model predictions of the absorption of gases. Rapport de l'US Environmental Protection Agency n° EPA-600/D-87-364 ; Research Triangle Park, NC, USA.
- Peel J.L. et al. (2005). Ambient air pollution and respiratory emergency department visits. *Epidemiology* ; 16 : 164-174.
- Pope C.A. III et al. (2002). Lung cancer, cardiopulmonary mortality, and long-term exposure to fine particulate air pollution. *JAMA* ; 287 : 1132-1141.
- Rasmussen R.E. (1994). Effects of nitrogen dioxide on respiratory tract clearance in the ferret. *Journal of Toxicology and Environmental Health* ; 41 : 109-120.
- Rasmussen R.E. (1994). Localization of increased collagen in ferret lung tissue after chronic exposure to nitrogen dioxide. *Toxicology Letters* ; 73 : 241-248.
- Roemer W. et al. (1998). Daily variations in air pollution and respiratory health in a multicentre study : the PEACE project. Pollution Effects on Astmatic Children in Europe. *European Respiratory Journal* ; 12 : 1354-1361.
- Roger L.J. et al. (1990). Pulmonary function, airway responsiveness, and respiratory symptoms in asthmatics following exercise in NO₂. *Toxicol Ind Health* ; 6 : 155-71.
- Rombout P.J.A. et al. (1986). Influence of exposure regimen on nitrogen dioxide-induced morphological changes in the rat lung. *Environ. Res.* ; 41 : 466-480.
- Rudell B. et al. (1996). Effects on symptoms and lung function in humans experimentally exposed to diesel exhaust. *Occupational and Environmental Medicine* ; 53 : 658-662.

- Rusznak C. et al. (1996). Airway response of asthmatic subjects to inhaled allergen after exposure to pollutants. *Thorax* ; 51 : 1105-1108.
- Sagai M. et al. (1984). Studies on the biochemical effects of nitrogen dioxide. IV. Relation between the change of lipid peroxidation and the antioxidative protective system in rat lungs upon life span exposure to low levels of NO₂. *Toxicology and Applied Pharmacology* ; 73 : 444-456.
- Salome C.M. et al. (1996). Effect of nitrogen dioxide and other combustion products on asthmatic subjects in a home-like environment. *Eur Respir J* ; 9 : 910-918.
- Salvi S.S. et al. (2000). Acute exposure to diesel exhaust increases IL-8 and GRO- α production in healthy human airways. *American Journal of Respiratory and Critical Care Medicine* ; 161 : 550-557.
- Samet J.M. et al. (2000). The National Morbidity, Mortality, and Air Pollution Study. Part II: Morbidity and mortality from air pollution in the United States. *Res Rep Health Eff Inst.* ; 94 : 5-70, discussion 71-9.
- Samoli E. et al. (2003). Investigating the dose-response relation between air pollution and total mortality in the APHEA-2 multicity project. *Occupational and Environmental Medicine* ; 60 : 977-982.
- Samoli E. et al. (2006). Short-term effects of nitrogen dioxide on mortality: an analysis within the APHEA project. *Eur Respir J.* ;27 : 1129-38.
- Schierhorn K. et al. (1999). Influence of Ozone and Nitrogen Dioxide on Histamine and Interleukin Formation in a Human Nasal Mucosa Culture System. *Am. J. Respir. Cell Mol. Biol.* ; 20 : 1013-1019.
- Seaton A. et al. (2003). Hypothesis : ill health associated with low concentration of nitrogen dioxide – an effect of ultrafine particles ? *Thorax* ; 58 : 1012-1015.
- Sørensen M. et al. (2005). Personal exposure to PM_{2.5}, black smoke and NO₂ in Copenhagen: relationship to bedroom and outdoor concentrations covering seasonal variation. *J Expo Anal Environ Epidemiol.* ; 15 : 413-22.
- Spix C. et al. (1998). Short-term effects of air pollution on hospital admissions of respiratory diseases in Europe : a quantitative summary of APHEA study results. *Archives of Environmental Health* ; 53 : 54-64.
- Stieb D.M. et al. (2002). Meta-analysis of time-series studies of air pollution and mortality : effects of gases and particles and the influence of cause of death, age and season. *Journal of the Air and Waste Management Association* ; 52 : 470-484.
- Strand V. et al. (1997). Nitrogen dioxide exposure enhances asthmatic reaction to inhaled allergen in subjects with asthma. *Am. J. Respir. Crit. Care Med.* ; 155 : 881-887.
- Strand V. et al. (1998). Repeated exposure to an ambient level of NO₂ enhances asthmatic response to a nonsymptomatic allergen dose. *Eur Respir J* ; 12 : 6-12.
- Stresemann E., Von Nieding G. (1980). The acute effects of 5 ppm of NO₂ on the resistance of the human respiratory tract to breathing. *Staub* ; 30 : 259-260.
- Sunyer J. et al. (1997). Urban air pollution and emergency admissions for asthma in four European cities : the APHEA project. *Thorax* ; 52 : 760-765.
- Svartengren M. et al. (2000). Short-term exposure to air pollution in a road tunnel enhances the asthmatic response to allergen. *Eur Respir J* ; 15 : 716-724.

- Tunnicliffe W.S. et al. (1994). Effect of domestic concentrations of nitrogen dioxide on airway responses to inhaled allergen in asthmatic patients. *Lancet* ; 34 : 1733-1736.
- US-EPA. (1993). Air quality criteria for oxides of nitrogen. Rapport de l'US Environmental Protection Agency n° EPA/600/8-91/049aF-cF. 3v ; Research Triangle Park, NC, USA.
- Verein Deutscher Ingenieure. (1985). Maximale Immissions-Werte zum Schutze des Menschen: Maximale Immissions-Konzentrationen für Stickstoffdioxid [Maximum emission values for the protection of human health: maximum emission concentrations for nitrogen dioxide]. In: *VDI-Handbuch Reinhaltung der Luft*, Vol. 1., Part 12 ; Düsseldorf, VDI-Verlag, Allemagne.
- Victorin K. (1994). Review of the genotoxicity of nitrogen oxides. *Mutat Res.* ; 317 : 43-55.
- Wagner H.M. (1970). Absorption von NO und NO₂ in MIK- und MAK- Konzentrationen bei der Inhalation. *Staub, Reinhaltung der Luft* ; 30 : 380-381.
- Wagner H.M. (1985). Update of a study for establishing criteria (dose/effect relationships) for nitrogen oxides. Office for Official Publications of the European Communities, rapport n°EUR 9412 EN ; Luxembourg.
- Watanabe N. et al. (2005). Decreased number of sperms and Sertoli cells in mature rats exposed to diesel exhaust as fetuses. *Toxicology Letters* ; 155 : 51-58.
- WHO Regional Office for Europe (2003). Health aspects of air pollution with particulate matter, ozone and nitrogen dioxide. Report on a WHO working group, Bonn, Germany, 13-15 january 2003. (document EUR/03/5042688).
- Witschi H. (1988). Ozone, nitrogen dioxide and lung cancer: A review of some recent issues and problems. *Toxicology* ; 48 : 1-20.

8.4 Chapitre 5 : Mise en perspective de niveaux d'exposition au NO₂ (actuels et prospectifs) au regard de différentes valeurs de référence (VTR, AQG, VLEP)

- American Conference of Governmental Industrial Hygienists (ACGIH®). (2006). TLVs® and BEIs® Based on the Documentation of the Threshold Limit Values for Chemical Substances and Physical Agents & Biological Exposure Indices. Signature Publications ; Cincinnati, USA.
- Avol E.L. et al. (1989). Experimental exposures of young asthmatic volunteers to 0.3 ppm nitrogen dioxide and to ambient air pollution. *Toxicol Ind Health* ; 5 : 1025-1034.
- Bauer M.A. et al. (1986). Inhalation of 0.30 ppm nitrogen dioxide potentiates exercise-induced bronchospasm in asthmatics. *Am Rev Resp Dis* ; 134 : 1203-1208.
- Canadian Council of Ministers of the Environment. (1999). Canadian National Ambient Air Quality Objectives: Process and Status. In: *Canadian environmental quality guidelines*, 1999, Canadian of Ministers of the Environment ; Winnipeg, Canada. En ligne : <http://ceqg-rcqe.ccme.ca/download/en/133/>
- CERTU. (2008a). Les recueils de données sur la mobilité urbaine. Note de synthèse : Mobilités et transports, Fiche n°2, février 2008. Lyon, France. En ligne : http://www.certu.fr/IMG/pdf/Note_2_-_recueils_de_donnees.pdf
- CERTU. (2008b). Résultats extraits d'Enquêtes Ménages Déplacements sur les agglomérations de Limoges, Toulouse, Chambéry, Lyon, Rennes, Le Havre, Lille et sur l'Île-de-France. *Communication personnelle*.

- Folinsbee L.J. (1992). Does nitrogen dioxide exposure increase airways responsiveness? *Toxicol Ind Health* ; 8 : 273-283.
- Frampton M.W. et al. (1989). Nitrogen dioxide exposure in vivo and human alveolar macrophage inactivation of influenza virus in vitro. *Environ Res* ; 48 : 179-192.
- INERIS. (2005). Oxydes d'azote NO_x. Fiche de données toxicologiques et environnementales des substances chimiques. Rapport INERIS-DRC-03-47020-00DR057. En ligne : www.ineris.fr/index.php?module=doc&action=getFile&id=2349
- INERIS. (2004). Seuils de Toxicité Aiguë. Dioxyde d'azote. Rapport INERIS-DRC-03-47021-ETSC-STi-03DR164. En ligne : <http://www.ineris.fr/index.php?module=doc&action=getFile&id=1906%20->
- INRS. (2007). Valeurs limites d'exposition professionnelle aux agents chimiques en France. Edition INRS ED 984, 2^{ème} édition. Paris, France.
- INRS. (2006). Monoxyde d'azote Peroxyde d'azote. Fiche toxicologique FT 133. Edition 2006 ; Paris, France.
- INRS. (2005). Moteurs diesel et pollution en espace confiné. Cahiers de notes documentaires n°201 - ND 2239, 4^{ème} trimestre 2005 ; 45-62. Paris, France.
- INRS. (1992). Autobus urbains. Exposition des conducteurs à la pollution produite par les gaz d'échappement des autres véhicules. Cahiers de notes documentaires n°149, 4^{ème} trimestre 1992 ; 515-523. Paris, France.
- INRS. (1985). VLE VME Valeurs admises pour les concentrations de certaines substances dangereuses dans l'atmosphère des lieux de travail. Edition INRS ED 669, 1^{ère} édition, novembre 1985 ; Paris, France.
- INSEE. (2007). Les déplacements domicile-travail amplifiés par la périurbanisation. *INSEE Première* n°1129, mars 2007. En ligne : <http://www.insee.fr/fr/ffc/ipweb/ip1129/ip1129.pdf>
- Koenig J.Q. et al. (1988). The pulmonary effects of ozone and nitrogen dioxide alone and combined in healthy and asthmatic adolescent subjects. *Toxicol Ind Health* ; 4 : 521-532.
- Lewné M. et al. (2006). Exposure to particles and nitrogen dioxide among taxi, bus and lorry drivers. *Int Arch Occup Environ Health* ; 79 : 220-226. (doi:10.1007/s00420-005-0047-6)
- Ministère de l'Ecologie, de l'Énergie, du Développement durable et de l'Aménagement du territoire (MEEDDAT). (2003). Six classes d'aires urbaines du point de vue des migrations domicile-travail. *Notes de synthèse du Service économique et statistique (SES)* n°145, janvier-février 2003. En ligne : http://www.statistiques.equipement.gouv.fr/IMG/pdf/NS_145-13-20_cle72756f-1.pdf
- Morin J.P. et al. (2009). Evaluation de l'exposition aux polluants atmosphériques des conducteurs de véhicules automobiles par la mise en œuvre de mesures dynamiques dans l'habitacle du véhicule. *Archives des Maladies Professionnelles et de l'Environnement* ; 70 : 184-192.
- Morin J.P. (2008). La pollution à l'intérieur des véhicules en circulation. Données issues des travaux INSERM / CERTAM / Air Normand présentés aux Rencontres scientifiques organisées par l'Afsset le 5 octobre 2007 ; Paris, France. *Communication personnelle*.
- Morrow P.E. et al. (1992). Pulmonary performance of elderly normal subjects and subjects with chronic obstructive pulmonary disease exposed to 0.3 ppm nitrogen dioxide. *Am Rev Respir Dis* ; 145 : 291-300.
- OMS. (2006). Nitrogen dioxide. In: *Air Quality Guidelines, Global Update 2005*. Copenhague : Danemark ; 331-394.

Roger L.J. et al. (1990). Pulmonary function, airway responsiveness and respiratory symptoms in asthmatics following exercise in NO₂. *Toxicol Ind Health* ; 6 : 155-171.

Scientific Committee for Occupational Exposure Limits (SCOEL). (1997). Recommendation of the Scientific Committee for Occupational Exposure Limits for nitrogen dioxide. Collection Health. EUR 18216 EN. Juin 1997 ; SCOEL/SUM/53D.

Ten Berge W.F. et al. (1986). Concentration-time mortality response relationship of irritant and systemically acting vapours and gases. *Journal of Hazardous Materials* ; 13 : 301-309.

Thierry S. et al. (2008). Conduite et santé. Une revue de la littérature. INRS, *Documents pour le Médecin du Travail* n°113 ; 45-63.

US-EPA. (2007). Acute exposure guideline levels (AEGs) for nitrogen dioxide. Rapport intermédiaire de l'US Environmental Protection pour le sous-comité AEGs NAS/COT ; Octobre 2006 ; Research Triangle Park, NC, USA. En ligne : <http://www.epa.gov/oppt/aegl/pubs/tsd308.pdf>

[Zagury E. et al. \(2000\). Exposure of Paris taxi drivers to automobile air pollutants within their vehicles. *Occup Environ Med* ; 57 : 406-410.](#)

ANNEXES

Annexe 1 : Lettre de saisine

COURRIEL

25 AOÛT 2006

2456



MINISTÈRE DE LA SANTÉ ET
DES SOLIDARITÉS

MINISTÈRE DE L'ÉCOLOGIE ET
DU DÉVELOPPEMENT
DURABLE

MINISTÈRE DE L'EMPLOI, DE
LA COHESION SOCIALE ET DU
LOGEMENT

Direction générale de la santé

Direction de la prévention des
pollutions et des risques

Direction des relations du travail

Paris le 24 AOÛT 2006

Le Directeur général de la santé

Le Directeur de la prévention des
pollutions et des risques

Le Directeur des relations du travail

à

Madame la Directrice générale de
l'Agence Française de Sécurité
Sanitaire de l'Environnement et du
Travail
253 Avenue du Général Leclerc
94701 Maisons-Alfort

on a VP
y a PC
DG

0 6 0 8 1 5

Objet : Evaluation des impacts sanitaires relatifs des émissions de particules et de NO₂ des véhicules diesel.

P.J. : Communication du CERTAM de mars 2005 relative à l'impact du rapport NO₂/NO_x sur le potentiel oxydant des motorisations diesels.

Certains résultats communiqués dernièrement dans le cadre du programme de recherche PRIMEQUAL ont étayé les conclusions d'études européennes¹, californiennes² et britanniques³ relatives à l'impact de certaines technologies de filtres à particules sur les émissions de NO₂.

Il est désormais reconnu que les filtres à particules permettent de réduire les émissions de particules en masse et en nombre, d'aldéhydes, de benzène et de HAP, en phase gazeuse et absorbés sur les particules.

Néanmoins, les études précitées démontrent les conséquences négatives de certaines technologies de filtres à particules sur le ratio d'émission NO₂/NO_x. Ces technologies n'ont en effet pas d'effet sur les émissions globales de NO_x mais provoquent une augmentation significative des émissions de NO₂ (traduit par un plus fort ratio NO₂/NO_x). Ainsi, au lieu d'un ratio NO₂/NO_x proche

¹ Etude MAAPHRI (Multidisciplinary approaches to airborne pollutant health related issues), financé dans le cadre du 5^{ème} PCRD et étudiant plus spécifiquement les impacts sanitaires. Les travaux de ce consortium se sont achevés en novembre 2005 mais ne seront pas publiés avant l'été 2006.

² Etudes du Californian Air Resource Board (CARB)

³ Etude de Institute for Transport Studies, Université de Leeds, chargé d'une étude sur les émissions de NO_x des bus à Londres.

de 10 % pour un diesel non équipé de ces technologies, le ratio en sortie d'un véhicule équipé varierait entre 40 et 80 % selon les études. Il en résulte une concentration de NO₂ dans l'air ambiant significativement supérieure.

De plus, ces études abordent les impacts sanitaires relatifs des émissions de particules et de NO₂. Il est suggéré que, suite à l'augmentation importante du rapport NO₂/NO_x, la toxicité du NO₂ serait prépondérante sur la toxicité des particules.

Le CERTAM, dont vous trouverez une publication en pièce jointe, évoque même une confusion entre la toxicité des seules particules et celle liée aux hydrocarbures aromatiques polycycliques absorbés sur ces particules lors de la mesure, dans des conditions non représentatives des conditions réelles.

Dans le cadre des différentes réglementations européennes en cours d'élaboration, et notamment des réglementations Euro relatives aux émissions des véhicules particuliers et des poids lourds, une généralisation des filtres à particules est prévue à moyen terme. Les résultats des études précitées pourraient amener à modifier certaines contraintes réglementaires.

Aussi, nous vous serions obligés de nous fournir un rapport portant sur les points suivants pour la fin du 1^{er} trimestre 2007 :

1. analyse de l'ensemble des données bibliographiques disponibles; et notamment des études précitées,
2. impacts, différenciés selon les technologies de filtre, des filtres à particules sur les émissions de NO_x et sur le rapport NO₂/NO_x,
3. évaluation de la représentativité des conditions de mesure des émissions de polluants, et conséquences des différences constatées sur l'impact sanitaire réel des émissions, et notamment de particules et de NO₂,
4. au vu de ces éléments, évaluation de l'impact sanitaire global, y compris l'impact sur les travailleurs exposés professionnellement, des émissions d'un véhicule équipé d'un FAP, selon les technologies identifiées en 2, ou d'un véhicule non équipé d'un FAP.

Nous vous suggérons de consulter les études de l'InVS concernant l'impact sanitaire de la pollution atmosphérique. Pour la conduite de vos travaux, nous vous invitons également à vous mettre en relation avec le CERTAM, et en particulier avec les docteurs Jean-Paul MORIN et Frédéric DIONNET. Par ailleurs, vous pourrez utilement vous rapprocher de l'Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie.

Le Directeur général de la
santé

Le Directeur de la prévention
des pollutions et des risques

LOUIS TICHEL

Le Directeur des relations du
travail

Jean-Denis COMBEXELLE

Annexe 2 : Présentation des positions divergentes

Pas de position divergente exprimée.

Annexe 3 : Synthèse des déclarations publiques d'intérêt

RAPPEL DES RUBRIQUES DE LA DECLARATION PUBLIQUE D'INTERETS

IP-A	Interventions ponctuelles : autres
IP-AC	Interventions ponctuelles : activités de conseil
IP-CC	Interventions ponctuelles : conférences, colloques, actions de formation
IP-RE	Interventions ponctuelles : rapports d'expertise
IP-SC	Interventions ponctuelles : travaux scientifiques, essais, etc.
LD	Liens durables ou permanents (Contrat de travail, rémunération régulière ...)
PF	Participation financière dans le capital d'une entreprise
SR	Autres liens sans rémunération ponctuelle (Parents salariés dans des entreprises visées précédemment)
SR-A	Autres liens sans rémunération ponctuelle (Participation à conseils d'administration, scientifiques d'une firme, société ou organisme professionnel)
VB	Activités donnant lieu à un versement au budget d'un organisme

SYNTHESE DES DECLARATIONS PUBLIQUES D'INTERETS DES MEMBRES DU CES PAR RAPPORT AU CHAMP DE LA SAISINE

NOM	Prénom <i>Rubrique de la DPI</i> Description de l'intérêt	Date de déclaration des intérêts
Analyse Afsset :	<i>en cas de lien déclaré</i>	

ALARY René		16 juin 2006 06 novembre 2006 06 février 2007 27 mars 2008 13 juin 2008
	IP-CC Membre du Conseil scientifique de l'Observatoire pour la qualité de l'air intérieur (OQAI) depuis 2005 (Aucune rémunération)	
Analyse Afsset :	Pas de risque de conflit d'intérêt par rapport à la thématique de la saisine.	
ANNESI-MAESANO Isabella		25 juin 2003 08 novembre 2006 27 novembre 2007
	SR-A	

	Participation aux Conseils scientifiques de l'Observatoire pour la qualité de l'air intérieur (OQAI) et de PRIMEQUAL-PREDIT II	
Analyse Afsset :	Pas de risque de conflit d'intérêt par rapport à la thématique de la saisine.	
BLANCHARD Olivier		19 juin 2006 21 mars 2007 05 février 2008 20 juin 2008
	LD	
	Salarié de l'Institut National de l'Environnement industriel et des Risques (INERIS)	
Analyse Afsset :	Pas de risque de conflit d'intérêt par rapport à la thématique de la saisine.	
De BLAY de GAIX Frédéric (membre du CES « Évaluation des risques liés aux milieux aériens » jusqu'au 14 juin 2007)		28 décembre 2005
	N'a pas participé aux travaux	
	Aucun lien déclaré	
Analyse Afsset :	/	
CABANES Pierre-André		23 janvier 2006 09 février 2007 23 janvier 2008 27 mars 2008 13 juin 2008
	LD	
	Rédacteur en chef de la revue « Environnement, risques et Santé » aux Editions John Libbey (emploi complémentaire)	
	SR-A	
	Participation au Conseil scientifique de l'Institut National de l'Environnement industriel et des Risques (INERIS)	
Analyse Afsset :	Pas de risque de conflit d'intérêt par rapport à la thématique de la saisine.	
CAMPAGNA Dave		21 novembre 2005 08 novembre 2006 13 décembre 2006 03 décembre 2007 27 mars 2008 12 juin 2008
	IP-CC	

Analyse Afsset :	<p>Membre du Conseil scientifique de PRIMEQUAL depuis juin 2008</p> <p>SR</p> <p>Conjoint Médecin épidémiologiste à l'Institut national de Veille Sanitaire (InVS)</p> <p>Pas de risque de conflit d'intérêt par rapport à la thématique de la saisine.</p>	
DELMAS Véronique	<p>LD</p> <p>Directrice de Air Normand</p> <p>SR-A</p> <p>Membre du Conseil scientifique de l'Observatoire pour la qualité de l'air intérieur (OQAI) depuis 2001</p> <p>Pas de risque de conflit d'intérêt par rapport à la thématique de la saisine.</p>	<p>22 juin 2006</p> <p>22 mars 2007</p> <p>05 février 2008</p>
ELICHEGARAY Christian	<p>IP-RE</p> <p>Expertises et avis scientifiques, rapports ponctuels sur des sujets de recherche pour le CNRS et diverses instances publiques (ministères, établissements publics)</p> <p>IP-CC</p> <p>Conférences et actions de formation sur la pollution de l'air pour l'Institut supérieur d'agriculture de Beauvais (jusqu'en février 2008) et pour des universités (Orléans, Paris 7, Pau, Pays de l'Adour)</p> <p>SR-A</p> <p>Participation au Conseil scientifique de la revue « Pollution atmosphérique »</p> <p>Pas de risque de conflit d'intérêt par rapport à la thématique de la saisine.</p>	<p>19 juin 2006</p> <p>21 mars 2007</p> <p>05 février 2008</p> <p>23 juin 2008</p>
EZRATTY Véronique (membre du CES « Évaluation des risques liés aux milieux aériens » depuis le 15 juin 2007)		<p>10 octobre 2007</p> <p>13 juin 2008</p>

Aucun lien déclaré		
Analyse Afsset : /		
FILLEUL Laurent		21 décembre 2005 16 juin 2006
<i>Démission le 7 novembre 2006</i>		
N'a pas participé aux travaux		
Aucun lien déclaré		
Analyse Afsset : /		
GARNIER Robert		20 octobre 2005 12 octobre 2006 20 février 2008 12 juin 2008 29 janvier 2009
<i>Démission le 6 avril 2009</i>		
Aucun lien déclaré		
Analyse Afsset : /		
GARREC Jean-Pierre		04 février 2003
<i>Démission le 2 novembre 2006</i>		
N'a pas participé aux travaux		
Aucun lien déclaré		
Analyse Afsset : /		
GLORENNEC Philippe		08 novembre 2005 23 novembre 2006 03 décembre 2007 27 mars 2008 16 juin 2008
<i>LD</i>		
Employé de l'École des Hautes Etudes en santé Publique (EHESP)		
Membre du Conseil d'administration de Air Breizh (Association agréée de surveillance de la qualité de l'air en Bretagne) (2005-2008)		
<i>IP-AC</i>		

	<p>Groupes de travail et validation de documents pour l'Institut national de Veille Sanitaire (InVS)^o</p> <p>IP-SC</p> <p>Analyses d'eau, d'air, etc par le laboratoire de l'École des hautes études en santé publique (EHESP) pour de multiples sociétés, donnant lieu à versement à l'organisme d'appartenance (EHESP)</p>	
Analyse Afsset :	<p>IP-CC</p> <p>Membre de la Commission scientifique des risques chroniques de l'Institut National de l'Environnement industriel et des Risques (INERIS) (2002-2005)</p> <p>Pas de risque de conflit d'intérêt par rapport à la thématique de la saisine.</p>	
JUST	<p>Jocelyne</p> <p><i>Démission le 2 février 2007</i></p> <p>N'a pas participé aux travaux</p> <p>Aucun lien déclaré</p>	26 octobre 2005
Analyse Afsset :	/	
KIRCHNER	<p>Séverine</p> <p>LD</p> <p>Ingénieur au Centre Scientifique et Technique du Bâtiment (CSTB)</p> <p>IP-SC</p> <p>Participation au projet européen « Exposure Factor Sourcebook » avec le European Chemical Industry Council (CEFIC) et le LRI donnant lieu à versement à l'organisme d'appartenance (CSTB)</p> <p>Études sur la qualité de l'air intérieur pour l'Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Énergie (Ademe) et les ministères (Logement, Santé, Écologie, Recherche) donnant lieu à versement à l'organisme d'appartenance</p> <p>Recherches sur l'air intérieur pour l'Union européenne donnant lieu à versement à l'organisme d'appartenance</p> <p>IP-RE</p> <p>Rapport « Survey methods for Environmental Health Assessments » pour l'OMS donnant lieu à versement à l'organisme d'appartenance</p> <p>Participation aux groupes de travail pour l'European Collaborative Action « Urban air, indoor environment an human exposure » donnant lieu à versement à l'organisme d'appartenance</p> <p>Pas de risque de conflit d'intérêt par rapport à la thématique de la saisine.</p>	17 juin 2003 27 mars 2008
Analyse Afsset :		
LEFRANC	<p>Agnès (membre du CES « Évaluation des risques liés aux milieux aériens » depuis le 15 juin 2007)</p>	10 octobre 2007

		05 février 2008 12 juin 2008
	<p>IP-CC</p> <p>Formateur sur le thème « air et santé » à l'Institut national agronomique de Paris-Grignon et à l'Institut de formation en soins infirmiers de Necker (janvier 2007)</p> <p>Formation EIS pour l'École des hautes études en santé publique (EHESP)</p>	
Analyse Afsset :	Pas de risque de conflit d'intérêt par rapport à la thématique de la saisine.	
MATHIEU Laurence		16 juin 2006 03 juillet 2007
	<p>Démission le 28 novembre 2006</p> <p>N'a pas participé aux travaux</p> <p>Aucun lien déclaré</p>	
Analyse Afsset :	/	
MILLET Maurice		25 octobre 2005 06 novembre 2006 21 mars 2007 07 décembre 2007 27 mars 2008 17 septembre 2008
	<p>VB</p> <p>Thèses et conventions de recherches scientifiques avec TOTAL donnant lieu à versement à l'organisme d'appartenance (CNRS, délégation régionale Alsace) (2 % du budget du laboratoire dont salaire doctorante)</p>	
Analyse Afsset :	Pas de risque de conflit d'intérêt par rapport à la thématique de la saisine.	
MORCHEOINE Alain		17 juillet 2003 27 mars 2008
	<p>IP-CC</p> <p>Conférence sur les transports et l'environnement à l'Université de Cergy (dans le cadre du DESS Transport, territoire et société) et à l'École des hautes études en santé publique (EHESP)</p>	
	<p>VB</p> <p>Versement d'une cotisation par l'Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Énergie (Ademe) à l'Association pour la prévention de la pollution atmosphérique (APPA) et l'Association pour le développement des techniques de transport (ATEC)</p>	

<p>Membre du Conseil de Surveillance de l'Observatoire pour la qualité de l'air intérieur (OQAI)</p> <p>Analyse Afsset : Pas de risque de conflit d'intérêt par rapport à la thématique de la saisine.</p>	
<p>MOREL Yannick</p> <p><i>PF</i></p> <p>Quelques actions Renault</p> <p>Analyse Afsset : Pas de risque de conflit d'intérêt par rapport à la thématique de la saisine.</p>	<p>17 juillet 2003</p> <p>12 février 2007</p> <p>27 mars 2008</p> <p>23 juin 2008</p>
<p>MORIN Jean-Paul</p> <p><i>IP-SC</i></p> <p>Coordination du programme de recherche MAAPHRI (Multidisciplinary Approaches to Airborne Pollutant Health Related Issues) pour la Communauté Européenne</p> <p><i>IP-RE</i></p> <p>Expertises scientifiques pour la Communauté européenne (2004-2008) et le Health Effect Institute (2003-2004)</p> <p><i>IP-CC</i></p> <p>Conférencier sur "Methodologies for the evaluation of cardio-respiratory impact of complex aerosols" pour Euro V (Milan) (Décembre 2003)</p> <p>Conférencier sur "Organotypic cultures of lung slices for the study of complex aerosols lung toxicity" pour IVTOX (Birmingham) (2003)</p> <p>Conférencier sur "Methodologies for the evaluation of respiratory impact of complex aerosols" (Novembre 2003) pour ACES (Advanced Collaborative Emissions Study)/HEI (Health Effect Institute, Denver)</p> <p><i>IP-A</i></p> <p>Co-encadrement de thèses : co-tutelle Centre d'Étude et de Recherche technologique en Aérothermique et Moteurs (CERTAM)-INSERM en collaboration avec Renault dans le cadre de l'INSERM et contrat d'accompagnement Renault-CERTAM (2005-2008)</p> <p>Analyse Afsset : Pas de risque de conflit d'intérêt par rapport à la thématique de la saisine.</p>	<p>13 juin 2006</p> <p>26 février 2007</p> <p>27 novembre 2007</p> <p>27 mars 2008</p> <p>19 juin 2008</p>

NEMERY de BELLEVAUX	Benoît (membre du CES « Évaluation des risques liés aux milieux aériens » jusqu'au 14 juin 2007)	05 octobre 2006 17 janvier 2007
N'a pas participé aux travaux Aucun lien déclaré		
Analyse Afsset : /		
PARIS	Christophe	09 janvier 2006 27 mars 2008 20 juin 2008
LD Membre de la Commission d'orientation de l'Observatoire régional de santé au travail (ORST Lorraine) et de l'Agence régionale pour l'amélioration des conditions de travail (ARACT) (depuis 2007)		
IP-SC Rédaction de critiques d'articles scientifiques et synthèses pour les revues « Archives des maladies professionnelles et environnementales » et « Revue du praticien » (depuis 2005) Conseil en analyse statistique pour une étude faite au sein d'ex Rhône-Poulenc pour l'Institut de médecine du travail de Lille donnant lieu à versement à l'organisme d'appartenance (INSERM ou université de Nancy ?) (2007) IP-RE Participation à l'expertise collective "Cancers et environnement" de l'INSERM donnant lieu à versement à l'organisme d'appartenance (2006-2008) IP-CC Intervenant sur le thème "Cancers et travail" pour la Société de pneumologie de langue française (SPLF) (Octobre 2007)		
Analyse Afsset : Pas de risque de conflit d'intérêt par rapport à la thématique de la saisine.		
PEUCH	Vincent-Henri	24 octobre 2005 11 février 2007 29 novembre 2007 13 juin 2008
SR Père retraité de TOTAL		
Analyse Afsset : Pas de risque de conflit d'intérêt par rapport à la thématique de la saisine.		
POINSOT	Charles	18 juin 2006

	LD Directeur de l'ATMO Nord - Pas-de-Calais (Association agréée de surveillance de la qualité de l'air) (depuis 1998) Pas de risque de conflit d'intérêt par rapport à la thématique de la saisine.	
PONS	Françoise <i>Démission le 7 novembre 2006</i> N'a pas participé aux travaux Aucun lien déclaré	28 juin 2004
RAMEL	Martine LD Responsable du Programme Laboratoire Central de la Surveillance de la Qualité de l'Aire (LCSQA) de l'Institut National de l'Environnement industriel et des Risques	24 juin 2003 05 février 2008
	SR Conjoint chez Vivendi Environnement (depuis 2004) SR-A Vice-présidente du Conseil d'administration de l'Institut National de l'Environnement industriel et des Risques (INERIS) (1992-2007) Participation au Conseil scientifique de PRIMEQUAL-PREDIT II Membre du Conseil scientifique de l'Observatoire pour la qualité de l'air intérieur (OQAI)	
SLAMA	Rémy (membre du CES « Évaluation des risques liés aux milieux aériens » depuis le 15 juin 2007) <i>Démission le 12 janvier 2009</i> Aucun lien déclaré	10 octobre 2007 12 juin 2008
SQUINAZI	Fabien (membre du CES « Évaluation des risques liés aux milieux aériens » depuis le 15 juin 2007) SR-A Membre du Conseil scientifique de l'Observatoire pour la qualité de l'air intérieur (OQAI) Pas de risque de conflit d'intérêt par rapport à la thématique de la saisine.	10 octobre 2007
VENDEL	Jacques (membre du CES « Évaluation des risques liés aux milieux aériens » depuis le 15 juin 2007)	1 ^{er} juillet 2005

10 octobre 2007

Aucun lien déclaré

Analyse Afsset : /

SYNTHESE DES DECLARATIONS PUBLIQUES D'INTERETS DES MEMBRES DU GT PAR RAPPORT AU CHAMP DE LA SAISINE

NOM	Prénom	Date de déclaration des intérêts
Analyse Afsset :	<i>Rubrique de la DPI</i> Description de l'intérêt	

ARMENGAUD	Alexandre	10 avril 2007
Analyse Afsset :	<p>LD</p> <p>Ingénieur d'études à l'ATMO PACA (Association agréée de surveillance de la qualité de l'air) (depuis 2001)</p> <p>IP-AC</p> <p>Participation au groupe de travail « Modélisation urbaine » donnant lieu à versement à l'organisme d'appartenance (ATMO PACA)</p> <p>IP-CC</p> <p>Analyses commentées pour la revue « Extrapol » (Revue d'analyses critiques de publications internationales de l'InVS) (2005 et 2007)</p> <p>Pas de risque de conflit d'intérêt par rapport à la thématique de la saisine.</p>	
BAEZA-SQUIBAN	Armelle	02 avril 2007 12 septembre 2008
Analyse Afsset :	<p>IP-SC</p> <p>Participation à des travaux scientifiques sur la réponse inflammatoire des cellules épithéliales des voies aériennes exposées à des particules diesel en collaboration avec Renault, PSA et l'INSERM, donnant lieu à versement à l'organisme d'appartenance (Université Paris 7) (2001-2003)</p> <p>VB</p> <p>Encadrement d'une thèse financée par l'Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Énergie (Ademe) sur le rôle des particules fines PM2.5 dans l'induction des pathologies respiratoires d'origine inflammatoire, en collaboration avec Renault, donnant lieu à versement à l'organisme d'appartenance (Université Paris 7, Laboratoire de Cytophysiologie et Toxicologie cellulaire)</p> <p>Encadrement d'une étude réalisée par une étudiante en IUT en</p>	

alternance avec Renault sur la toxicité et la réponse inflammatoire induite par les particules Diesel, donnant lieu à versement à l'organisme d'appartenance (Université Paris 7, Laboratoire de Cytophysologie et Toxicologie cellulaire) (2000-2002)

Encadrement de thèses financées par l'ADEME sur les effets des particules Diesel sur l'épithélium respiratoire, en collaboration avec Renault (1997-2004)

Pas de risque de conflit d'intérêt par rapport à la thématique de la saisine.

Analyse Afsset :

BLANCHARD Olivier (membre du CES « Évaluation des risques liés aux milieux aériens ») 19 juin 2006
21 mars 2007
05 février 2008
20 juin 2008

LD

Salarié de l'Institut National de l'Environnement industriel et des Risques (INERIS)

Analyse Afsset : Pas de risque de conflit d'intérêt par rapport à la thématique de la saisine.

DELMAS Véronique (membre du CES « Évaluation des risques liés aux milieux aériens ») 22 juin 2006
22 mars 2007
05 février 2008

LD

Directrice de Air Normand

SR-A

Membre du Conseil scientifique de l'Observatoire pour la qualité de l'air intérieur (OQAI) depuis 2001

Analyse Afsset : Pas de risque de conflit d'intérêt par rapport à la thématique de la saisine.

ELICHEGARAY Christian (membre du CES « Évaluation des risques liés aux milieux aériens ») 19 juin 2006
21 mars 2007
05 février 2008
23 juin 2008

IP-RE

Expertises et avis scientifiques, rapports ponctuels sur des sujets de recherche pour le CNRS et diverses instances publiques

	(ministères, établissements publics)	
	IP-CC	
	Conférences et actions de formation sur la pollution de l'air pour l'Institut supérieur d'agriculture de Beauvais (jusqu'en février 2008) et pour des universités (Orléans, Paris 7, Pau, Pays de l'Adour)	
	SR-A	
	Participation au Conseil scientifique de la revue « Pollution atmosphérique »	
Analyse Afsset :	Pas de risque de conflit d'intérêt par rapport à la thématique de la saisine.	
LAGACHE Rémy		20 mars 2007 28 septembre 2008
	Aucun lien déclaré	
Analyse Afsset :	/	
LEFRANC Agnès (membre du CES « Évaluation des risques liés aux milieux aériens »)		10 octobre 2007 05 février 2008 12 juin 2008
	IP-CC	
	Formateur sur le thème « air et santé » à l'Institut national agronomique de Paris-Grignon et à l'Institut de formation en soins infirmiers de Necker (janvier 2007)	
	Formation EIS pour l'École des hautes études en santé publique (EHESP)	
Analyse Afsset :	Pas de risque de conflit d'intérêt par rapport à la thématique de la saisine.	
MARSEILLE Fabienne		03 avril 2007
	Aucun lien déclaré	
Analyse Afsset :	/	
MORCHEOINE Alain (membre du CES « Évaluation des risques liés aux milieux aériens »)		17 juillet 2003 27 mars 2008
	IP-CC	
	Conférence sur les transports et l'environnement à l'Université de Cergy (dans le cadre du DESS Transport, territoire et société) et à l'École des hautes études en santé publique (EHESP)	
	VB	
	Versement d'une cotisation par l'Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Énergie (Ademe) à l'Association pour la prévention de la pollution atmosphérique (APPA) et l'Association pour le développement des techniques de transport (ATEC)	

	Membre du Conseil de Surveillance de l'Observatoire pour la qualité de l'air intérieur (OQAI)	
Analyse Afsset :	Pas de risque de conflit d'intérêt par rapport à la thématique de la saisine.	
MORIN	Jean-Paul (membre du CES « Évaluation des risques liés aux milieux aériens »)	13 juin 2006 26 février 2007 27 novembre 2007 27 mars 2008 19 juin 2008
	IP-SC Coordination du programme de recherche MAAPHRI (Multidisciplinary Approaches to Airborne Pollutant Health Related Issues) pour la Communauté Européenne	
	IP-RE Expertises scientifiques pour la Communauté européenne (2004-2008) et le Health Effect Institute (2003-2004)	
	IP-CC Conférencier sur "Methodologies for the evaluation of cardio-respiratory impact of complex aerosols" pour Euro V (Milan) (Décembre 2003) Conférencier sur "Organotypic cultures of lung slices for the study of complex aerosols lung toxicity" pour IVTOX (Birmingham) (2003) Conférencier sur "Methodologies for the evaluation of respiratory impact of complex aerosols" (Novembre 2003) pour ACES (Advanced Collaborative Emissions Study)/HEI (Health Effect Institute, Denver)	
	IP-A Co-encadrement de thèses : co-tutelle Centre d'Étude et de Recherche technologique en Aérothermique et Moteurs (CERTAM)-INSERM en collaboration avec Renault dans le cadre de l'INSERM et contrat d'accompagnement Renault-CERTAM (2005-2008)	
Analyse Afsset :	Pas de risque de conflit d'intérêt par rapport à la thématique de la saisine.	
PLASSAT	Gabriel	26 mars 2007 08 août 2008
	IP-SC Évaluation des performances des véhicules et systèmes pour différentes sociétés (VTAC, VEOLIA, KEOLIS, IRISBUS, MAN, SCANIA, PSA, JOHNSON MATTEY, EMINOX, ...) donnant lieu à versement à l'organisme d'appartenance (Ademe) (depuis 2001)	
	IP-RE Participation au projet PRIMEQUAL-PREDIT II / ANR (depuis 2001)	

IP-AC

Participation au projet « Carburants Prospectives » CEA/ECRIN (Échange et coordination recherche-industrie) (2005)

IP-CC

Intervenant aux Journées techniques véhicules poids lourds pour la Fédération Nationale des Transports de Voyageurs (FNTV), l'Union des Transports Publics et Ferroviaires (UTP), le Groupement des Autorités Responsables de Transport (GART), ... donnant lieu à versement à l'organisme d'appartenance (Ademe) depuis 2001)

Membre du Comité scientifique du pôle de compétitivité LUTB (Lyon Urban Truck&Bus) donnant lieu à versement à l'organisme d'appartenance (Ademe) (2004)

Analyse Afsset : Pas de risque de conflit d'intérêt par rapport à la thématique de la saisine.

Annexe 4 : Éléments d'explication concernant les normes EURO

Véhicules légers (moins de 3,5 t)

Le Règlement (CE) n° 715/2007 du Parlement européen et du Conseil, du 20 juin 2007, relatif à la réception des véhicules à moteur au regard des émissions des véhicules particuliers et utilitaires légers (Euro 5 et Euro 6) et aux informations sur la réparation et l'entretien des véhicules, a renforcé les limites d'émissions polluantes applicables aux véhicules routiers légers, notamment en ce qui concerne les émissions de particules et d'oxydes d'azote. Ce règlement modifie notamment les directives 70/156/CEE et 2005/55/CE, et abrogera notamment, suite à l'entrée en vigueur du règlement Euro 5 et Euro 6, la directive 70/220/CEE qui établit des normes d'émissions limites admissibles pour les moteurs à essence et les moteurs diesel des voitures particulières et des véhicules utilitaires légers (l'une de ses directives modificatives a fixé la norme Euro 4).

Les normes Euro (chiffre arabe) utilisées pour **les véhicules légers** sont définies en g/km et limitent réglementairement en partie les émissions polluantes unitaires (CO, HC, NO_x et particules). Elles sont établies sur un cycle de conduite homologué appelé NEDC (New European Driving Cycle ou MVEG) formé de sous-cycles ECE (ou UDC pour Urban Driving Cycle) et EUDC (pour Extra Urban Driving Cycle). Le cycle ECE est répété 4 fois suivi d'un cycle EUDC.

Les valeurs limites d'émissions sont les suivantes :

Tableau VIII : Limites d'émissions des normes Euro pour les Véhicules Particuliers (g/km)

(Source : Ademe)

Classe	Normes	Année		CO	HC	HCNM	HC+NO _x	NO _x	PM
		NT	TT						
Diesel									
M1	Euro 1	1992		2.720	-		0.970	-	0.140
	Euro 2 - IDI	1996		1.000	-		0.700	-	0.080
	Euro 2 - DI	1999		1.000	-		0.900	-	0.100
	Euro 3	01/2000	01/2001	0.640	-		0.560	0.500	0.050
	Euro 4	01/2005	01/2006	0.500	-		0.300	0.250	0.025
	Euro 5	09/2009	01/2011	0.500	-		0.230	0.180	0.005
Euro 6	09/2014	09/2015	0.500	-		0.170	0.080	0.005	
Essence									
M1	Euro 1	1992		2.720	-		0.970	-	-
	Euro 2	1996		2.200	-		0.500	-	-
	Euro 3	01/2000	01/2001	2.300	0.200		-	0.150	-
	Euro 4	01/2005	01/2006	1.000	0.100		-	0.080	-
	Euro 5	09/2009	01/2011	1.000	0.100	0.068	-	0.060	0,005a
	Euro 6	09/2014	09/2015	1.000	0.100	0.068	-	0.060	0,005a
Note : dès 2000, suppression dans le cycle d'essai des 40 premières secondes de mise en température moteur									
a : pour moteur à Injection Directe d'Essence mélange pauvre seulement									

M1 : Véhicules affectés au transport de personnes comportant, outre le siège du conducteur, huit places assises au maximum.

IDI : Injections indirecte

DI : Injection directe

NT : Nouveau modèle

TT : Tout modèle

La figure suivante illustre les cycles ECE, EUDC et MVEG (ou NEDC).

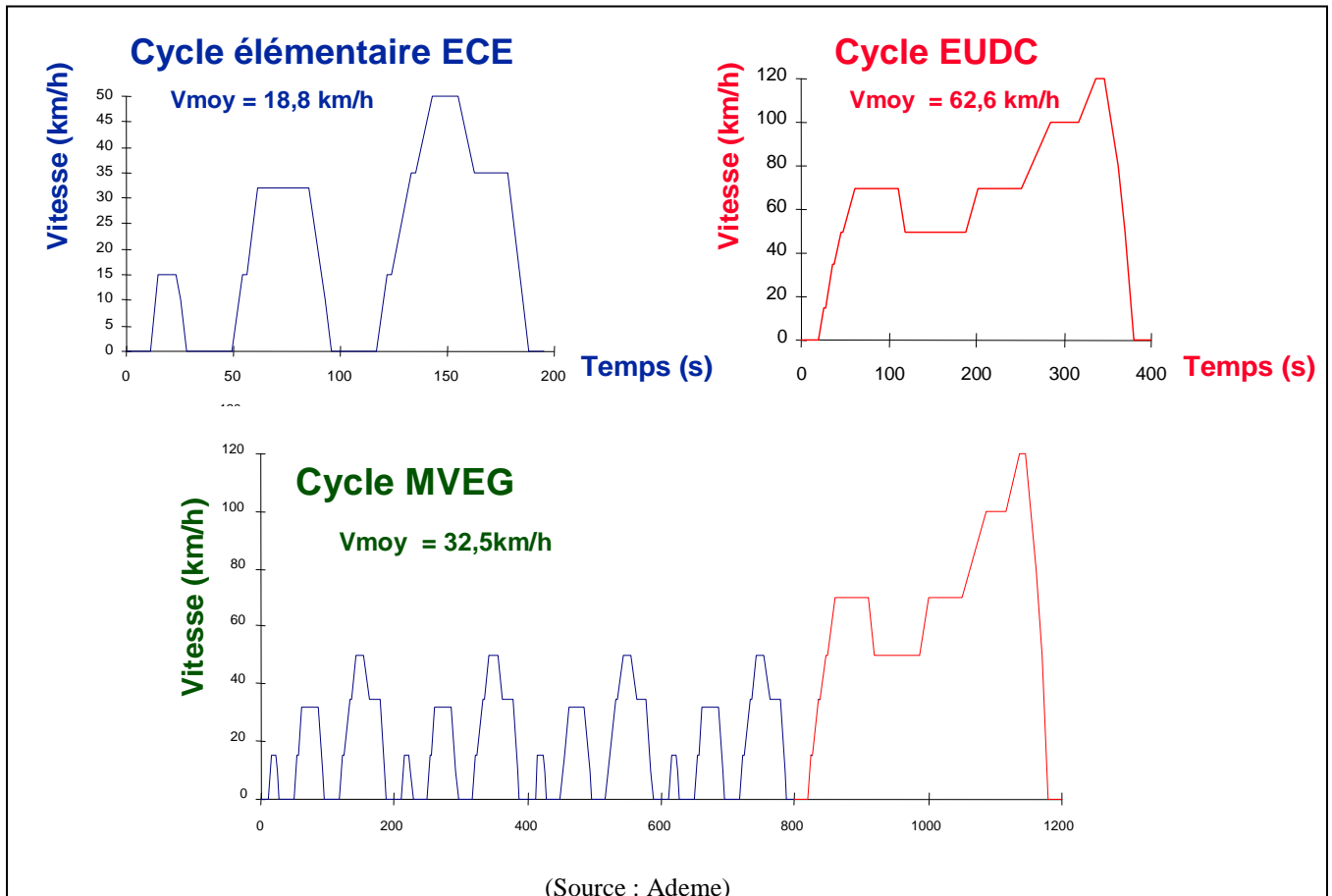


Figure 61 : Cycles de conduite MVEG, ECE et EUDC

Véhicules lourds

Les normes Euro (chiffre romain) s'appliquent au niveau des moteurs pour les **véhicules lourds**. Le même moteur pouvant être utilisé dans différents véhicules, la réglementation s'applique au moteur en g/kWh et non au véhicule en g/km. Pour obtenir des équivalences, il faut donc estimer le travail fourni par le moteur sur le cycle d'usage considéré.

Tableau IX : Limites d'émission des normes Euro pour les Véhicules Utilitaires > 3,5 Tonnes (g/kWh)

(Source : Ademe)

Règlement ou Directive	Rég. N°49	Rég N°49.01 - Dir. 88/77 (EURO 0)	Dir 91/542 EURO I	Dir 91/542 + 96/1 EURO II	Dir 99/96 EURO III				Dir 99/96 EURO IV		Dir 99/96 EURO V
	Application	82	1.04.88	1.04.92	1.10.95	1.10.1999	NM ¹ :1.10.2000 VN ¹ :1.10.2001	NM ¹ :1.10.2005 VN ¹ :1.10.2006			2008
concerne :	Moteurs Diesel				EEVs seulement		Diesel	Moteurs à Gaz et Diesel avancé	Diesel	Moteurs à Gaz et Diesel avancé	
cycle d'essai	Cycle 13 Modes R49	Cycle 13 Modes R49	Cycle 13 Modes R49	Cycle 13 Modes R49	Cycle 13 Modes ESC ⁸	Cycle ETC ⁸	Cycle 13 Modes ESC ⁸	Cycle ETC ⁸	Cycle 13 Modes ESC ⁸	Cycle ETC ⁸	cf EURO IV
CO	14	11.2 (Prod. 13,2) ^{1'}	4,5 (Prod. 4,9) ^{1'}	4,0	1,5	3,0	2,1	5,45	1,5	4,0	cf Euro IV
HC	3,5	2.4 (Prod. 2,64) ^{1'}	1,1 (Prod. 1,23) ^{1'}	1,1	0,25	HCNM : 0,40 et CH4 : 0,65	0,66	HCNM : 0,78 et CH4 : 1,6	0,46	HCNM : 0,55 et CH4 : 1,1	cf Euro IV
NOx	18	14.4 (Prod. 15,8) ^{1'}	8,0 (Prod. 9,0) ^{1'}	7,0	2,0	2,0	5,0	5,0	3,5	3,5	2,0 ⁵
Particules	-	-	0,36 ² (Prod. 0,4) ^{1'}	0,15 ²	0,01	0,015	0,10 ³	0,16 ⁴	0,02	0,03	cf Euro IV ⁶
Fumées	Selon Rég. 24.03 puis selon Dir 72/306 * Plusieurs valeurs limites en fonction du débit d'air en litres/seconde (de 1.065m-1 à 2.26m-1) pour différents points de régimes stabilisés sur la courbe de pleine charge * Opacité en accélération libre ne doit pas excéder de 0,5m-1 la valeur prescrite ci-avant pour un débit d'air équivalent..				0,15 m ⁻¹ sur cycle ELR ⁸	-	0,8 m ⁻¹ sur cycle ELR ⁸	-	0,5 m ⁻¹ sur cycle ELR ⁸	-	cf Euro IV
OBD ⁷ ou OBM ⁷	"On board Diagnostic" permet de contrôler les paramètres majeurs agissant sur fonctionnement des systèmes de dépollution et du contrôle moteur et impactant les émissions "On Board Measurement" permet de mesurer directement les émissions à bord du véhicule									Stage I ⁷	Stage II ⁷

1 - Dates d'applications pour les NM (Nouveaux Modèles), mise en application plus tardive pour les VN (Véhicules Neufs). / 1' - Plus de distinction homologation/production à partir d'EURO II.

2 - Valeurs pour les véhicules de puissance max > à 85 kW, pour les VU >3.5T de Pmax < à 85kW ces limites sont relevées d'un coefficient 1,7.

3 - Cette valeur est portée à 0,13 g/kWh pour les moteurs de cylindrée unitaire inférieure à 0,7 dm³ et de régime nominal supérieur à 3000 tr/mn

4 - Cette valeur est portée à 0,21 g/kWh pour les moteurs de cylindrée unitaire inférieure à 0,7 dm³ et de régime nominal supérieur à 3000 tr/mn

5 - Des demandes, notamment de l'UBA, pour réduire les émissions, sont faites pour diminuer cette valeur à 1.

6 - Des demandes, notamment de l'UBA, pour réduire les émissions, sont faites pour diminuer cette valeur à 0.003 sur ETC.

7 – L'OBD contrôle les systèmes impactant les émissions polluantes. Pour le stage I, ce système indiquera un dysfonctionnement en cas de dépassement de valeurs limites de certains paramètres (débit EGR, capteur NO_x, ...) conduisant à des émissions de NO_x de 7 et PM de 0.1. Pour le stage II, le système agira sur le contrôle moteur en réduisant par exemple le débit de carburant injecté.

L'OBM mesure directement les émissions à bord du véhicule par un système de mesure. Cette dernière solution est plus complexe et coûteuse et ne sera pas appliquée sur tous les véhicules. La commission européenne a lancé un appel d'offre pour développer ce type de système (PEM Portable Emissions Measuring system).

Ces systèmes, en cours de développement, seront à mettre au point pour le moteur Diesel et pour les autres carburants, gazeux notamment. Ils permettront d'assurer la durabilité des émissions pendant un certain temps, fonction du type de véhicule. Le tableau ci dessous est une proposition faite à la commission européenne :

Catégorie	Type de véhicule	Masse (tonne)	Durée de vie	
			Année	Kilométrage
N2	Poids lourd de distribution	Entre 3.5 et 12	10	600 000
N3	Poids lourd longue distance	Supérieure à 12	10	1 000 000
M3	Bus	-	15	1 000 000

(Source : http://europa.eu.int/comm/enterprise/automotive/pagesbackground/pollutant_emission/fin_rep_emiss_heavy_duty.htm)

N2 : Véhicules affectés au transport de marchandises ayant un poids maximal supérieur à 3,5 tonnes, mais ne dépassant pas 12 tonnes.

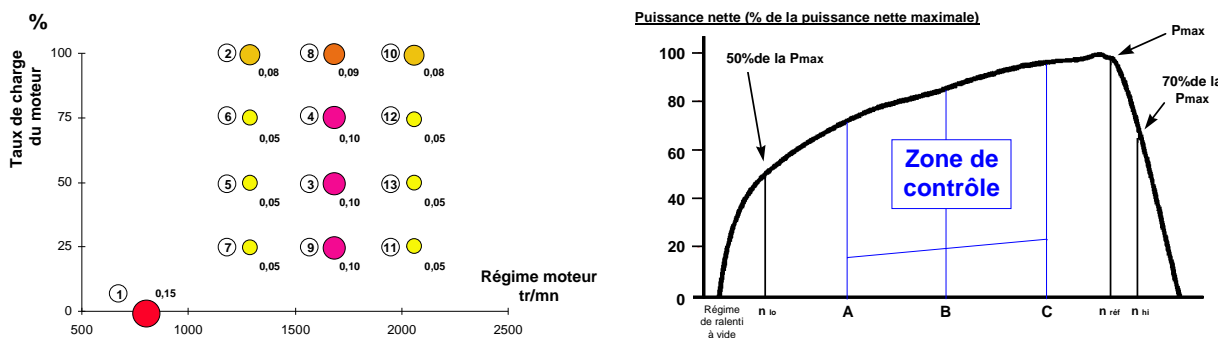
N3 : Véhicules affectés au transport de marchandises ayant un poids maximal supérieur à 12 tonnes.

M3 : Véhicules affectés au transport de personnes comportant, outre le siège du conducteur, plus de 8 places assises et ayant un poids maximal supérieur à 5 tonnes.

8 - **Le cycle ESC (European Steady-state Cycle)**

Ce cycle porte sur plusieurs points de régimes et charges stabilisés du moteur. Les émissions pour chaque polluant sont alors obtenues par la moyenne pondérée des valeurs ramenée à l'unité de puissance (g/kWh).

Les régimes et charges des points d'essais sont définis à partir des performances Puissance/Régime du moteur testé comme illustré dans le graphique ci-dessous :



(Source : Ademe)

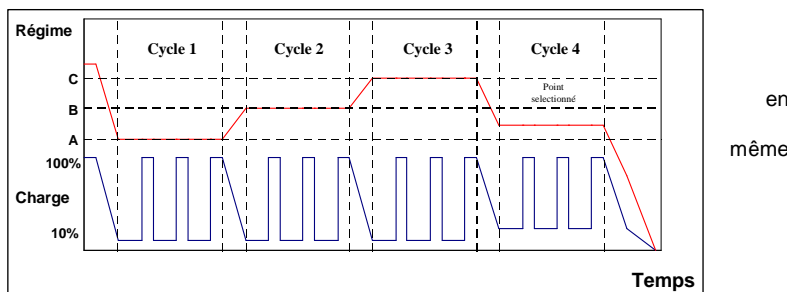
Figure 62 : Cycle de conduite ESC

Le cycle ELR (European Load Response)

Ce cycle sert à la mesure des fumées, il consiste des prises en charges dynamiques à différents régimes qui font partie intégrante d'une seule et procédure d'essai et sont appliquées simultanément.

(Source : Ademe)

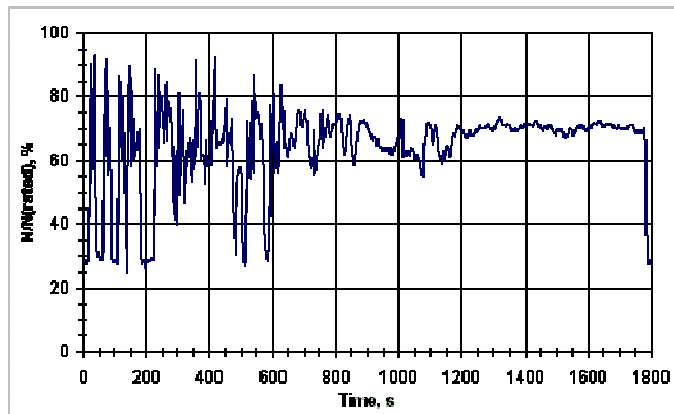
Figure 63 : Cycle de conduite ELR



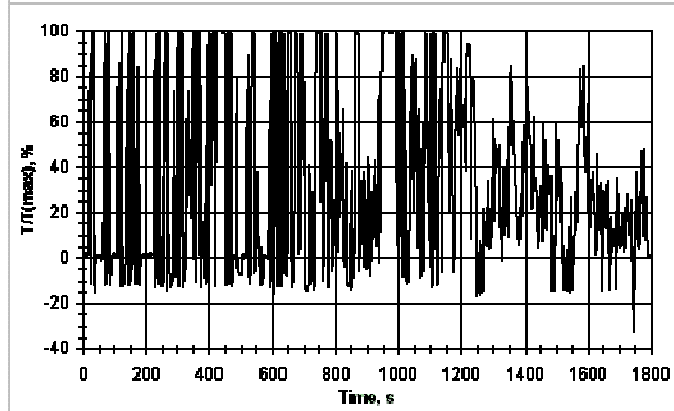
Le cycle ETC (European Transient Cycle)

Il s'agit d'un cycle constitué de modes transitoires définis seconde par seconde. Son origine (et son ancienne appellation cycle FIGE) provient d'un organisme d'étude allemand sur le bruit. Il comporte trois principales phases simulant respectivement des parcours urbains, routiers et autoroutiers. Il permet une connaissance des émissions de polluants plus représentatives de la réalité, et se rapproche en ce sens du cycle transitoire (Transient) américain. Son profil est déterminé par les deux courbes suivantes :

$N/N(\text{rated}), \%$:
régime instantané
sur régime maximal



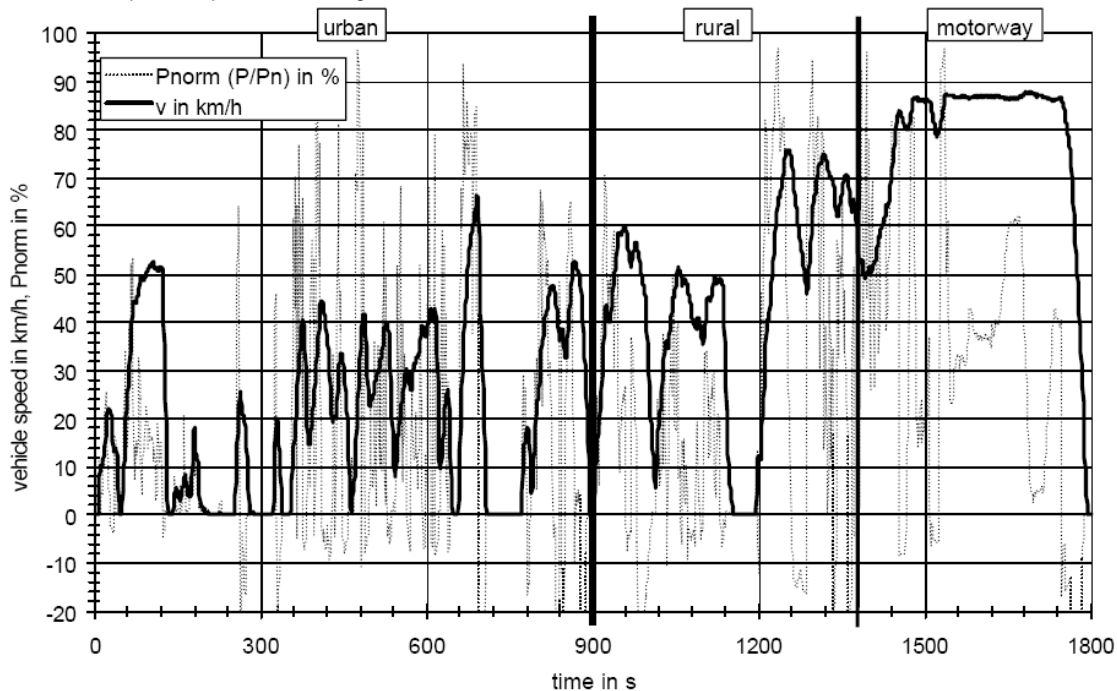
$T/T(\text{max}), \%$:
couple instantané
sur couple maximal



(Source : <http://www.dieselnet.com>)

Figure 64 : Cycle de conduite ETC

De plus, un cycle mondial **WTVC (World-wide Transient Vehicle Cycle)** (voir Figure 65) a été développé, et sera utilisé, en parallèle des cycles Euro, à partir de 2010 pour Euro VI. Les valeurs d'émissions pour Euro VI proposées sont de 0.5 g/kWh pour les NOx et 0.003 g/kWh sur ETC pour les particules. Les gaz de carter devront être recirculés à l'admission.



Pnorm (P/Pn) en % : Puissance instantanée sur puissance maximale

(Source : <http://www.unece.org/trans/doc/2001/wp29grpe/TRANS-WP29-GRPE-41-inf01.pdf>)

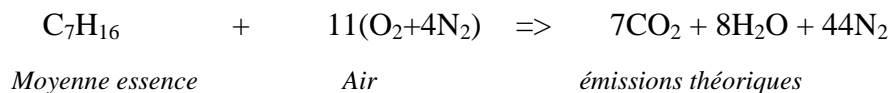
Figure 65 : Cycle de conduite WTVC

La norme EURO VI a été proposée au parlement européen par la commission le 21 décembre 2007 ([Proposition de Règlement du parlement européen et du conseil du 21 décembre 2007](#)). Elle intègre notamment une mesure du NO₂ sur les cycles sans fixer de valeur limite laissant ainsi la possibilité dans le futur d'une réglementation du niveau à l'émission.

Annexe 5 : Éléments d'explication concernant les émissions moteur et les technologies de réduction des émissions

L'annexe 5 n'a pas pour objet de fournir une description exhaustive des technologies moteurs et des technologies de réduction des émissions, mais de fournir au lecteur les principales informations nécessaires à la compréhension des éléments présentés au chapitre 2 du rapport.

Les émissions issues de la combustion complète d'un hydrocarbure sont théoriquement formées uniquement d'eau, d'azote et de dioxyde de carbone :



En réalité, de nombreuses espèces chimiques sont créées par une combustion incomplète, trop chaude, des phénomènes d'extinction de flamme aux parois, des réactions chimiques secondaires :

- HC : hydrocarbures imbrûlés
- CO : monoxyde de carbone
- NO_x : oxydes d'azote (NO et NO₂)
- Particules
- autres : hydrocarbures aromatiques polycycliques, aldéhydes, ...

En vue de respecter les normes détaillées ci-dessus et de gérer les gaz issus de la combustion, les constructeurs développent des systèmes intégrés au niveau du circuit des gaz d'échappement, qui consistent à :

- extraire les gaz de la chambre de combustion,
- **transformer les espèces chimiques pour respecter les normes en installant des systèmes de post traitement,**
- (éventuellement) utiliser l'énergie pour le fonctionnement de la turbine,
- (éventuellement) utiliser les espèces chimiques pour les ramener à l'admission (EGR ou Exhaust Gas Recirculation – recirculation des gaz d'échappement).

Les moteurs essence (allumage commandé par une bougie) et Diesel (allumage par compression, donc sans bougie d'allumage) présentent de nombreuses différences dans leur mode de combustion, donc dans leurs émissions et leurs systèmes de post traitement.

Le moteur à allumage commandé

Un mélange air-carburant est introduit dans la chambre avant la compression. Une étincelle (apport d'énergie) est nécessaire pour initier la combustion.

Le mélange stœchiométrique (réaction chimique complète) soit 1 g essence pour 14,7 g air (richesse³⁵ 1) nécessite un papillon pour gérer la quantité d'air donc les pertes par pompage. La combustion est de type flamme de propagation, ce qui conduit à un front de flamme chaud entraînant la formation de NO_x, à des extinctions aux parois entraînant la formation de CO et HC, mais pas (ou peu) de particules.

³⁵ La richesse se définit par le rapport entre le mélange réellement admis (rapport masse essence / masse carburant) et le mélange stœchiométrique (rapport de 1/14.7).

Ce type de motorisation nécessite un carburant avec un haut indice d'octane (supérieur à 95) pour maîtriser l'auto inflammation (cliquetis) et un taux de compression bas (rapport volume total /volume au point mort haut : 10-11). Globalement, le dispositif comprenant le moteur et son système de post traitement est relativement simple, et donc peu coûteux.

Forces : coût, émissions

Faiblesse : consommation élevée

Le moteur Diesel

Le carburant est introduit directement dans l'air comprimé (chaud) de la chambre. Il s'enflamme automatiquement. La présence élevée d'oxygène entraîne une combustion quasi complète.

Le mélange est pauvre (excès d'air), soit une richesse de 0,3. La gestion de la puissance est faite par le débit injecté, il n'y a pas de papillon, ni de perte par pompage mais une forte pression de combustion. La combustion est réalisée par une flamme de diffusion qui présente des hétérogénéités (qui entraînent la formation de particules), de fortes températures avec un excès d'air conduisant à la formation de NO_x, mais peu de CO et HC.

Ce type de motorisation nécessite un carburant avec un indice de cétane précis (supérieur à 51) pour permettre l'auto inflammation et un taux de compression élevé (18). En conséquence, le système de motorisation Diesel est plus complexe et coûteux (système d'injection et pièces mécaniques) que celui essence, avec un système de post traitement relativement complexe.

Forces : consommation réduite

Faiblesse : coût, émissions

Le catalyseur

Il existe deux stratégies de mélange air-carburant suivant le type de motorisation : le mélange stœchiométrique et le mélange pauvre. Pour ce qui concerne les systèmes de post-traitement par catalyse, dans le premier cas, le catalyseur est dit « trois voies » puisqu'il peut réduire et oxyder en même temps, donc traiter les *trois* polluants CO, HC et NO_x. Par contre dans le cas du mélange pauvre (cas du moteur Diesel et moteur essence avec mélange pauvre), seule l'oxydation est possible, le catalyseur est alors dit « deux voies ».

Les moteurs stœchiométriques sont conçus avec un catalyseur associé à une sonde lambda qui permet une réduction des NO_x et une oxydation des CO et HC. Cette sonde mesure la quantité d'oxygène dans les gaz d'échappement. Le signal est transmis au calculateur électronique qui agit sur le système d'injection pour ajuster le dosage air/gaz et conserver en permanence les proportions idéales pour un bon fonctionnement du catalyseur.

Cette technologie conduit à des émissions polluantes très faibles mais demande un contrôle précis de la richesse en oxygène du mélange, avec pour conséquence des consommations élevées en faibles charges, surtout en comparaison à un Diesel. Ce mode de combustion permet l'utilisation de l'EGR (recirculation des gaz d'échappement pour réduire les émissions de NO_x), sans risques d'instabilité.

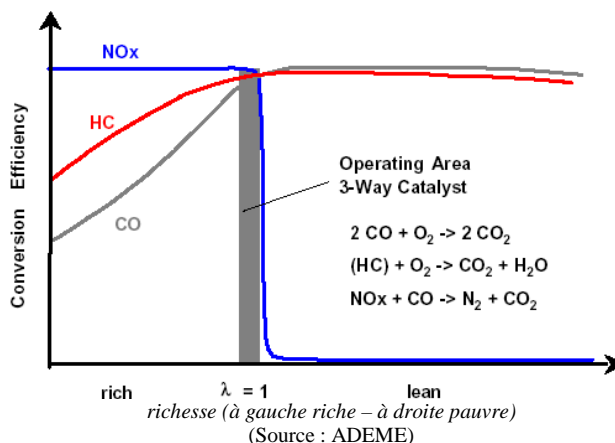
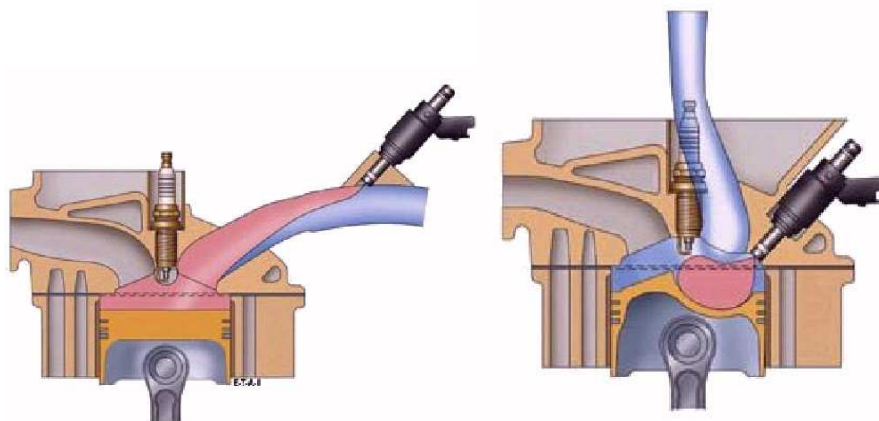


Figure 66 : Efficacité du traitement des émissions polluantes en fonction de leur richesse en oxygène

Les moteurs essence à mélange pauvre et Diesel permettent de réduire la quantité de carburant injecté, donc la consommation en carburant. Mais la catalyse n'est pas efficace sur les NO_x en présence d'excès d'air (la réduction est impossible, le catalyseur assurant uniquement l'oxydation). Au bilan, les émissions peuvent être supérieures à un moteur stœchiométrique (notamment au niveau des NO_x). Cependant, ce type de combustion présente un potentiel d'amélioration important. Apparue en essence sur les véhicules légers, l'injection directe (par exemples, Mitsubishi GDi, PSA HPi) permet, notamment, de réguler la charge par la quantité de carburant, donc de supprimer le boîtier papillon pour réduire les pertes par pompage.



Injection indirecte (mélange stœchiométrique)

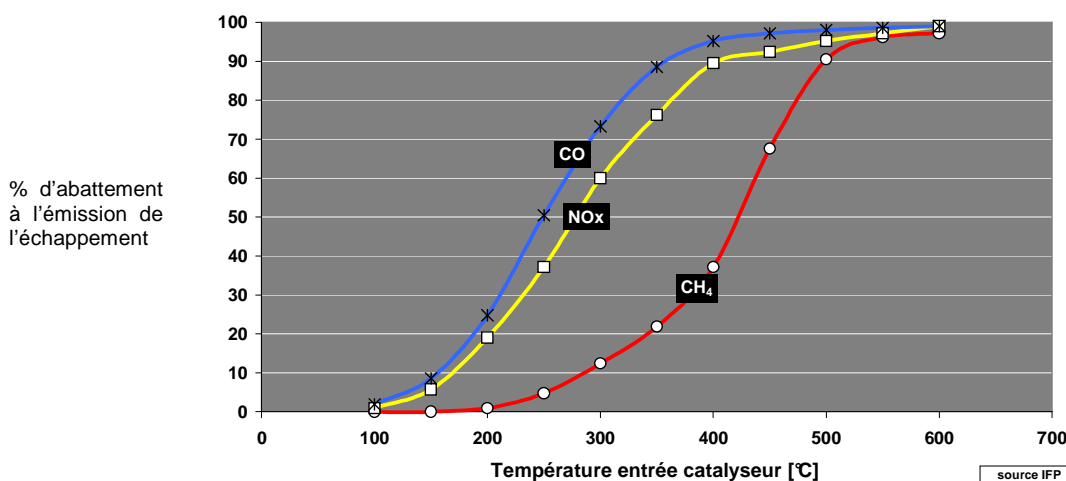
Injection directe (mélange stœchiométrique ou pauvre)

(Source : ADEME)

Figure 67 : Schémas d'un moteur à injection directe et indirecte

Concernant le catalyseur, les métaux précieux utilisés sont généralement un mélange de deux ou trois des éléments suivants: platine, palladium, rhodium. Le platine favorise l'oxydation des hydrocarbures, du monoxyde de carbone et **du NO en NO₂** alors que le rhodium favorise plutôt la réduction des oxydes d'azote. Le rhodium est aussi utilisé pour améliorer les propriétés d'amorçage. En règle générale, il y a environ 1 à 2 grammes de métaux précieux dans chaque pot catalytique.

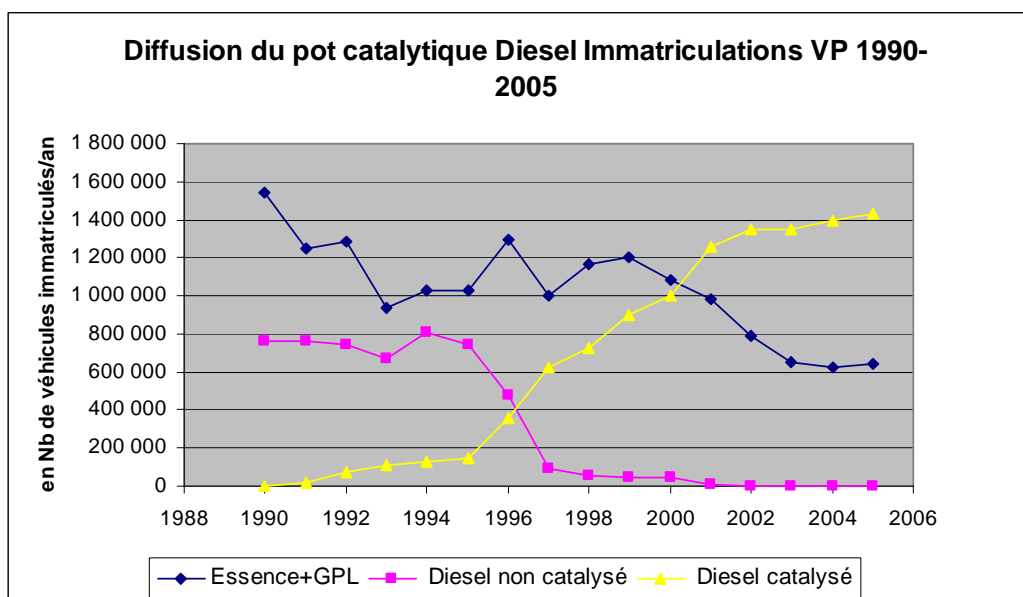
Augmenter la charge en métaux précieux permet d'augmenter l'efficacité de la catalyse mais en grève aussi le prix. Les systèmes OBD ou OBM, qui sont apparus pour Euro4, permettent de contrôler l'efficacité de l'ensemble (régulation de la richesse du mélange et de la catalyse) en continu à bord du véhicule. **Par ailleurs, l'efficacité du catalyseur est très sensible à la température, donc aux conditions d'usage réel du véhicule.**



(Source : IFP)

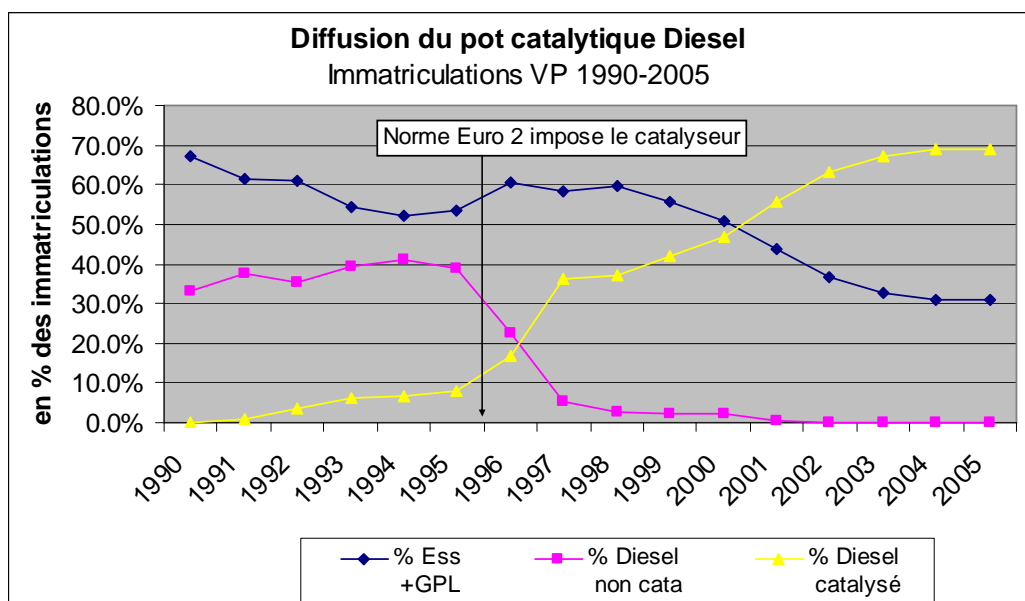
Figure 68 : Efficacité d'un catalyseur 3 voies essence (CO, NO_x, CH₄) en fonction de la température (richesse optimale)

Une estimation de la pénétration de cette technologie sur les véhicules légers Diesel a été réalisée. La norme Euro 2 impose le catalyseur d'oxydation sur les véhicules neufs à partir de 1996, néanmoins quelques véhicules (issus de l'industrie allemande) en possèdent avant 1996.



(Source : ADEME)

Figure 69 : Pénétration du pot catalytique Diesel (nombre des immatriculations VP Diesel 1990-2005)



(Source : ADEME)

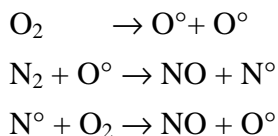
Figure 70 : Pénétration du pot catalytique Diesel (% d'immatriculations VP Diesel 1990-2005)

Systemes de réduction des NO_x

Mécanismes de formation des NO_x

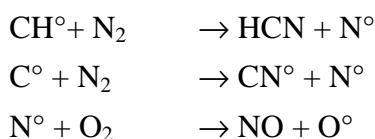
La formation des NO_x provient essentiellement des mécanismes de combustion et de l'interaction, à haute température, des espèces radicalaires produites par la combustion avec l'azote de l'air. Trois mécanismes de formation de ces composés existent, chacun étant influencé par les conditions du milieu : la température, la richesse en oxygène et le temps de séjour des espèces.

- Le mécanisme thermique (ou mécanisme de *Zeldovich*) est issu de l'action au sein même du front de flamme de radicaux libres O° et N° produits par la combustion des espèces N₂ et O₂ à haute température :



Ce mécanisme ne peut intervenir qu'en présence de radicaux libres O° (excès d'air) et à très haute température (1600°C) et donc uniquement sur le front de flamme.

- Le mécanisme *prompt NO* (ou mécanisme de *Fénimore*) est un processus faisant intervenir les hydrocarbures et l'oxygène dans le front de flamme :



- Le troisième mécanisme provient de l'oxydation des composés azotés présents dans le carburant.

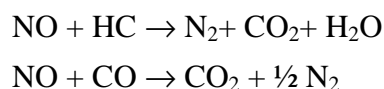
Ces réactions sont thermodynamiquement réversibles (les oxydes d'azote devraient se dissocier lors du refroidissement). Mais leur cinétique, fortement dépendante de la température (les énergies d'activations des réactions sont très élevées), empêche la dissociation des oxydes d'azote lors du refroidissement des gaz au moment de la phase de détente dans la chambre et à l'échappement. Les niveaux de polluants à l'émission sont donc influencés pour partie par les conditions de températures (en particulier les valeurs maximales de températures atteintes et la durée du processus de combustion).

Mécanismes de traitement des NO_x

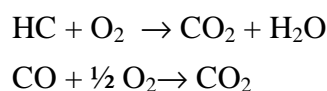
Le traitement des NO_x, qui passe par leur réduction (NO et NO₂ → N₂), doit se faire en tenant compte des contraintes suivantes :

- La réduction des oxydes d'azote nécessite la présence d'un agent réducteur qui se combinera avec eux par une réaction d'oxydoréduction. La voie la plus naturelle, dans les gaz d'échappement, est d'utiliser les composés imbrûlés (HC et CO). Dans le cas des moteurs Diesel ou essence à mélange pauvre, la présence d'oxygène résiduel amène une concurrence entre les deux mécanismes suivants :

- La réduction de NO par les réactions suivantes :



- L'oxydation par l'oxygène :



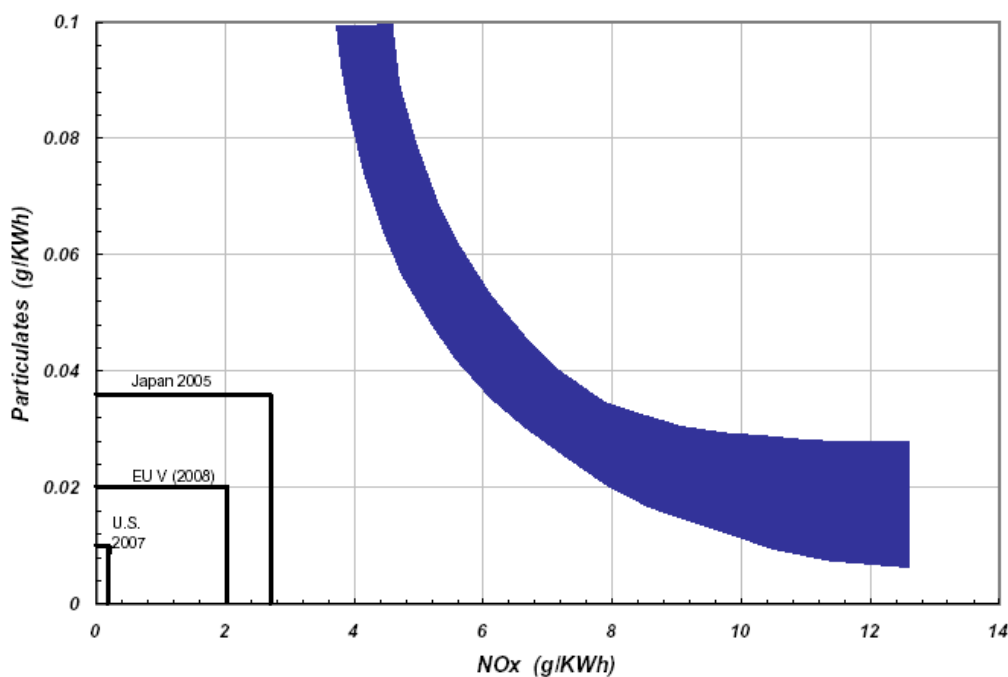
Suivant le type d'agent réducteur, l'un ou l'autre des mécanismes sera favorisé. Le choix de cet agent est donc conditionné par la sélectivité de ce dernier vis-à-vis des deux mécanismes. Dans le cas des hydrocarbures, c'est généralement l'oxydation par l'oxygène qui est prédominante. En effet, seule une proportion faible des HC injectés contribue à la réduction des NO_x.

- Les températures d'échappement Diesel (200°C à 500°C) sont basses au regard des températures requises pour que les réactions de dissociation des NO_x puissent intervenir. Toute réaction de traitement des NO_x ne pourra s'effectuer qu'en ayant recours à des supports catalytiques.

Le traitement des émissions de NO_x pour les moteurs Diesel demeure donc problématique. Il faut également rappeler que les niveaux de NO_x à l'émission sont représentatifs de la qualité de la combustion (plus les niveaux sont élevés, plus la combustion est chaude donc performante) et en conséquence, du rendement moteur (plus les niveaux sont élevés, plus le rendement est élevé).

Pour limiter les rejets de NO_x, plusieurs démarches sont possibles :

- limiter la formation à la source des oxydes d'azote en rendant les conditions chimiques et thermodynamiques du mélange de gaz moins défavorables. Les solutions proposées font généralement intervenir des techniques moteur (injection, aérodynamique des gaz, recyclages des gaz brûlés) pour permettre une meilleure combustion et une limitation de la température. Ces techniques sont réservées au développement de nouveaux moteurs. Il faut retenir par ailleurs que les émissions polluantes sont, à la sortie du moteur, liées entre elles. Toute réduction des NO_x va induire une augmentation des émissions de particules et l'inverse est également vrai (pour un moteur donné, le compromis NO_x/particules se représente par cette courbe bleue ci-dessous) ;



(Source : Global Insight)

Figure 71 : Relation entre les émissions moteur de NO_x et de particules

- rendre possible la réduction des émissions de NO_x. Les solutions passent ici par l'utilisation de supports catalytiques, couplés à une modification du milieu par introduction d'un agent réducteur, de manière continue ou séquentielle.

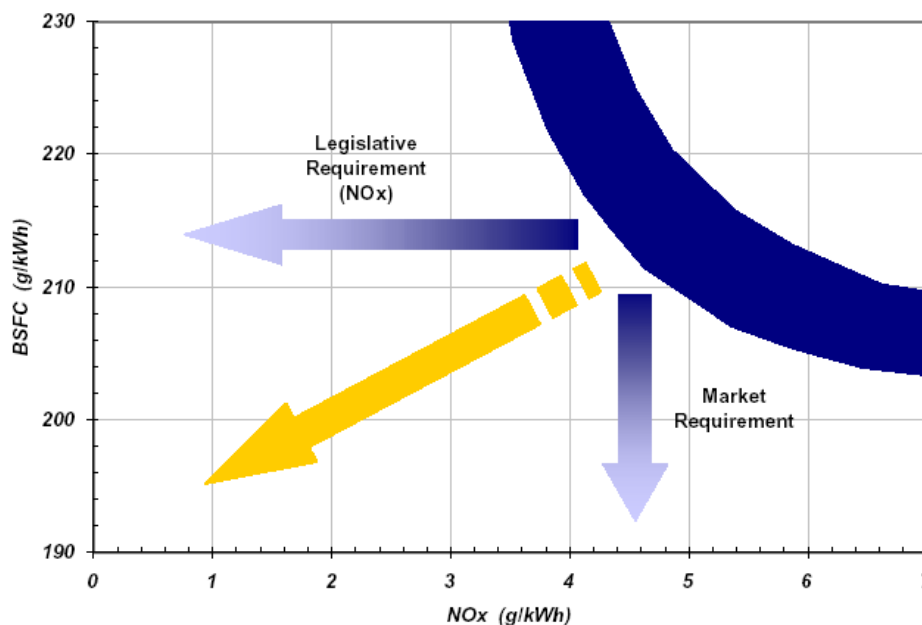
Les différentes voies technologiques de réduction des émissions de NO_x sont présentées ci-après avec une description :

- des principes physiques de fonctionnement et leurs limites ;
- du fonctionnement technique des principaux systèmes.

Améliorations moteurs

Les émissions de NO_x représentent indirectement le rendement moteur puisque ces dernières sont essentiellement produites à haute température. Ainsi, vouloir réduire les NO_x peut conduire à réduire le rendement en modifiant en premier lieu l'avance à l'injection. Les solutions proposées font généralement intervenir des techniques moteur (injection, aérodynamique des gaz, recyclages des gaz brûlés) pour permettre une meilleure combustion et une limitation de la température.

Pour un moteur donné, le compromis NO_x/rendement se représente par la courbe bleue ci-dessous. Le rendement étant exprimé par la consommation spécifique BSFC - Brake specific fuel consumption, plus cette consommation est élevée, plus le rendement est faible. La flèche jaune représente la direction imposée par le marché pour abaisser à la fois les NO_x (norme Euro) et la consommation.



(Source : Global Insight)

Figure 72 : Relation entre les émissions moteur de NO_x et la consommation spécifique BSFC

Les solutions présentées ici ont le double intérêt de permettre une amélioration des performances du moteur (en général en limitant les pertes énergétiques) et une réduction des émissions d'imbrûlés, par une meilleure combustion.

On obtient donc, pour des conditions de charge et de régime moteur données, un meilleur compromis NO_x/particules. Ces solutions sont par nature développées pour les nouvelles générations de moteurs et ne peuvent pas être utilisées en application *retrofit* (c'est à dire, en installation sur un moteur existant).

Les évolutions technologiques des moteurs Diesel ont accompagné les différentes étapes normatives.

L'entrée en vigueur de la norme Euro2/II en 1996 a initié la généralisation des techniques d'amélioration de l'écoulement et de réduction des pertes énergétiques (4 soupapes/cylindre, air turbocompressé refroidi, optimisation de la chambre et des écoulements). Pour les véhicules particuliers, les techniques d'injection directe (déjà présentes pour les poids lourds) avec des pressions d'injection plus élevées (gouttes plus fines) sont apparues.

L'étape suivante Euro3/III a contribué à l'utilisation de systèmes permettant une injection à très haute pression d'une quantité contrôlée et phasée de carburant. Ces systèmes, déjà largement répandus, sont :

- le *common rail*, constitué d'un accumulateur (le rail) alimenté en gazole à haute pression par une pompe hydraulique. La pression dans le rail est maintenue à un niveau très supérieur à celui de la chambre, l'injection se fait par une commande électrique sur l'injecteur reliant le rail à la chambre. La quantité de carburant injectée et le phasage sont directement pilotés par le signal électrique d'ouverture de l'injecteur ;
- les *injecteurs-pompes* unitaires (un par cylindre), envoyant eux aussi un gazole à très haute pression dans la chambre. La compression du gazole est générée par une commande de came³⁶, placée sur l'injecteur même (d'où le nom).

Ces solutions permettent une grande flexibilité des lois d'injection car ces dernières sont contrôlées électroniquement (l'instant d'ouverture et la fermeture de l'injecteur). Les lois peuvent être ainsi adaptées pour favoriser le rendement du moteur ou la limitation des rejets.

Les évolutions suivantes concernent principalement l'utilisation d'une « pré-et-post » injection permettant une optimisation du fonctionnement des post-traitements, comme la régénération des filtres à particules ou la dénitrification des pièges à NO_x.

Réduction des NO_x par l'EGR (recirculation des gaz d'échappement)

Le principe de l'EGR réside dans l'introduction d'une quantité donnée de gaz d'échappement en remplacement d'une partie de l'air frais à l'admission des moteurs Diesel ou essence. Ce recyclage a plusieurs effets sur le processus de combustion :

- pour une quantité de gazole injectée, le remplacement partiel de l'air (contenant 21 % d'O₂) par des gaz d'échappement (contenant généralement moins de 10 % d'O₂) conduit à une limitation de la concentration d'oxygène, ce qui réduit pour une température donnée la formation des NO_x ;
- la présence de CO₂ augmente la capacité calorifique du mélange du fait de sa forte chaleur massique ; la température de flamme sera donc plus faible pour une énergie délivrée égale ; le CO₂ a une légère action inhibitrice sur la combustion (on observe une faible dissociation du CO₂ durant le processus) « captant » une partie de l'énergie dégagée ;
- les gaz recyclés étant généralement plus chauds que l'air frais à l'admission, l'utilisation de l'EGR peut conduire à une augmentation de la température de mélange à l'admission. On a donc recours à des systèmes de refroidissement des gaz recirculés.

36 Une came est un organe mécanique destiné à transformer un mouvement de rotation en mouvement de translation ou de rotation.

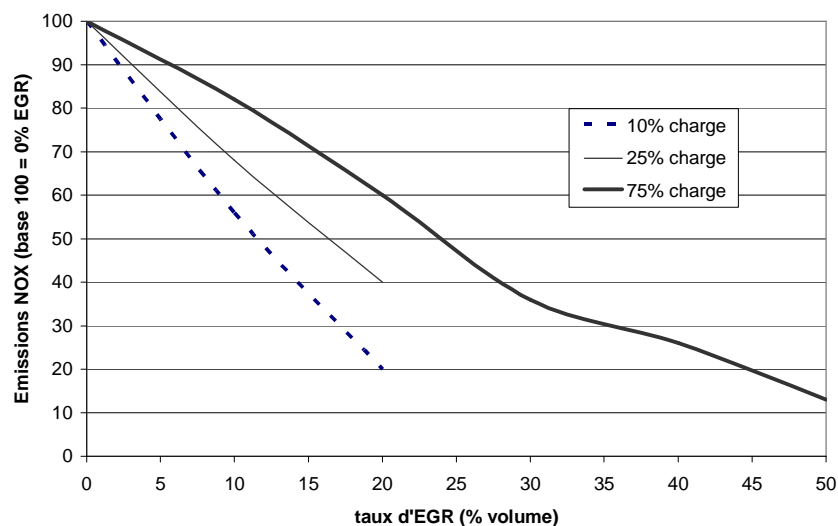
Ces trois effets conduisent donc à :

- une limitation des émissions de NO_x d'autant plus importante que la fraction de gaz recirculés (appelée généralement taux d'EGR) est grande ;
- une tendance à l'augmentation des émissions de composés imbrûlés (HC et particules), cette tendance est également croissante avec le taux d'EGR ;
- une réduction des performances du moteur.

Le choix du taux d'EGR est donc conditionné par le compromis entre la réduction des émissions de NO_x que l'on cherche à obtenir, la limitation de l'augmentation des émissions d'imbrûlés et la perte des performances énergétiques.

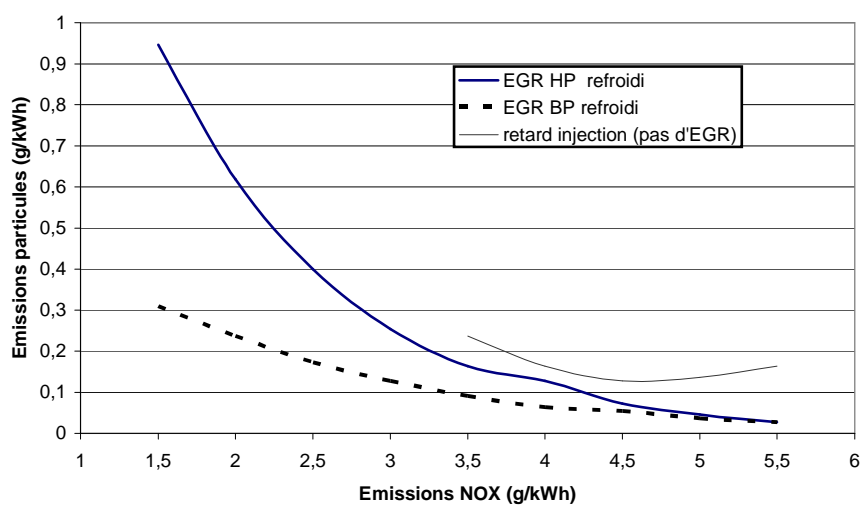
Des effets opposés peuvent être observés au niveau de la consommation de carburant :

- le ralentissement de la combustion conduit à une baisse de rendement, donc à une augmentation de la consommation ;
- à faible charge, la plus grande température d'admission est de nature à favoriser le processus de mélange, donc à favoriser la combustion, donc à diminuer la consommation.



(Source : Ademe)

Figure 73 : Emissions NO_x d'un moteur en fonction du taux d'EGR pour différentes charges



(Source : Ademe)

Figure 74 : Potentialité de dépollution de l'EGR : compromis NO_x / particules

La voie technologique de l'EGR est utilisée depuis plusieurs années sur les véhicules légers (essence puis Diesel) et récemment sur les poids lourds.

Réduction des NO_x par les systèmes de Post-traitement

Le rôle d'un post-traitement est d'éliminer par voie chimique les principaux polluants issus de la combustion des carburants dans l'air. Globalement, deux types de réactions sont mis en œuvre :

- l'oxydation des espèces issues de la combustion incomplète (HC, CO et particules) ;
- la réduction des oxydes d'azote.

Comme expliqué précédemment, les échappements des moteurs Diesel se caractérisent par la présence d'oxygène résiduel et par des températures relativement basses. La problématique est donc double : cinétique (température) et chimique (présence d'oxydant). Les solutions existantes font appel à des artifices visant à rendre possible la réaction de réduction des oxydes d'azote :

- l'introduction d'un agent réducteur permettant la transformation chimique

$$\text{NO et NO}_2 \rightarrow \text{N}_2$$
- des voies limitant l'énergie d'activation des réactions de réduction des NO_x (par voie catalytique ou par génération d'espèces hautement réactives (plasma)).

La réduction catalytique sélective (SCR, Selective Catalytic Reduction)

Principes chimiques :

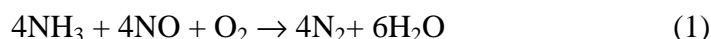
La présence d'un catalyseur permet d'abaisser la température optimale de réaction et d'injecter l'agent réducteur (en général de l'urée) dans une zone plus lointaine du foyer et moins sensible aux fluctuations de la charge, c'est la SCR. Cette méthode, développée au Japon dans les années 1970, est largement appliquée actuellement, notamment pour la dépollution des effluents gazeux des sources stationnaires. Un bon catalyseur doit être actif et sélectif, sa durée de vie doit être la plus longue possible (résistance aux SO₂, aux variations de température, à l'humidité et à l'érosion).

Les systèmes automobiles se basent sur l'injection à l'échappement d'un agent réducteur offrant une sélectivité favorable vis-à-vis des NO_x et d'un catalyseur dédié. Ils disposent de catalyseur(s) d'oxydation destiné(s) à traiter les polluants imbrûlés et à éliminer le surplus de réducteur n'ayant pas réagi.

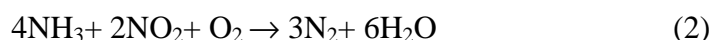
Plusieurs mécanismes chimiques interviennent au sein d'un catalyseur SCR. Plusieurs de ces mécanismes amènent une conversion directe des NO et NO₂ en N₂, d'autres conduisent à des effets parasites.

Réduction catalytique :

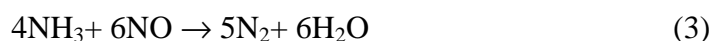
Il s'agit du mécanisme principal faisant intervenir les espèces NO et NO₂. La stœchiométrie de la réaction globale de réduction des NO_x donne :



Pour le ratio NH₃/NO = 1 aux températures inférieures à 400°C, c'est la première réaction (1) qui est majoritaire. Les catalyseurs de type V₂O₅ catalysent la réduction de NO₂ en présence de O₂ :

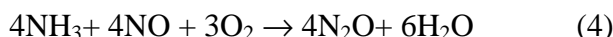


En l'absence (ou en défaut) de O₂, la réaction (1) devient :



Mécanismes parasites :Formation de protoxyde d'azote (N₂O)

La réaction entre NO et NH₃ peut aussi donner un produit indésirable, le N₂O :



N₂O peut également provenir de l'oxydation de NH₃ (réaction (8)), et de la recombinaison de NO seul, sans participation de NH₃, selon les réactions suivantes :



La réaction (5) peut être une étape intermédiaire pour la décomposition de NO en N₂ et O₂. La réaction (6) est la dissociation de NO en phase gazeuse favorisée par la haute pression. En pratique dans les conditions « classiques » de la SCR (NH₃/NO voisin de 1), T < 400°C, la réaction (4) est prédominante. La SCR peut donc conduire à émettre sous certaines conditions du N₂O.

Oxydation directe de l'ammoniac

Lorsque le rapport NH₃/NO est supérieur à 1, le NH₃ en excès peut être oxydé par O₂ au lieu de NO via une des réactions suivantes, qui conduisent à former des espèces représentatives des différents niveaux d'oxydation de l'espèce azote (N₂, N₂O ou NO) :



En général, à des basses températures (T < 350°C), la réaction (7) est favorisée par rapport à la réaction (9), **le contraire se produit à des températures élevées**. Ce dernier point est à retenir car la SCR peut donc conduire à émettre sous certaines conditions du NO.

Formation de nitrate d'ammonium (NH₄NO₃)

Pour des très basses températures (100 à 200°C), la combinaison de NH₃ et NO₂ peut conduire à la formation de nitrate d'ammonium NH₄NO₃ :



Cette réaction est favorisée par les fortes teneurs en NH₃, un fonctionnement de la SCR en mélange pauvre (c'est à dire, avec un défaut de NH₃ par rapport à la quantité stœchiométrique) limitant cet effet.

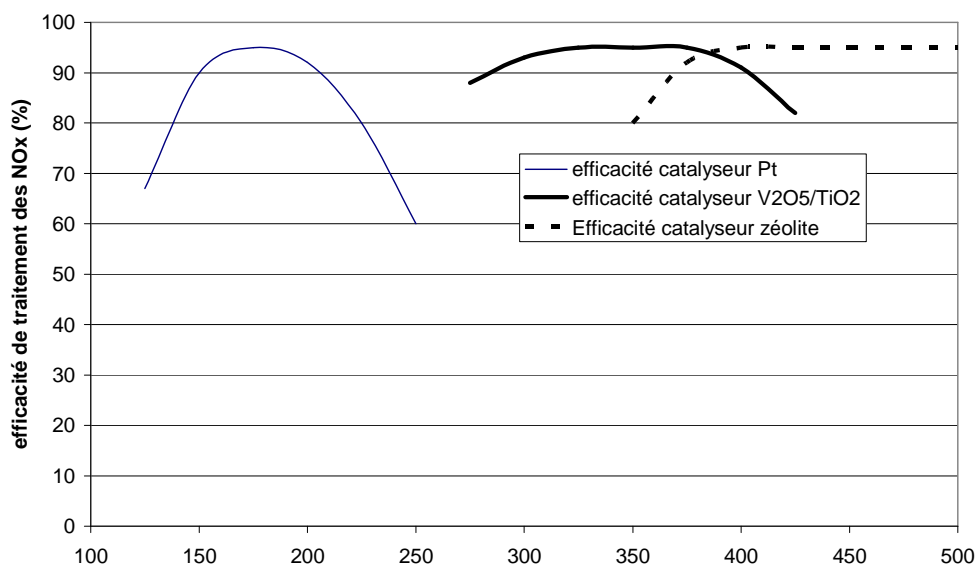
Action du soufre

Lorsque le carburant contient du soufre, ce dernier se combine à l'ammoniac pour former des composés dont le **sulfate d'ammonium**, qui inhibe l'action catalytique SCR. Les réactions font intervenir l'espèce SO₃ qui provient de l'oxydation du SO₂ sur les catalyseurs platine :



Les catalyseurs :

Plusieurs types de catalyseurs et de supports sont possibles pour la catalyse SCR. Il a été prouvé que tout oxyde métallique actif pour la catalyse d'oxydation peut avoir un effet pour la SCR. Les différents systèmes se différencient par leur plage d'utilisation (la zone d'activité en termes de température), leur résistance au soufre et au vieillissement. Le graphique ci-dessous montre l'efficacité des différents catalyseurs en fonction de la température.



(Source : Ademe)

Figure 75 Efficacité de différents catalyseurs sur la réduction des NO_x en fonction de la température

En résumé, le système de catalyseur V₂O₅-WO₃/TiO₂ apparaît actuellement comme la meilleure solution pour la catalyse SCR : la réaction (1) est plus rapide que celles (4) et (9) à des températures entre 250-500 °C. L'activité à basse température de ces catalyseurs peut être améliorée par une oxydation préalable du NO en NO₂ (catalyseur d'oxydation qui doit être placé en amont de l'injection d'urée). L'absence de soufre dans le carburant est cependant nécessaire pour ce type de système (sulfates). Les catalyseurs basés sur les métaux purs Fe, Cu, Cr et Mn ou leurs oxydes sur les supports de TiO₂ ou Al₂O₃ favorisent les réactions (4) –formation de N₂O– et (9) – oxydation directe de NH₃ par O₂ –, car ils sont moins sélectifs à la production de N₂ (réaction (1)) que V₂O₅.

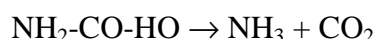
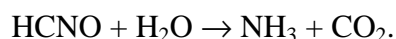
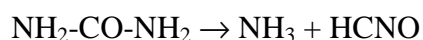
Agents réducteurs :

À ce jour, différentes solutions ont été identifiées : ammoniac, urée, carbonate d'ammonium.

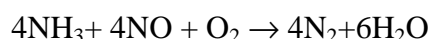
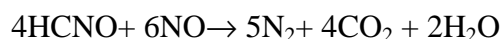
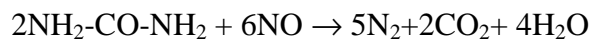
L'ammoniac possédant une odeur caractéristique détectable à de très faibles teneurs et présentant une certaine toxicité, n'apparaît pas comme l'une des meilleures solutions.

L'utilisation d'urée (NH₂-CO-NH₂) à l'état pur semble peu applicable à l'automobile (le produit est solide). A bord du véhicule, l'urée est stockée sous forme de solutions contenant en général entre 30 à 35 % d'urée. L'urée, composé industriel largement utilisé pour des applications agricoles (engrais) et alimentaires, présente une toxicité bien moindre de celle de l'ammoniac et ne pose pas de problème d'odeur.

L'urée agit sur les oxydes d'azote en partie par sa décomposition et son hydrolyse (intervenant à plus de 160°C sur support catalytique), qui conduisent à former l'ammoniac et l'acide isocyanique :

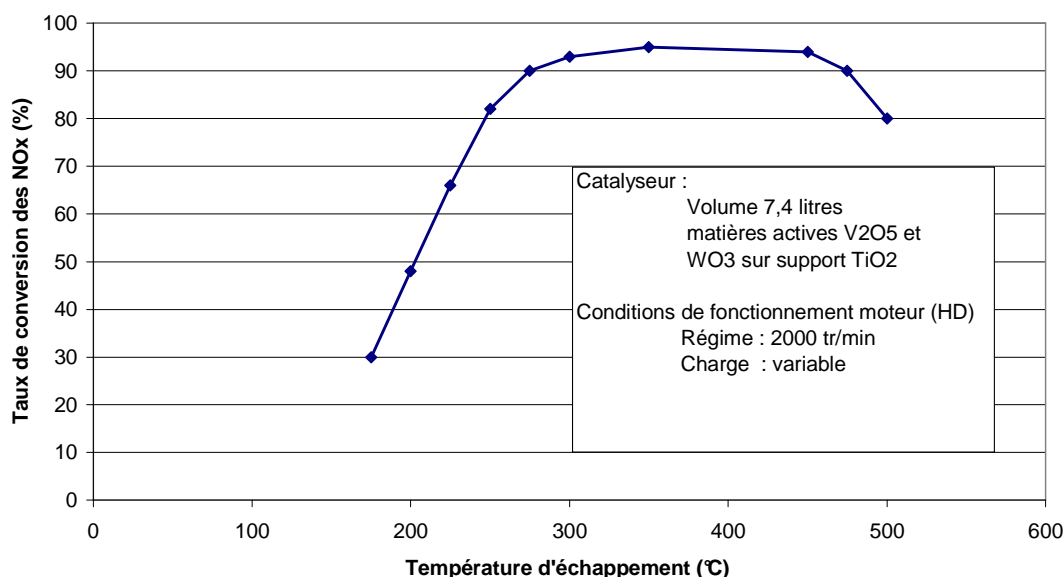


L'ammoniac formé peut ensuite réagir avec les oxydes d'azote (réactions (1), (2), (3) et(4)), ainsi que le sous-produit de décomposition de l'urée (HCNO) et l'urée directement :



Les NO_x ne sont donc pas réduits seulement par NH₃, mais aussi par l'urée et par son sous-produit de décomposition (HCNO). L'utilisation de l'urée est attrayante car il s'agit d'un composé très peu toxique et facilement transportable en solution aqueuse à bord du véhicule. Le rendement massique de la conversion est moins favorable que pour l'ammoniac (1g de NH₃ pour 1g de NO_x), car il faut environ 2,5g de solution par gramme de NO_x produit. Le fonctionnement à l'urée n'est cependant pas exempt de difficultés liées notamment au point de givrage (-11°C; des additifs abaissent cette température à -30°C) et à la faible efficacité du catalyseur aux basses températures (en dessous de 200°C). Sur ce dernier point, l'urée aux basses températures peut en effet encrasser le catalyseur et réduire ainsi son efficacité.

L'efficacité intrinsèque et la plage d'activité de la SCR sont très attrayantes car elles couvrent la majorité des températures d'échappement Diesel avec un fort taux de conversion, à l'exception des très basses températures. Le graphique ci-dessous montre l'efficacité de la catalyse SCR mesurée sur un moteur en utilisant une solution d'urée à 34,4% en masse. Le régime est fixé, la température a été modifiée en changeant la charge.



(Source : Ademe)

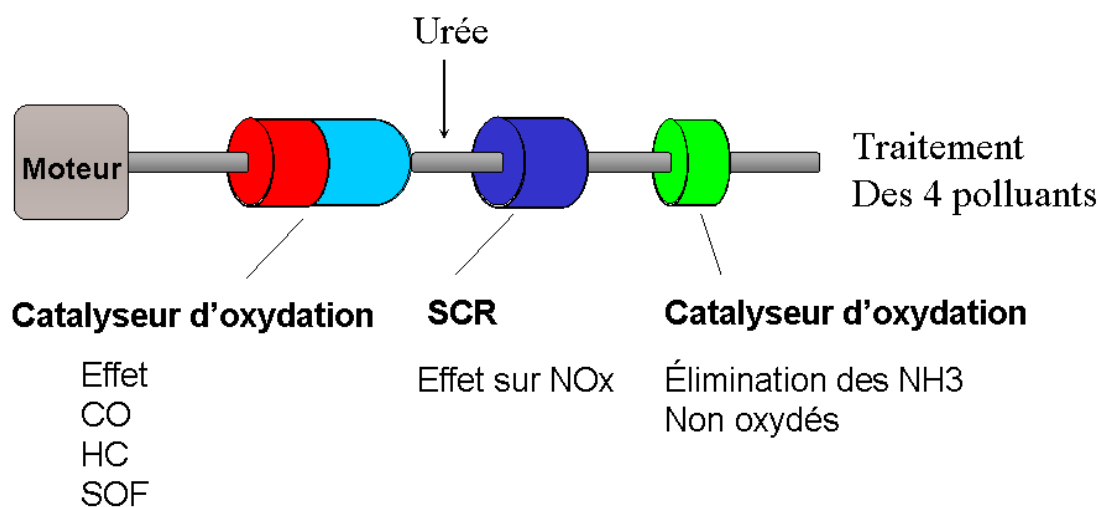
Figure 76 : Efficacité d'une catalyse SCR en fonction de la température

Equipement :

D'un point de vue technologique, ces systèmes nécessitent un dispositif de stockage embarqué, un système d'injection et un système de contrôle de la quantité injectée qui permet à chaque instant de fournir la quantité d'agent réducteur juste nécessaire au traitement des NO_x émis. La mise en place de ce système pose les mêmes difficultés techniques que pour les systèmes basés sur l'injection d'hydrocarbures (caractère transitoire des émissions, nécessité de régler le système pour chaque moteur préalablement à toute installation en cas d'absence de capteur de concentration instantanée de NO_x, durabilité). Ces systèmes doivent également faire intervenir quatre catalyseurs :

- un catalyseur d'oxydation permettant le traitement des émissions CO, HC et une conversion partielle de NO en NO₂ pour l'hydrolyse de l'urée ;
- un catalyseur permettant l'hydrolyse de l'urée et la formation d'ammoniac. Les principes actifs utilisent des oxydes métalliques (TiO₂, Al₂O₃, TiO₂) ;
- un catalyseur pour la SCR ;
- un second catalyseur d'oxydation sur support Pt pour détruire les résidus de l'oxydation incomplète de l'ammoniac (dit *ammonia slip* ou *clean-up*) : un catalyseur Pt/Al₂O₃ est utilisé pour atteindre des concentrations d'ammoniac à l'échappement inférieures à 10 ppm. En effet, l'ammoniac et son sous-produit de décomposition l'acide isocyanique sont des irritants respiratoires. **Ce dernier catalyseur pourrait également transformer le NO restant en NO₂.**

La Figure 77 montre la complexité du système ainsi obtenu :



(Source : ADEME)

Figure 77 : Schéma d'un système catalytique avec SCR

Principales voies de progrès attendues :

Les principales voies de progrès attendues concernent donc :

- la régulation du système d'injection de l'agent réducteur des NO_x et la fiabilité de ce système ;
- la réduction de volume et de complexité du système catalytique par le couplage sur un seul média de plusieurs fonctions catalytiques ;
- le couplage avec un FAP et éventuellement un EGR, ce qui autorise de nombreuses combinaisons et nécessite d'optimiser le système complet car des synergies existent. Pour Euro VI, le système de post traitement comportera vraisemblablement : FAP, SCR, avec l'EGR.

Production et distribution de l'urée :

Cette voie est choisie en Europe pour la dépollution de certains véhicules lourds. Les producteurs européens proposent la solution d'urée (AdBlue) parce qu'une solution d'urée de haute qualité est exigée pour les véhicules Euro4 et 5 utilisant la SCR.

Ceci est associé à la mise en place d'une structure de distribution de l'urée, dont le prix à la pompe devrait être aux alentours de 0,5 €/litre, et des stratégies pour contraindre l'utilisateur à faire le plein de ce fluide sont en cours (norme Euro V) :

- avertissement que le niveau minimal dans le réservoir d'urée est atteint ;
- si le plein n'est pas fait, réduction des performances du véhicule (donc des émissions de NO_x), lui permettant d'atteindre la prochaine station.

Le site www.findadblue.com permet de trouver une station de distribution en Europe.

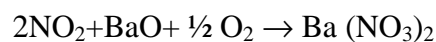
*Les pièges à NO_x***Principe :**

Les pièges à NO_x sont une technologie combinant un système de captage des NO_x par adsorption et un catalyseur à trois voies. Le système de piège est constitué d'oxydes d'alcalino-terreux, tel que l'oxyde de baryum BaO qui est principalement utilisé. Le support est l'oxyde d'aluminium (Al₂O₃). La catalyse est effectuée par des métaux précieux (platine, rhodium).

Le fonctionnement de ces systèmes comporte deux phases.

- En mélange pauvre, le processus d'adsorption est le suivant :

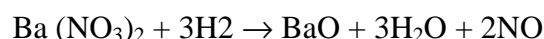
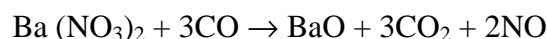
Le NO est oxydé sur le support platine en NO₂, le NO₂ est alors adsorbé par le piège à NO_x selon la réaction (globale) suivante :



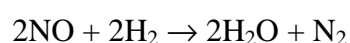
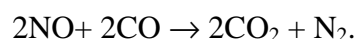
Ainsi, durant cette phase de fonctionnement, le piège se « remplit » progressivement, le support à base de baryum se nitrifiant. Ce processus de stockage est limité par la capacité du piège. Lorsque ce dernier est « plein » (plus de BaO), les émissions de NO_x à la sortie du piège et à l'échappement augmentent.

- La seconde étape est la régénération du piège qui s'effectue par un enrichissement momentané du mélange en carburant à l'échappement moteur ou dans la chambre (post-injection), conduisant à des émissions d'hydrocarbures. Le processus chimique est le suivant :

Le relargage des NO_x par le piège se fait par action des imbrûlés (substitution des nitrates par de l'oxygène) :



Les NO_x sont ensuite réduits sur le support rhodium par le CO et l'hydrogène:



La consommation théorique de ce type de système peut être connue à partir de la stœchiométrie globale de la réaction de régénération du piège. 0,051 mole de C₁₆H₃₄ (formule moyenne du gazole) est nécessaire pour convertir une mole de NO et N₂. En supposant des émissions spécifiques de 2,45 g/ch.h et une consommation de 155 g/ch.h, on obtient une surconsommation de carburant de 0,6 % dans les conditions idéales.

Systemes catalytiques :

Les systèmes de pièges à NO_x intègrent la fonction piège et un catalyseur à trois voies.

En ce qui concerne la matière active, les choix suivants sont possibles :

- les éléments alcalino-terreux (principalement le baryum) ;
- les métaux alcalins (K, Na, Li, Cs) utilisés sous formes d'oxydes. Ils offrent une large fenêtre d'activité en termes de température et une bonne résistance au soufre. Ils ont cependant un effet néfaste sur la durabilité des catalyseurs associés utilisant les métaux précieux.

Pour le matériau support, les solutions suivantes sont possibles :

- l'alumine (Al₂O₃) largement répandue car déjà utilisée pour les catalyseurs à 3 voies ;
- l'oxyde de cérium/zircone, qui offre une fonction stockage d'oxygène (fonction attrayante pour l'application catalyse à trois voies, car elle permet quelques variations de richesse du mélange sans réduire l'efficacité du catalyseur). La difficulté réside alors dans la rapidité des fonctions adsorption, désorption et régénération ;
- le dioxyde de titane, qui présente l'avantage d'offrir une meilleure résistance au soufre mais une moins bonne adsorption.

Mise au point et caractérisation des pièges à NO_x :

La mise au point du piège à NO_x est une opération relativement complexe. Elle se heurte à deux problèmes majeurs :

- les stratégies de régénération et de désulfatation des pièges, qui font intervenir le système contrôle moteur, avec des couplages avec le FAP ;
- l'intégration du système dans une ligne d'échappement.

Enrichissement du mélange :

Cet enrichissement est déclenché automatiquement. Il doit intervenir sans modification du couple moteur. L'utilisation d'une quantité minimale d'hydrocarbures est recherchée afin de réduire la consommation. A ce niveau deux types d'actions sont menés.

- L'injection de carburant à l'échappement. Pour être efficace, cette solution doit permettre de « charger » les gaz en hydrocarbures tout en éliminant l'oxygène. Pour ce faire, il faut donc prévoir la quantité de HC nécessaire à la réduction de l'oxygène résiduel. Les inconvénients de cette technique sont la surconsommation et l'échauffement du catalyseur.
- L'enrichissement dans la chambre (post-injection). Cette voie est rendue possible par les technologies de type *common rail*. L'écart de couple disponible, engendré par le surplus de carburant, est généralement compensé par une modification de la pression/du phasage de l'injection de l'EGR et de la suralimentation. Cette voie est la plus explorée actuellement.

Intégration du système :

L'utilisation du piège à NO_x pour la dépollution automobile est envisagée comme un élément d'un système de dépollution traitant simultanément les quatre polluants principaux (CO, HC, NO_x, PM). En pratique, les pièges à NO_x seront couplés à un filtre à particules.

L'US-EPA a réalisé sur banc moteur (Figure 78) un démonstrateur utilisant deux chaînes de traitement (FAP + DeNO_x) parallèles et pilotées en utilisant des sondes NO_x zircons afin de contrôler la régénération. Ce système dont l'efficacité est très importante (93 % d'abattement des émissions de NO_x en sortie d'échappement et 98 % pour les particules) induit une surconsommation en carburant de 2,3 %.



(Source : <http://www.dieselnet.com/>)

Figure 78 : Banc moteur expérimental FAP + DeNO_x (US-EPA)

Signalons pour clore cette section, qu'une voie a été ouverte par Toyota avec son système **DPNR** (Diesel Particulate-NO_x Reduction System) couplant FAP et piège à NO_x, pour lequel le support des pièges à NO_x n'est autre que le filtre à particules.

Des mesures comparatives de plusieurs véhicules équipés de filtres à particules ont été réalisées par l'établissement de recherche EMPA en Suisse et par l'INRETS³⁷ (financement ADEME). Ces études montrent que le système DPNR est globalement aussi efficace, au niveau de la réduction de la masse de particules rejetées à l'échappement, que les autres technologies de filtres à particules actuellement sur le marché. Cependant, une analyse granulométrique fine a permis de constater que le filtre DPNR retenait moins bien les particules que les autres modèles et ce, sur l'ensemble du spectre de taille (10 à 1000 nm). Concernant les émissions d'oxydes d'azote, le bilan est plus mitigé. L'analyse véhicule par véhicule montre qu'en termes de NO_x, certains modèles non pourvus d'un système de post-traitement ciblé fonctionnent aussi bien, voire mieux, sur plusieurs types de cycles de roulage, qu'un modèle équipé du filtre DPNR.

37 Rapport INRETS MTE N°0624, juillet 2006

Conclusion sur les systèmes de pièges à NO_x :

Ces systèmes présentent de fortes potentialités en termes de réduction des émissions NO_x (supérieures à 75 %). Ces systèmes ont un effet sur la consommation en carburant car une injection de carburant est requise pour activer leur régénération, tant pour le relargage des NO_x que pour la désulfatation.

Voies de recherche :

La catalyse sélective DeNO_x par hydrocarbures

Dans les gaz d'échappement en présence d'oxygène en excès (le cas des moteurs Diesel), la quantité de réducteurs n'est pas suffisante pour agir sur NO. De plus, selon la thermodynamique de réactions, les réactions d'oxydation des HC et CO par l'O₂ seront prioritaires par rapport à celle impliquant le NO.

Cette voie technologique consiste donc à :

- choisir des catalyseurs qui sont sélectifs pour la réduction des NO_x :

Plusieurs études ont montré l'amélioration de la performance catalytique de différents types de métaux et/ou oxydes des métaux (Cu, Co, Ag, Pt, Rh, MoO₃, V₂O₅, et C) sur différents types de supports (zéolites (ex. ZSM-5), alumine, SiO₂, YSZ, etc.) en utilisant une molécule d'hydrocarbure spécifique (et non un carburant) comme réducteur (notamment des oléfines dont le nombre de carbone est inférieur à 5) ;

- utiliser des hydrocarbures comme agent réducteur de NO_x en présence d'oxygène. Cette réduction intervient sur support catalytique. Deux voies sont possibles :

- Utilisation des hydrocarbures naturellement présents dans les gaz d'échappement (cette voie est appelée catalyse passive). Elle n'offre qu'une très faible efficacité (maximum 10 %) compte tenu des faibles teneurs en HC des gaz d'échappement Diesel et de la faible sélectivité des espèces HC (qui sont prioritairement oxydés par l'oxygène plutôt que par les NO_x).
- Catalyse de NO_x active par hydrocarbures. Elle se base sur l'injection de carburant pour réduire les NO_x. Les supports catalytiques utilisés sont les mêmes que pour la catalyse passive par hydrocarbures.

Couplage piège à NO_x /SCR

Récemment, une solution couplant piège à NO_x et SCR est proposée notamment par Eaton (www.eaton.com) pour les véhicules lourds, et par Honda et Mercedes pour les véhicules particuliers. Cette solution permet, sans embarquer d'urée, de réduire efficacement les NO_x. Le piège à NO_x associé à une surinjection de carburant pour passer en phase riche, produit du NH₃ qui est stocké sur le catalyseur SCR. Ce dernier est utilisé pour réduire les NO_x.

Les résultats obtenus sur PL sont de plus de 80% de réduction de NO_x. Cette solution présente donc des avantages mais la surconsommation de carburant, et les émissions de CO₂ associées, sont à chiffrer précisément, compte tenu du besoin de carburant pour « nettoyer » le piège des sulfates et pour produire le NH₃. De plus, cette technologie doit être évaluée pour toutes les applications, notamment celles pour lesquelles les températures de fonctionnement sont les plus faibles comme les véhicules urbains.

Tableau X : Récapitulatif sur les systèmes SCR

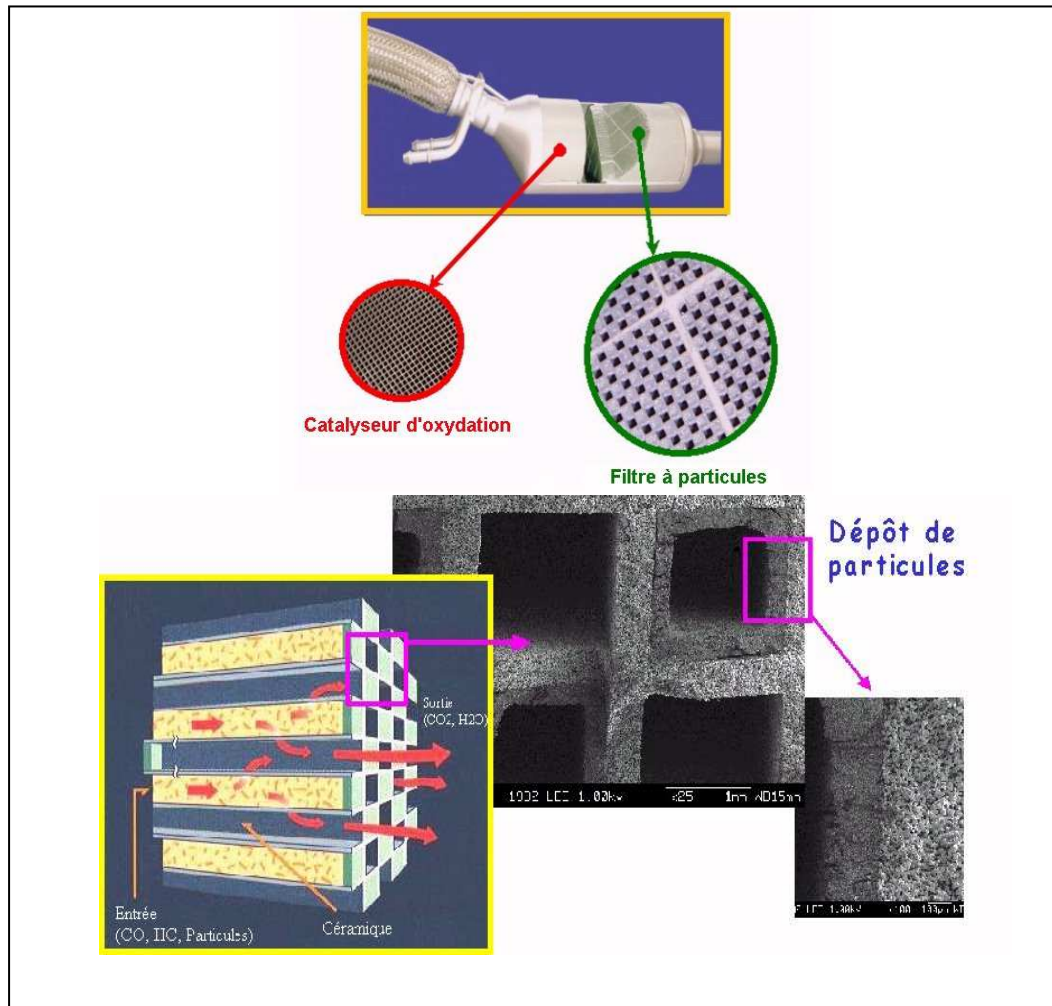
<p><u>Composants :</u></p> <ul style="list-style-type: none"> - un 1^{er} catalyseur d'oxydation (traitement des émissions CO, HC et conversion partielle de NO en NO₂) - un catalyseur (hydrolyse d'urée et formation d'ammoniac) - un catalyseur pour la SCR - un 2nd catalyseur d'oxydation (destruction des résidus d'oxydation incomplète de l'ammoniac)
<p><u>Catalyseur SCR :</u></p> <p>V₂O₅-WO₃/TiO₂ (métal - oxyde métallique / support) apparaît actuellement comme la meilleure solution.</p>
<p><u>Agent réducteur :</u></p> <p>La solution d'urée apparaît actuellement comme la meilleure solution.</p>
<p><u>Principales difficultés techniques :</u></p> <ul style="list-style-type: none"> - Caractère transitoire des émissions - Volume et complexité du système catalytique - Durabilité du système
<p><u>Emissions :</u></p> <p>Le catalyseur SCR peut conduire à émettre sous certaines conditions :</p> <ul style="list-style-type: none"> - du NO (T>350°C, NH₃/NO>1), - du N₂O (T<400°C, NH₃/NO≈1), - du NH₄NO₃ (100<T<200°C, forte teneur en NH₃). <p>Le 2nd catalyseur d'oxydation sur support platine pourrait transformer le NO restant en NO₂.</p>
<p><u>Principaux couplages attendus :</u></p> <p>SCR + FAP et éventuellement EGR</p>

Tableau XI : Récapitulatif sur les pièges à NO_x

<p><u>Composants :</u></p> <ul style="list-style-type: none"> - un système de captage des NO_x par absorption - un catalyseur 3 voies
<p><u>Principales difficultés techniques :</u></p> <ul style="list-style-type: none"> - Mise au point complexe du piège à NO_x, avec deux problèmes majeurs : <ul style="list-style-type: none"> • Stratégies de régénération et désulfatation des pièges • Intégration du système dans une ligne d'échappement - Surconsommation de carburant - Echauffement du catalyseur
<p><u>Emissions :</u></p> <p>Lorsque le piège à NO_x est « plein », les émissions de NO_x augmentent.</p> <p>Fortes potentialités de réduction des émissions de NO_x (>75% d'abattement).</p>
<p><u>Principaux couplages attendus :</u></p> <p>« Piège à NO_x » + FAP</p>

Systemes de réduction des particules

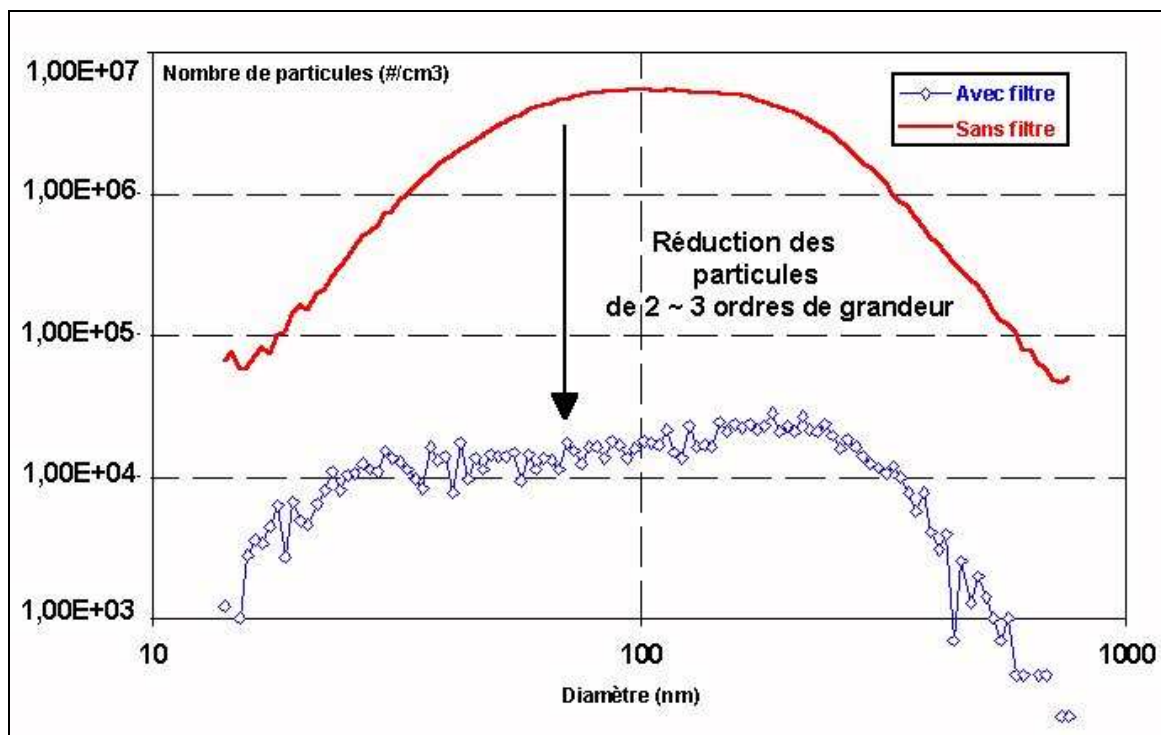
Une stratégie de traitement consiste à oxyder au maximum les phases vapeur et les fractions solubles à l'aide d'un pot catalytique d'oxydation puis à piéger les particules restantes au moyen d'un filtre et enfin à régénérer périodiquement le filtre par brûlage des suies qui y ont été piégées. Ce dernier point suppose que la présence de sulfate, incombustible, dans les suies soit limitée et nécessite donc l'utilisation d'un gazole à basse teneur en soufre.



(Source : IFP pour Ademe)

Figure 79 : Traitement des phases vapeurs et solubles et des particules solides par l'association Catalyseur d'Oxydation + Filtre à Particules

Le filtre à particules, qui a fait l'objet de très nombreuses recherches, représente une réponse efficace au problème posé par les émissions de particules Diesel en présentant une réduction des particules de 2 à 3 ordres de grandeur sur tout le spectre granulométrique.



(Source : IFP pour Ademe)

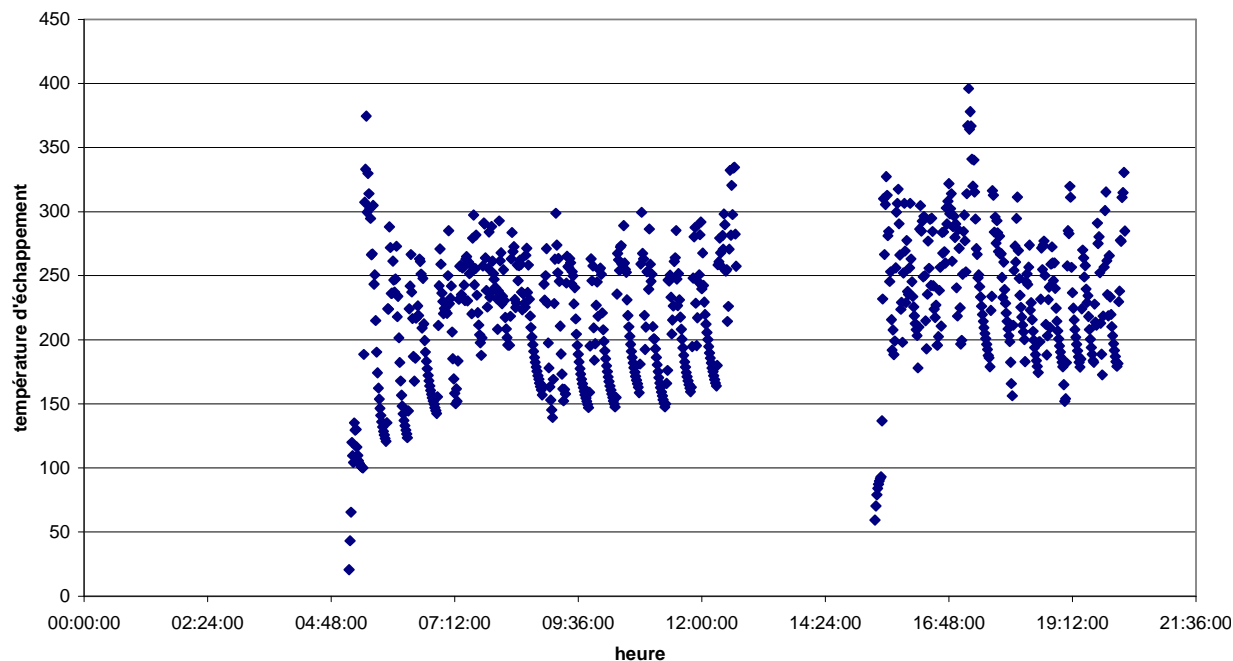
Figure 80 : Influence du filtre *Corning* sur le spectre granulométrique des particules émises (Moteur VW 1.9 TDI)

La principale difficulté rencontrée concerne la régénération périodique du filtre, qui doit permettre de limiter les niveaux de contre-pression atteints, sans entraîner de dégradation du matériau filtrant.

Le système de filtre à particules doit fonctionner de manière autonome ; cela signifie que ni le conducteur ni un professionnel de l'automobile ne doivent être amenés à intervenir à l'exception d'un éventuel nettoyage en profondeur du filtre à une fréquence très faible (une fois par an au maximum, ceci étant en progrès continu). La température est le paramètre le plus important d'une régénération du filtre.

Les suies sont oxydées en produits gazeux. À faibles températures (360°C à 400°C), la vitesse d'oxydation est très lente et la régénération incomplète. À partir d'une température de 600°C, la suie s'oxyde rapidement et complètement. Quelle que soit la température, la vitesse de réaction change avec la quantité de suies. Souvent, les filtres Diesel régénèrent plus vite lorsqu'ils sont fortement chargés en suies.

La régénération thermique d'un FAP nécessite une température de 550°C à 600°C. Une telle température ne se rencontre pas sur tous les cycles de fonctionnement (poids lourds : environ 300°C à 450°C). Pour un autobus en conditions urbaines, les températures des gaz d'échappement dépassent rarement 300°C (Figure 81 : ces mesures ont été recueillies durant une journée d'exploitation normale d'un bus en région parisienne, et la fréquence de mesure est d'une mesure par minute).



(Source : Ademe)

Figure 81 : Température à l'échappement (en amont du filtre) mesurée durant une journée normale d'exploitation d'un bus en région parisienne

Il s'agit donc de faciliter la régénération du filtre :

- en augmentant la température des gaz d'échappement ;
- et/ou en abaissant la température d'oxydation des suies par l'emploi de catalyseurs ;
- et/ou en abaissant la température d'oxydation des suies grâce à des réactifs oxydants.

Les solutions sont de deux types : régénération passive ou active.

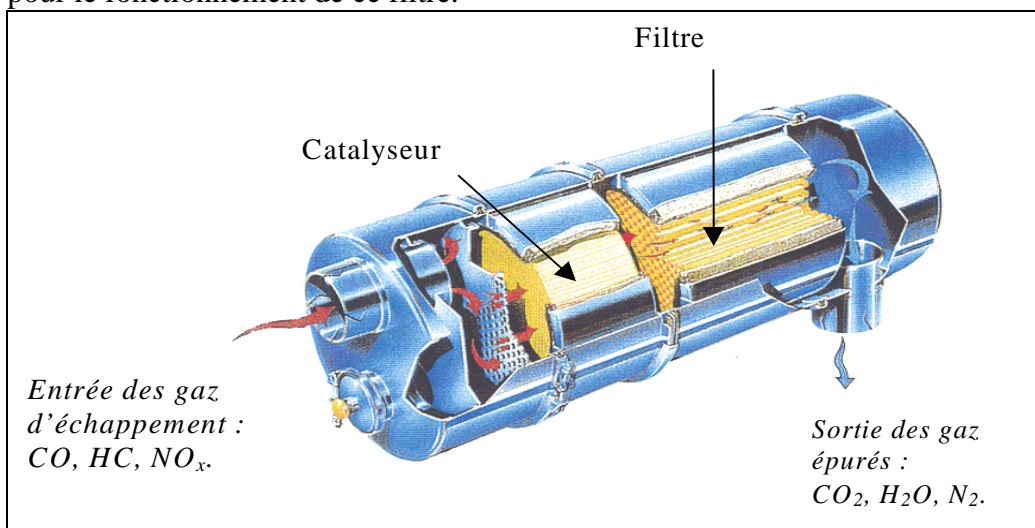
Dans le premier cas, il n'y a pas de pilotage de la régénération, elle se fait en continu. Dans le second cas, la régénération est activée à partir des mesures de pression et de température qui détectent un besoin de régénération (haute perte de charge) et de bonnes conditions (haute température).

Les différentes technologies de régénération

Présence d'un catalyseur en amont qui forme du NO₂ (régénération passive)

Différents métaux peuvent être utilisés tels que platine, argent, cuivre vanadium, fer, molybdène, manganèse, chrome, nickel, et autres. Selon le type de filtre, le catalyseur peut être directement intégré dans le support (par exemple pour la cordiérite) ou par l'intermédiaire d'une couche de *washcoat*. Les températures de régénération peuvent être abaissées jusqu'à 325°C – 420°C. Toutefois, les catalyseurs sont très sensibles à la présence de soufre. Le catalyseur permet de transformer l'espèce NO en NO₂ qui favorise l'oxydation des suies, et d'élever la température des gaz. Le catalyseur permet également de diminuer fortement les émissions de CO et HC par oxydation en CO₂ et H₂O ;

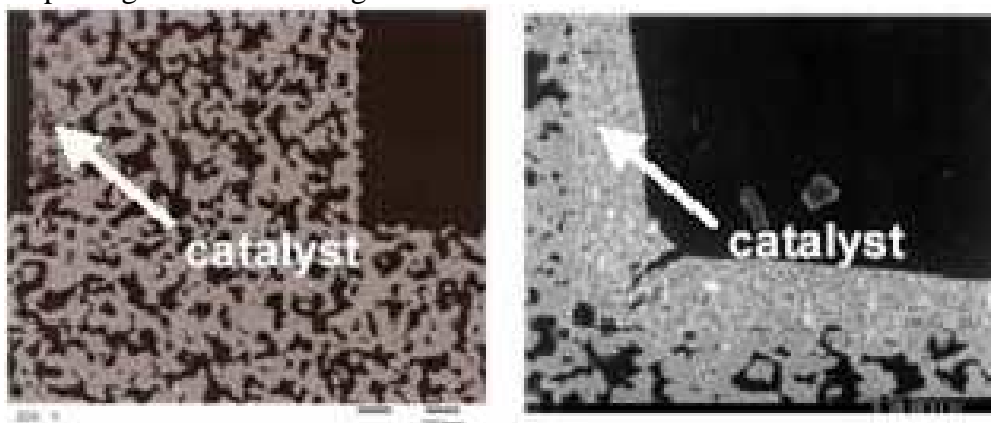
exemple : Le CRT (*Continuous Regenerating Trap*). C'est un ensemble formé d'un catalyseur d'oxydation et d'un filtre à particules. Le principe de régénération est la formation en amont du filtre, grâce au catalyseur, de NO₂ produit qui facilite l'oxydation des suies. Deux sociétés commercialisent à ce jour ce type de produit (HJS, EMINOX). Le support est en cordiérite. Le gazole à très basse teneur en soufre (actuellement disponible dans tout le réseau à 50ppm) est obligatoire pour le fonctionnement de ce filtre.



(Source : EMINOX)

Figure 82 : Schéma du système de post-traitement CRT (FAP + catalyseur d'oxydation)

Le catalyseur peut également être intégré dans le média du FAP :

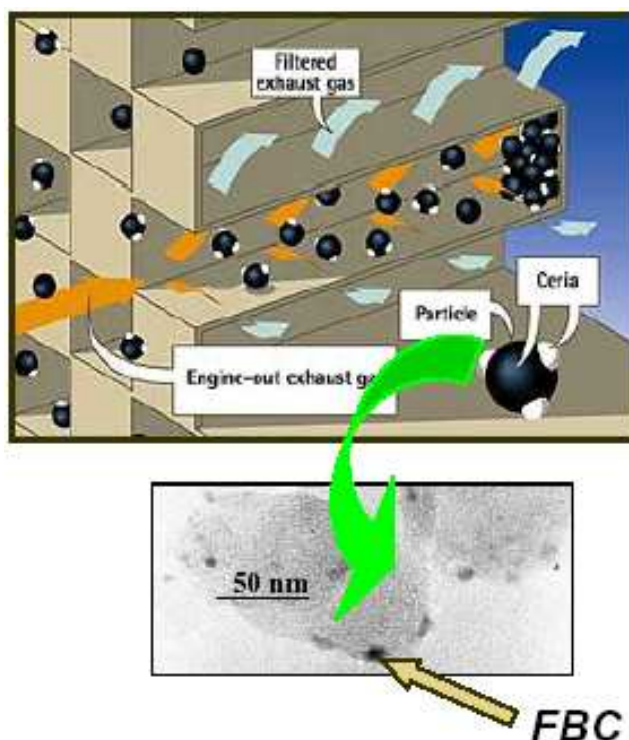


(Source : <http://www.dieselnat.com/>)

Figure 83 : Imagerie d'un catalyseur intégré dans le FAP

Utilisation d'un additif dans le carburant

Cette méthode de régénération du filtre revient à placer un catalyseur au cœur des suies formées (régénération passive). Dans ce cas, le catalyseur est introduit physiquement à l'intérieur des particules. Le contact entre le catalyseur et la suie est meilleur que dans le cas du filtre catalysé. Selon l'additif, on peut atteindre des températures de régénération voisines de 300°C à 400°C ;



(Source : PSA)

Figure 84 : Schéma de régénération d'un FAP avec un catalyseur (à base de cerium) additivé au carburant

Injection de gazole à l'échappement (régénération active)

L'injection de gazole à l'échappement peut être réalisée essentiellement de deux façons :

- soit par l'injecteur placé dans la chambre de combustion en modifiant le moment de l'injection pour que le carburant ne brûle pas dans la chambre mais à l'échappement. Ceci nécessite par ailleurs de contrôler l'EGR,
- soit par un nouvel injecteur placé dans la ligne d'échappement qui va injecter le carburant en amont du filtre.

Cette solution permet d'augmenter la température d'échappement en brûlant du carburant, permettant ainsi d'initier la combustion des suies stockées dans le filtre, mais en générant également une surconsommation de carburant et des émissions de CO₂.

Le FAP avec additif catalytique

La stratégie de mise en œuvre et l'intégration du système de filtre à particules avec additif fait l'objet d'un brevet déposé par la société PSA Peugeot Citroën.

PSA Peugeot Citroën commercialise depuis 2000 des modèles 607 équipés de filtres à particules (FAP). Elle a depuis adapté cette technologie de dépollution à quasiment tous les véhicules Diesel de sa gamme. Ce dispositif présentant un intérêt environnemental, la société de taxis G7 à Paris a décidé de faire l'acquisition, dans une phase expérimentale, de 6 véhicules 607 équipés de FAP et de suivre avec l'ADEME leurs performances.

Le programme technique :

Afin de constituer des référents techniques et économiques et de valoriser les résultats, une campagne de suivi des véhicules, portant sur l'estimation des consommations et une analyse détaillée des émissions polluantes réglementées et non réglementées, est réalisée sur une période minimale de 14 mois. Il s'agit de suivre, durant cette période, l'évolution des performances des voitures dans des conditions d'usage taxi, en milieu urbain.

La technologie évaluée :

PSA a développé sa propre technologie de FAP (voir le site www.psa.fr pour la description complète du système), dont le schéma est présenté ci-dessous. Cette technologie exploite les possibilités du système d'injection Common Rail du moteur HDI, et nécessite l'utilisation d'un additif au carburant à base de Cérium (Cérine).

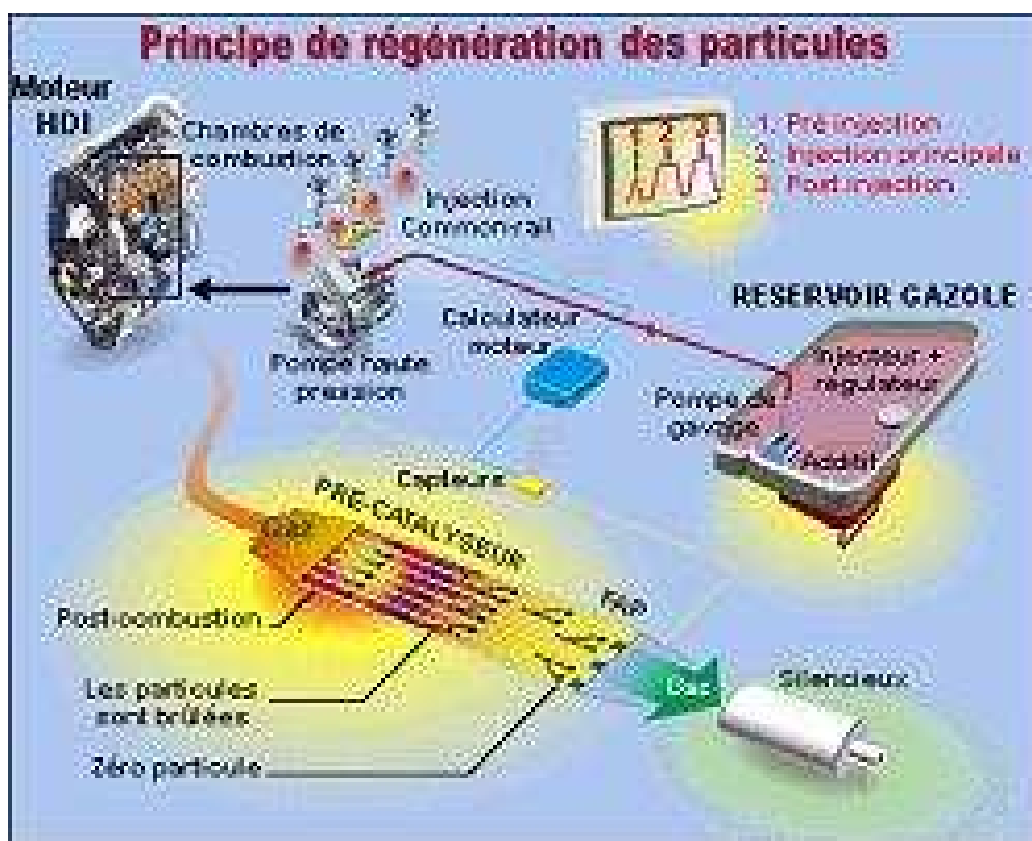
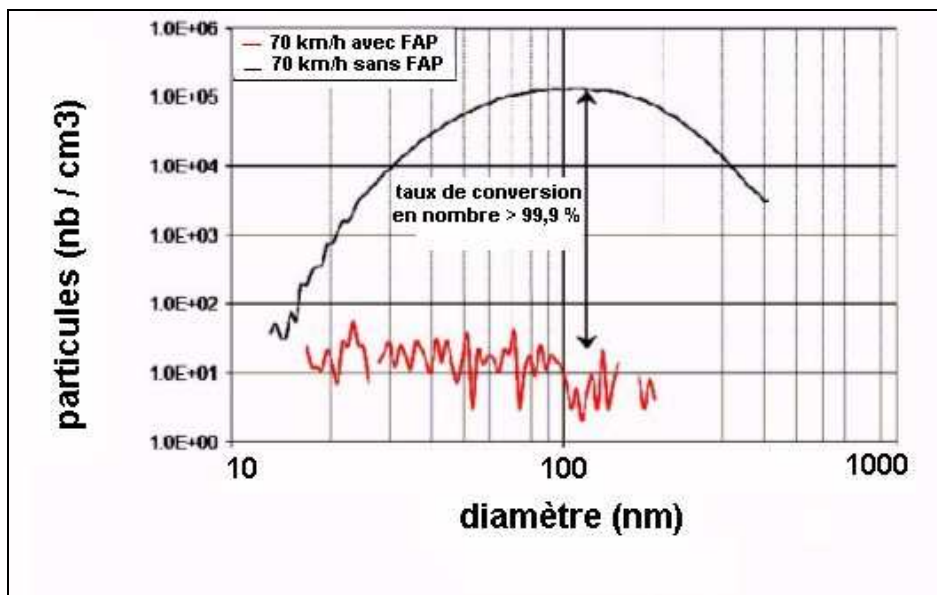


Figure 85 : Schéma de la technologie de FAP PSA évaluée dans le cadre d'une étude PSA-ADEME

À ce jour, de ces expérimentations, il ressort que :

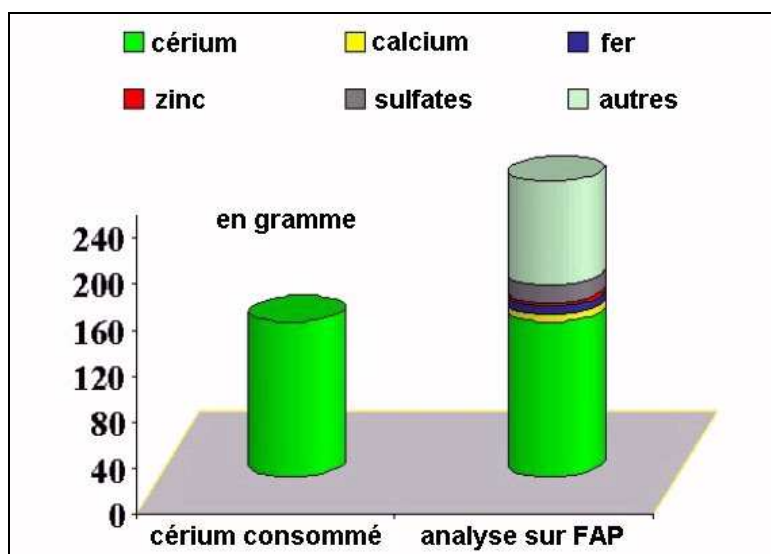
- Les émissions des polluants CO, HC et NO_x restent inférieures à la norme en vigueur (Euro3) jusqu'à un kilométrage du véhicule de 80 000 km.
- Les émissions de particules sont de l'ordre de 0,005 g/km et restent constantes dans le temps jusqu'à un kilométrage du véhicule de 80 000 km.
- Les émissions de particules sont réduites sur l'ensemble du spectre. Le FAP permet donc bien de réduire le nombre de particules de faible taille.



(Source : IFP pour Ademe)

Figure 86 : Exemple de spectre granulométrique des particules à l'émission (point stabilisé à 70 km/h)

- L'intégralité du cérium utilisé comme additif se retrouve dans le FAP lors du nettoyage à 80 000 km. Il n'y a donc pas d'émission de cérium à l'échappement.



(Source : IFP pour Ademe)

Figure 87 : Quantité de Cérium (additif) utilisée par un FAP PSA et analysée sur ce FAP (80000km)

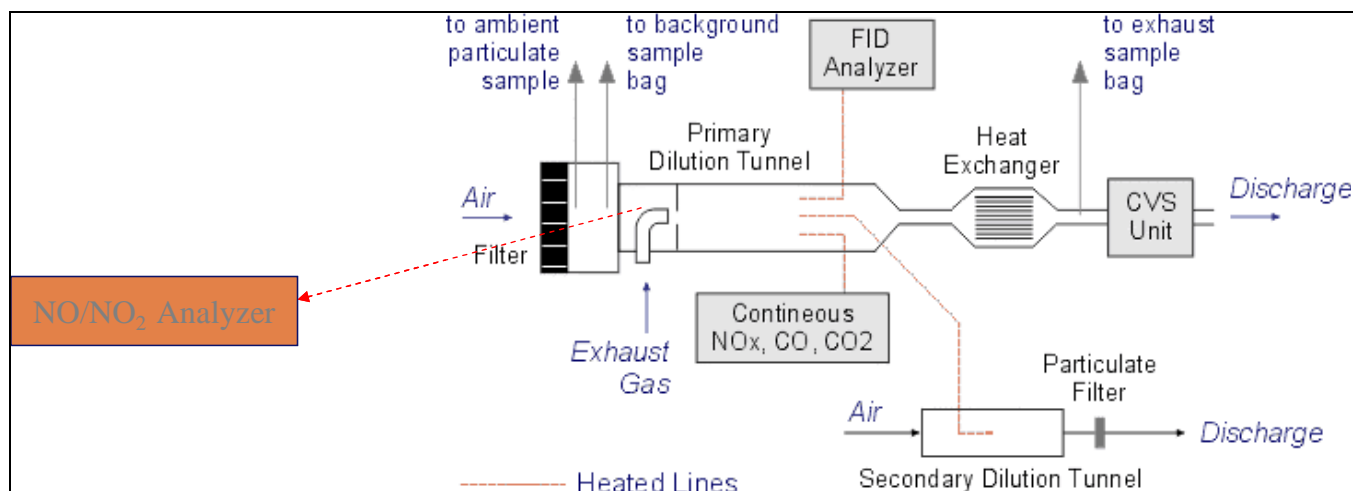
Il est à noter qu'en général, les additifs à base de fer sont de plus en plus utilisés.

Annexe 6 : Eléments concernant la méthode de mesure des émissions de NO et NO₂

Les émissions de NO et NO₂ peuvent être mesurées suivant plusieurs méthodes présentées ci-dessous. Or le choix de la méthode de mesure peut influencer fortement les résultats.

Tableau XII : Méthodes de mesure des émissions de NO et NO₂
(Source : NO₂ emissions from passengers cars, Raymond Gense TNO)

Procédure	Option	Remarques	Méthode appropriée ?
Méthode d'échantillonnage	Sac ³⁸	Conversion NO en NO ₂ dans le sac (voir ci dessous)	NON
	Dilution en ligne	Effet de la dilution de l'air	NON
	En ligne brute		OUI
	Mini-dilution	Pas d'expérience	??
Conditionnement de l'échantillon	Ligne chauffée	Pour éviter la condensation (voir ci dessous)	OUI
	Déshumidificateur	Pour éviter la présence d'eau qui conduit à former du HNO ₃ non mesuré	OUI
Analyse	Chimiluminescence	En cas de SCR, une réaction est possible avec le NH ₃ .	OUI avec lecture simultanée NO, NO ₂ (voir ci-dessous)
	Spectrométrie		OUI
	FTIR	Utilisé surtout au UK	OUI
	NDUV	Approuvé par l'EPA	OUI



(Source : NO₂ emissions from passengers cars, Raymond Gense TNO)

Figure 88 : Positionnement du point de mesure des émissions de NO, NO₂ par chimiluminescence en ligne chauffée avec déshumidificateur

38 méthode au regard de laquelle sont définies les émissions des normes Euro

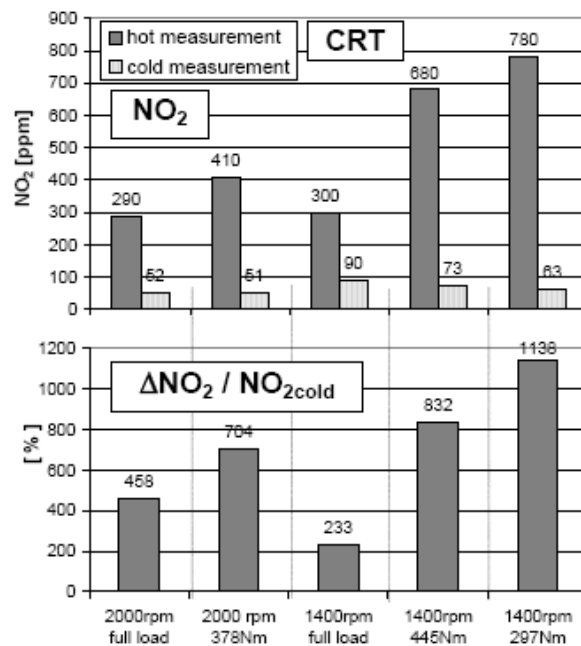
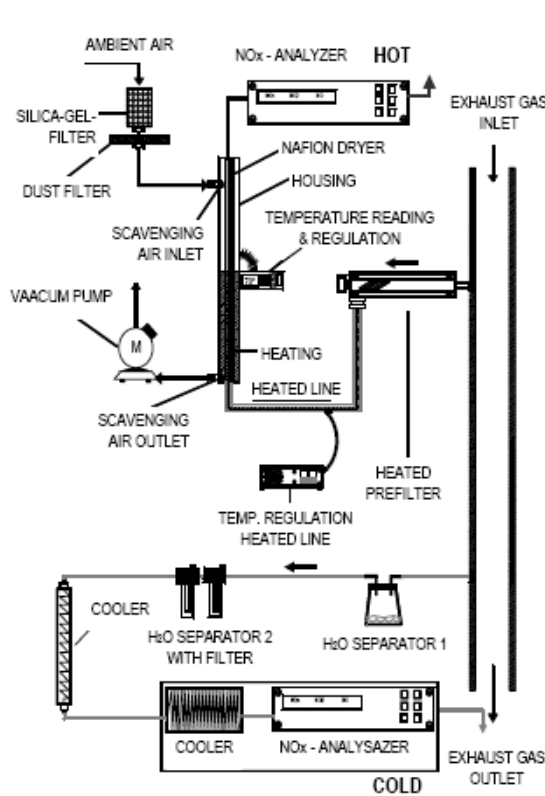


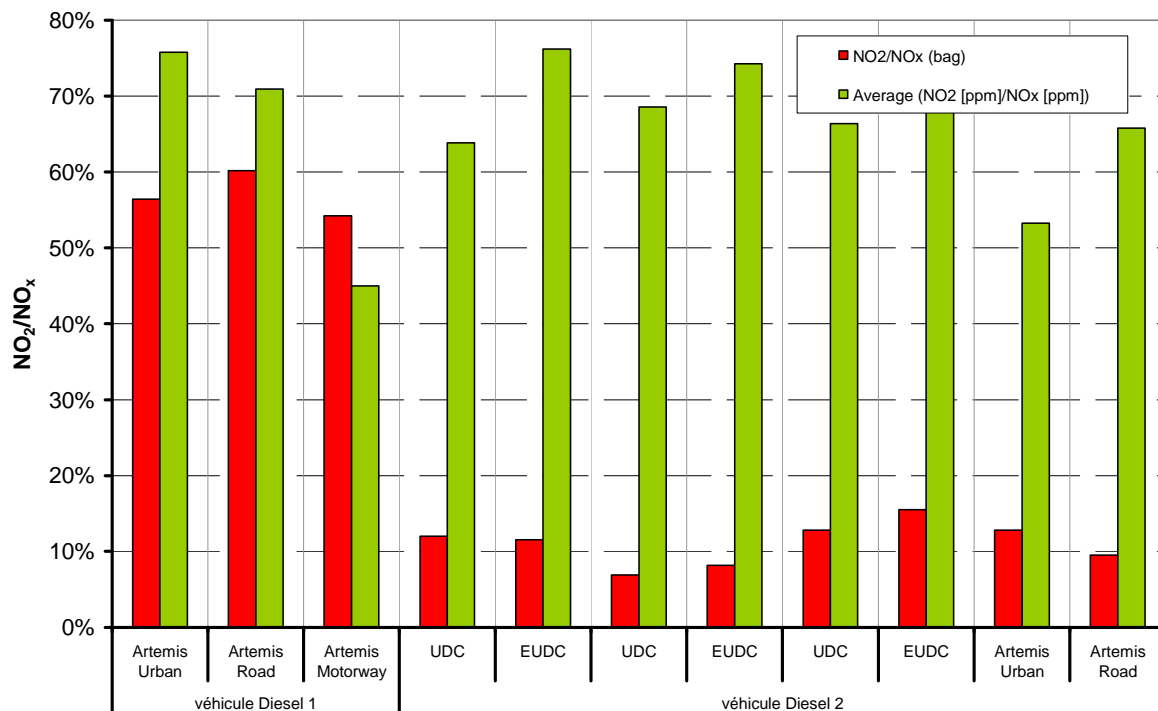
Fig. 7: Comparison of NO₂ - values during the cold and hot measurement
Liebherr 914T, LSD (S<50ppm)

(Source : Diesel NO₂-Emissions with Different DPF's and DOC's

J. Czerwinski, J.-L. Pétermann, P. Comte / AFHB, A.Mayer / TTM, J. Lemaire / AEEDA)

Figure 89 : Schéma du système de mesure des NO, NO₂, et comparaison des émissions mesurées à chaud/froid

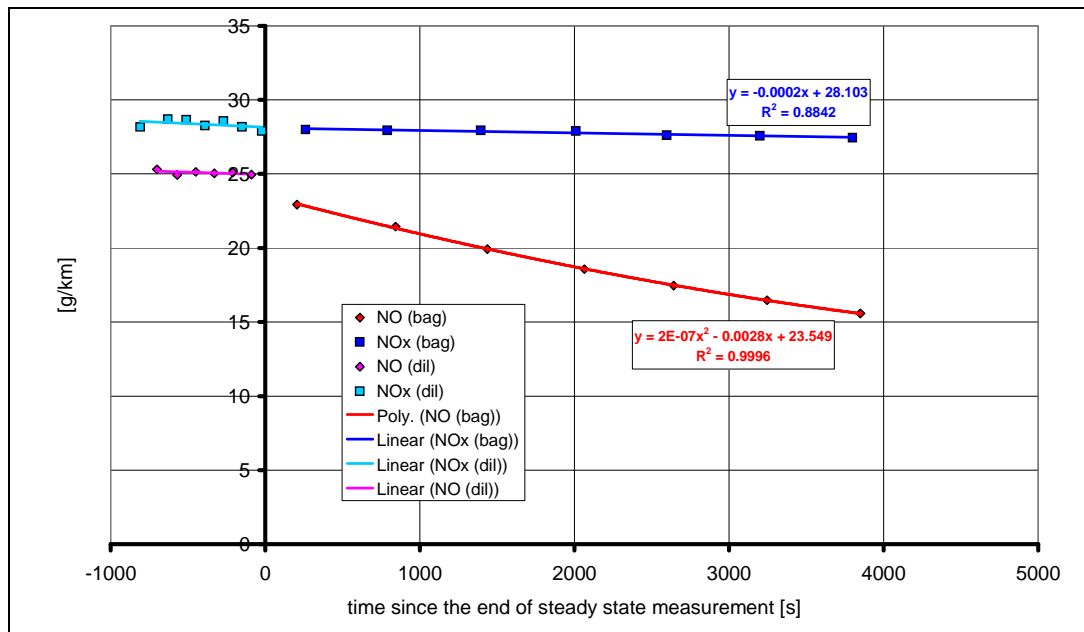
Une étude réalisée par le LAT a comparé les mesures par prélèvement en sac et les mesures instantanées en ligne. Un extrait est présenté ci-après montrant l'importance des écarts de mesure entre ces méthodes (Figure 90).



(Source : Evaluation of the actual NO₂/NO_x ratio of recent vehicle technologies, Savas Geivanidis and Zissis Samaras, LAT)

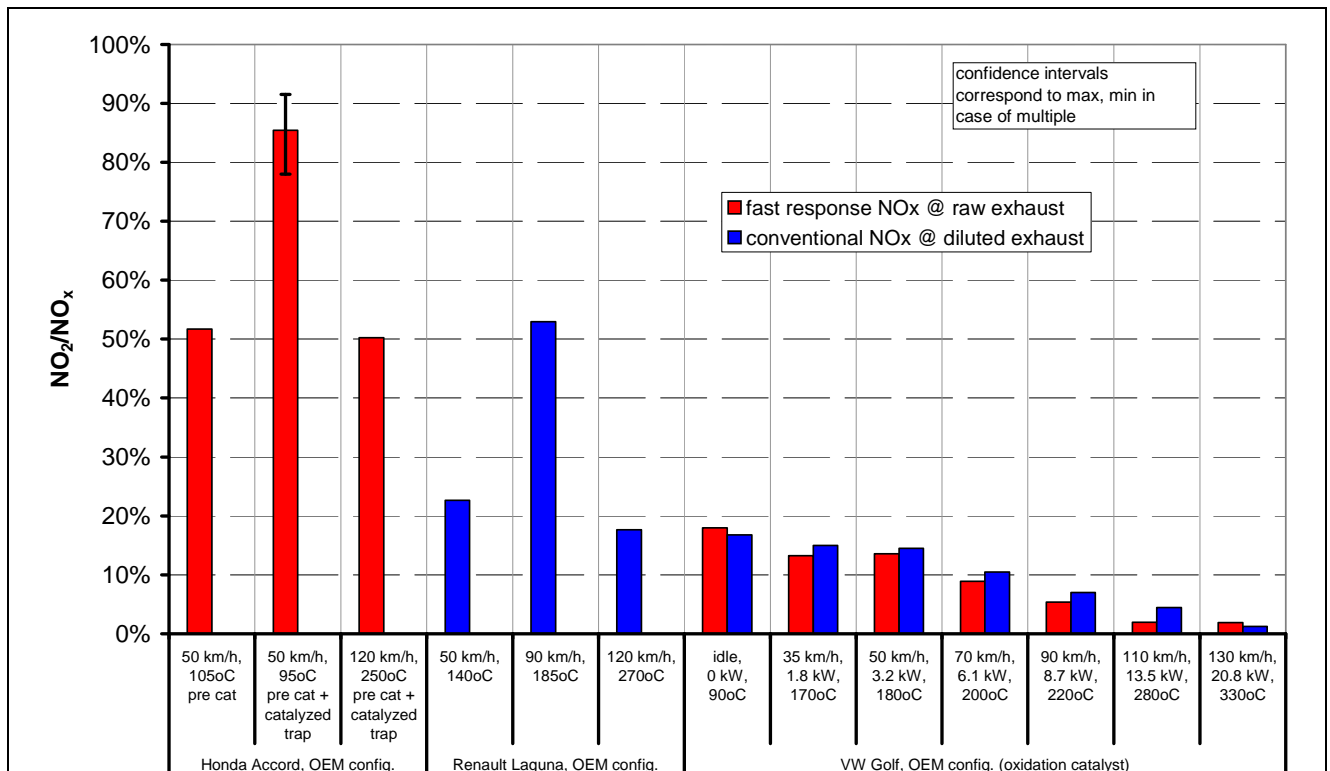
Figure 90 : Comparaison des mesures d'émission de NO₂/NO_x par prélèvement en sac et analyse instantanée en ligne

Cette étude a également quantifié l'évolution dans le temps des concentrations de NO et NO_x dans les sacs (Figure 91), qui constitue une faiblesse de cette méthode, ainsi qu'une comparaison de mesures de NO₂/NO_x en ligne en vitesse stabilisée entre un prélèvement dilué et brut (Figure 92). Sur ce dernier point, les différences sont relativement minimes (en vitesse stabilisée).



(Source : Evaluation of the actual NO₂/NO_x ratio of recent vehicle technologies, Savas Geivanidis and Zissis Samaras, LAT)

Figure 91 : Evolution temporelle des niveaux de NO et NO_x mesurés dans les sacs (vitesse stabilisée)



(Source: Evaluation of the actual NO₂/NO_x ratio of recent vehicle technologies, Savas Geivanidis and Zissis Samaras, LAT)

Figure 92 : Comparaison de mesures de NO₂/NO_x entre un prélèvement dilué et brut (vitesse stabilisée)

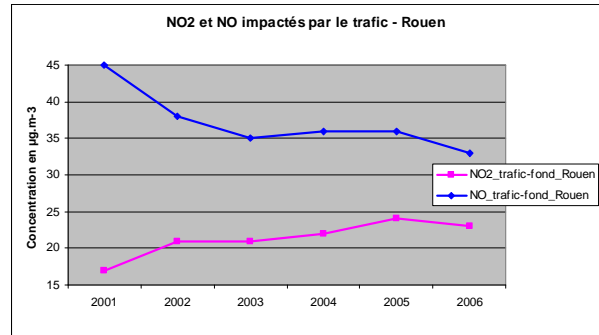
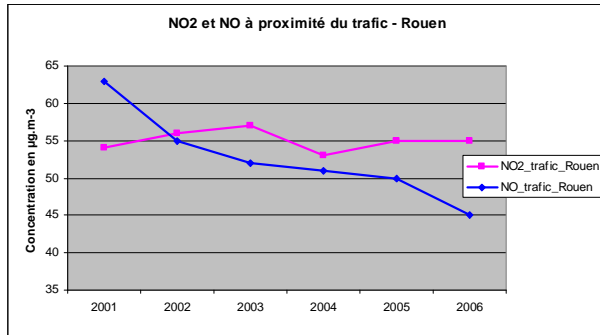
Afin d'éviter la conversion de NO en NO₂, la condensation, et la formation de HNO₃ non mesuré, la méthode qui apparaît la plus appropriée est une mesure par chimiluminescence en ligne chauffée avec déshumidificateur.

La méthode à retenir est donc une mesure par chimiluminescence en ligne chauffée avec déshumidificateur dont un schéma est présenté ci-dessus (Figure 88). Les données d'émission retenues dans la bibliographie pour l'analyse des émissions présentée au chapitre 2.2, ont été mesurées avec cette méthode.

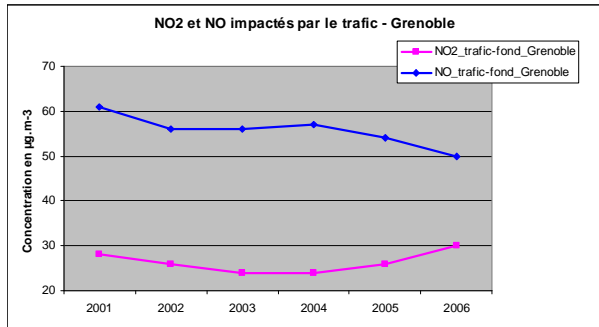
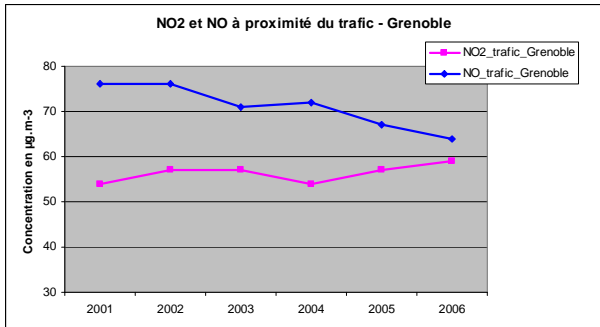
Annexe 7 : Détail des analyses effectuées à partir des niveaux de polluants mesurés au niveau de stations de proximité au trafic dans 8 agglomérations françaises

Tableau XIII : Principales caractéristiques des sites « trafic » pour lesquels des traitements de données sont effectués

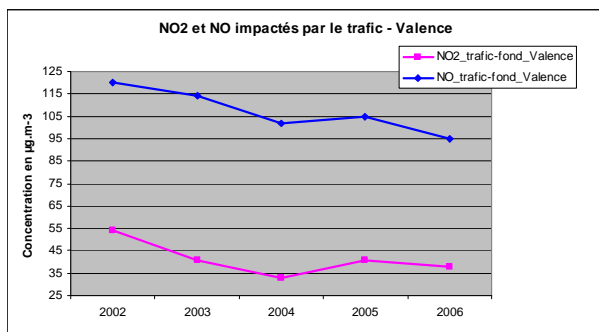
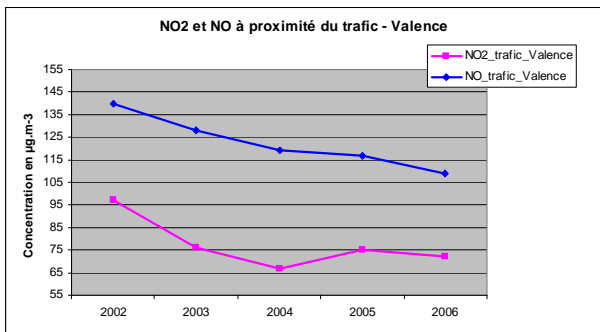
Nom du site trafic	Agglomération	Historique de données disponible	Caractéristiques	Source des données transmises
Site Guillaume le Conquérant	Rouen	2001 - 2006	Station de centre urbain – 5 voies - 20000 véh./j. – vitesse moy de 45 km/h – surtout VL – env. 9% de PL -	AIR NORMAND
Site Pasteur	Lille	1998 - 2006	Station de centre urbain – 4 voies – 11000 véh./j. - vitesse moy de 50 km/h – surtout VL – peu de PL -	ATMO NORD PAS DE CALAIS
Site G. Clemenceau	Strasbourg	1999 - 2006	Station de périphérie urbaine – 2 voies - 25000 véh./j. - vitesse assez lente – surtout VL – peu de PL -	ASPA
Site de la Mulatière	Lyon	1999 - 2006	Voisinage d'autoroute supportant un trafic moy. journalier de 96000 véh./j. – vitesse moy. de 80 km/h – env. 8% de PL.	ATMO RHONE ALPES
Site de Le Rondeau	Grenoble	2001 - 2006	Station de périphérie urbaine – 6 voies - 90000 véh./j. - vitesse assez rapide – surtout VL – peu de PL -	ATMO RHONE ALPES
Site bordure d'A7	Valence	2002 - 2006	Station en bord d'autoroute – 6 voies - 60000 véh./j. - vitesse moy de 100 km/h – trafic PL important : 20% de PL -	ATMO RHONE ALPES
Site Gambetta	Bordeaux	1999 - 2006	Station de centre urbain – 2 voies – 11000 véh./j. - vitesse moy de 30 km/h – surtout VL – peu de PL -	AIRAQ
Site de Plombières	Marseille	1999 - 2007	Station de centre urbain – 6 voies - 40000 veh/jour sur 2 voies (50Km/h) et 40000 veh/jour sur 4 voies (15-20 Km/h) - surtout VL – densité moyenne de PL -	ATMO PACA



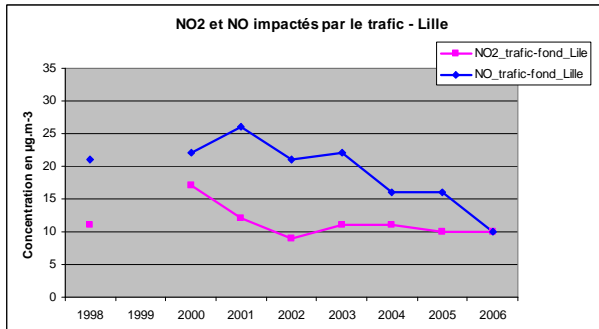
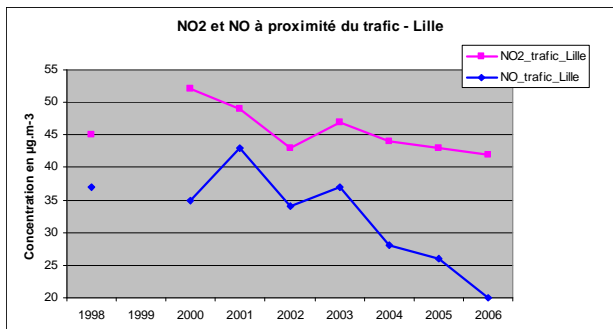
▲ Site « Guillaume le Conquérant » - Agglomération de Rouen



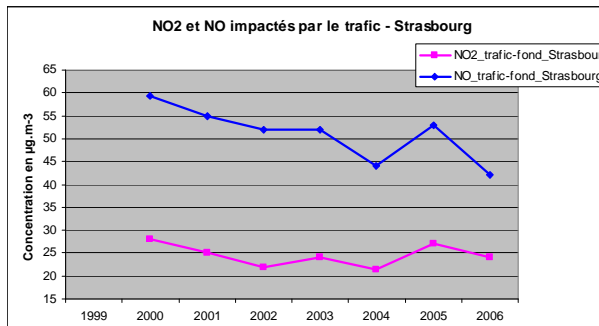
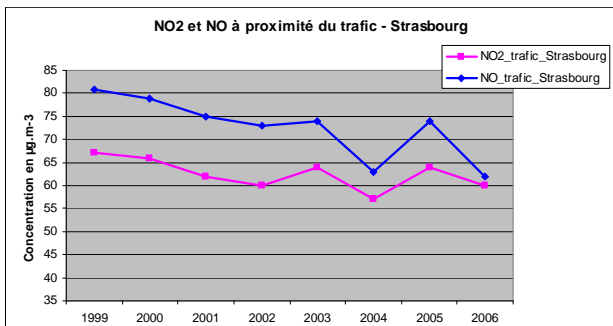
▲ Site « Le Rondeau » - Agglomération de Grenoble



▲ Site « bordure d'A7 » - Agglomération de Valence



▲ Site « Pasteur » - Agglomération de Lille



▲ Site « Georges Clémenceau » - Agglomération de Strasbourg

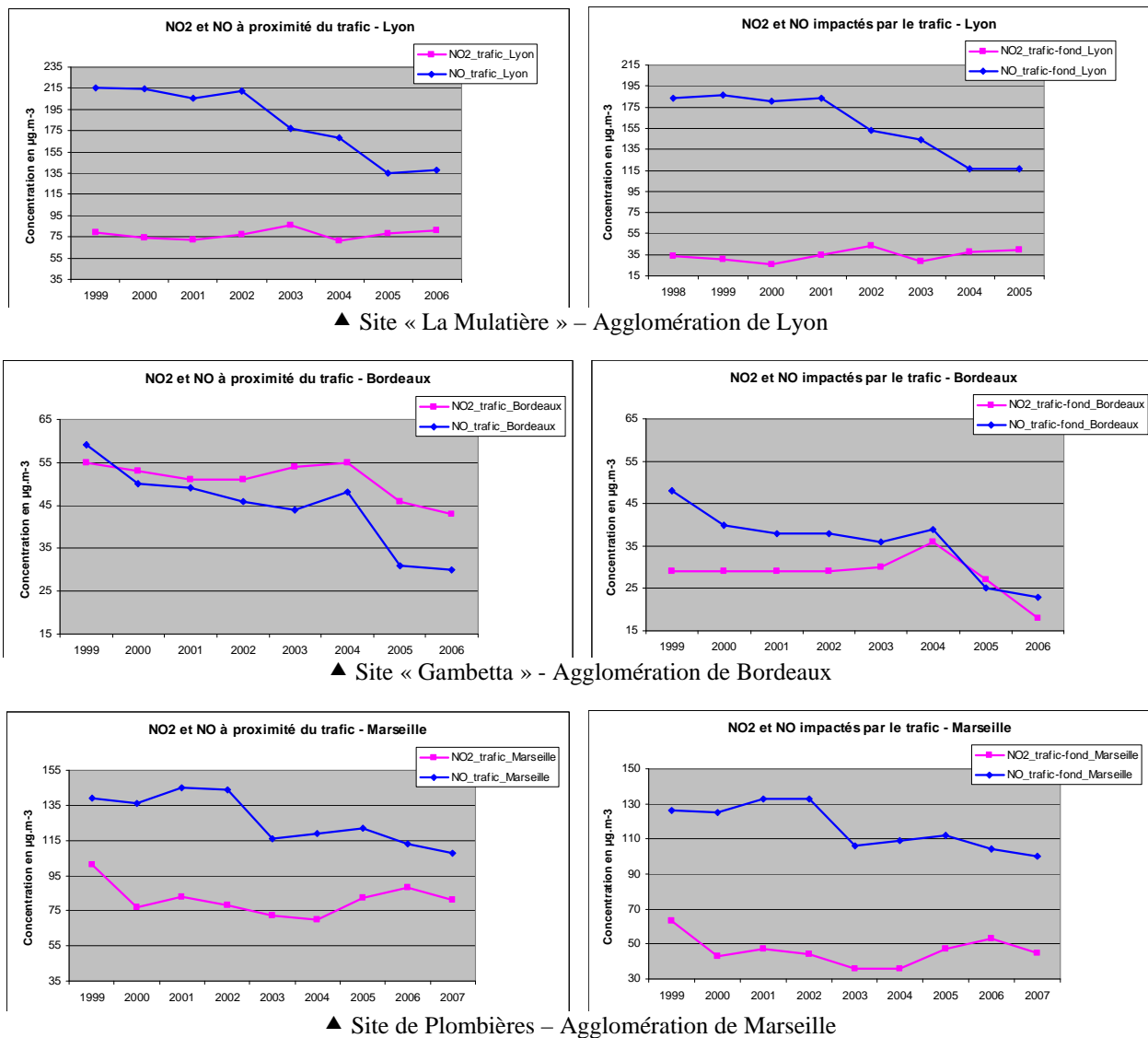


Figure 93 : Evolution des niveaux de NO et de NO₂ (graphiques de gauche) et des niveaux impactés de NO et de NO₂ (graphiques de droite) sur 8 sites de proximité au trafic de 8 agglomérations françaises

Au vu de la Figure 93 ci-dessus, on observe des évolutions variées en fonction des sites de proximité automobile considérés. Notons également que sur certaines stations, seuls des historiques courts sont disponibles (depuis 2001-2002) rendant plus difficile l'observation de tendance à long terme.

□ Ainsi, de façon descriptive, sur les sites trafic étudiés et concernant les agglomérations de Rouen, Grenoble et Lyon, il est observé une tendance à la hausse des niveaux moyens annuels de NO₂ relevés (respectivement +2%, +9% et +2,5% pour Rouen, Grenoble et Lyon), alors que pour les niveaux moyens de NO, la tendance est à la baisse (respectivement -28%, -16% et -36% pour Rouen, Grenoble et Lyon). Sur ces sites, les niveaux d'impact moyens augmentent pour NO₂ (I_{NO_2} , respectivement +35%, +7% et +17% pour Rouen, Grenoble et Lyon) mais diminuent pour NO (I_{NO} , respectivement -26%, -18% et -37% pour Rouen, Grenoble et Lyon).

□ Concernant les sites étudiés sur les agglomérations de Lille, Strasbourg, Bordeaux et Valence, on observe à l'inverse une tendance à la baisse à la fois des niveaux moyens annuels de NO et de NO₂ :

– Concernant Lille et Strasbourg : Les mesures en sites trafic sur Lille montrent une décroissance importante du NO (-43%) et une baisse relativement moins importante du NO₂ (-19%)³⁹, alors que les données issues de Strasbourg indiquent une baisse respective du NO de -24% et du NO₂ de -10%. Il est intéressant de noter que si les valeurs intrinsèques de ces baisses sont différentes entre les deux stations, le rapport NO/NO₂ baisse quant à lui dans des proportions quasi identiques à Lille et à Strasbourg. Cependant, il est à noter que les concentrations de NO sont constamment supérieures aux concentrations de NO₂ sur Strasbourg, alors que l'on observe exactement l'inverse sur Lille. En ce qui concerne l'analyse des données traitées pour prendre en compte la pollution de fond (données d'impact), on observe sur Lille une décroissance importante d'*I*_{NO} (-55%) et une baisse tout aussi importante d'*I*_{NO2} (-42%), alors que les données issues de Strasbourg indiquent une baisse respective d'*I*_{NO} de -29% et d'*I*_{NO2} de -14%. Dans les deux cas, *I*_{NO} est supérieur à *I*_{NO2}. Cependant, si les niveaux d'*I*_{NO} sont du même ordre de grandeur que les niveaux d'*I*_{NO2} à Lille (il existe au maximum un facteur 2 entre les deux polluants, et ce facteur tend vers 1 en fin de période d'étude), les concentrations en NO de Strasbourg sont quasiment doubles de celle en NO₂ tout au long de la période étudiée (1999-2006). Il existe donc un processus temporel sur Lille qui ne se retrouve pas sur Strasbourg. En effet, à partir de 2003, la courbe des niveaux bruts de NO_{trafic} semble se décorrélérer de la courbe NO_{2trafic}, phénomène qui ne se retrouve pas sur Strasbourg. Ce phénomène peut difficilement s'expliquer par le déplacement d'un mètre du capteur lillois en 2002. Par contre, à la rentrée scolaire 2003, la configuration du site a été changée par l'introduction d'une ligne de bus dédiée en site propre (bus GNV, ainsi que vélos et taxis) et la suppression de la voie de circulation automobile la plus proche du capteur. La nouvelle répartition du trafic qui en découle (évolution des flux de véhicules légers et répartition de ceux-ci sur les trois voies) n'est pas précisément connue⁴⁰. Il serait particulièrement intéressant de comparer les résultats de cette station avec une autre station lilloise, dont la configuration (et l'évolution) est proche de celle-ci mais pour laquelle la voie en site propre des transports en commun se trouve à l'opposée du capteur. Cette étude ne peut cependant être effectuée dans le cadre de la présente analyse.

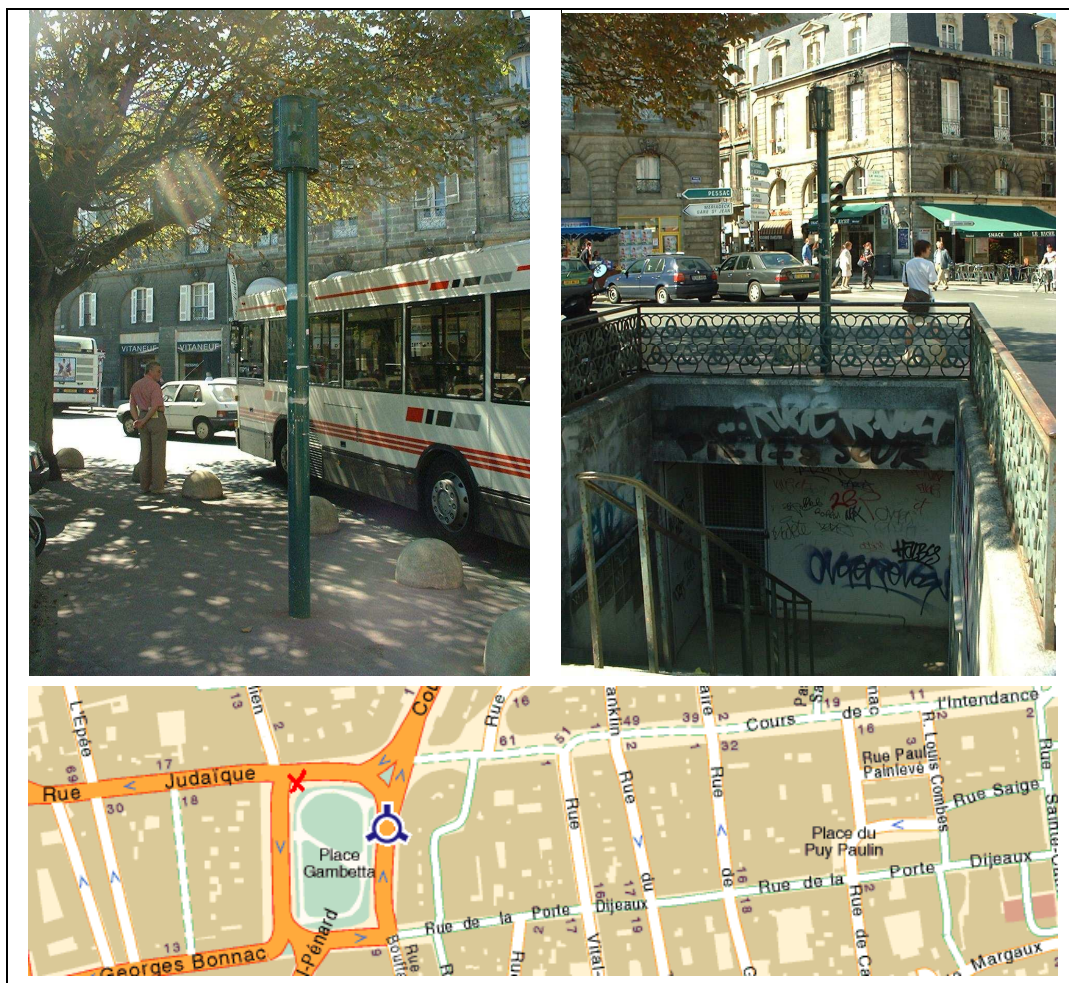
– Concernant Bordeaux : Les données moyennes relevées sur le site « Gambetta » de 1999 à 2006 montrent une évolution en deux temps : de 1999 à 2003, une diminution des niveaux moyens de NO et une relative stagnation de ceux de NO₂, avec un constat identique au niveau des impacts calculés. Les niveaux augmentent ensuite en 2004, à la fois pour le NO et le NO₂, puis une diminution relativement brutale s'observe de 2004 à 2006.

Il est à noter qu'une certaine correspondance peut être établie entre cette évolution et des changements majeurs de l'environnement de la station (Figure 94) à partir de courant 2002, ayant pu entraîner des modifications significatives du trafic. En effet, la station de mesure est implantée sur une place qui constitue un grand carrefour giratoire avec feux tricolores, à proximité immédiate d'un axe routier dont le volume de trafic est relativement faible (rue judaïque, environ 11000 véh/jour). Un des principaux axes routiers (Cours de l'intendance, environ 25000 véh/jour avant fermeture) donnant sur cette place est fermé à la circulation de véhicules depuis courant 2002 pour les travaux de construction et la mise en œuvre d'une ligne de tramway sur cet axe, ligne inaugurée en décembre 2003. Les perturbations du trafic liées aux travaux de voirie (congestion, modification des sens de circulation...) et les sources polluantes générées par ces travaux pourraient expliquer la tendance à la hausse entre 2003 et 2004 aussi bien des niveaux de NO₂ et que de NO (niveaux bruts relevés en proximité au trafic et niveaux impactés par le trafic - *I*_{NO2} et *I*_{NO}) ; tendance qui n'est observée que sur ce site.

39 L'analyse sur Lille porte sur la période 2000-2006, celle sur Strasbourg porte quant à elle sur la période 1999-2006. Cette différence ne biaise pas substantiellement les comparaisons entre les deux stations présentées dans ce document.

40 Il est cependant possible que Lille Métropole Communauté Urbaine ait effectué des comptages ponctuels sur plusieurs années à proximité de la station. Ces données ne sont cependant pas immédiatement disponibles.

Les volumes globaux de trafic ayant peu évolués entre 2000 et 2005 sur la rue Judaïque (12000 à 11000 véh/jour) et sur l'ensemble de la place (50000 à 45000 véh/jour), les modifications en termes de fluidité du trafic et de sens de la circulation, et la suppression de la circulation sur un des axes principaux donnant sur la place (la contribution des émissions trafic de cet axe est devenue nulle) semblent donc être pour partie responsables de la diminution brutale des niveaux de NO et NO₂. Toutefois, des interrogations subsistent sur l'interprétation de ces résultats compte tenu du décalage d'une année observé entre la période des travaux de construction du tramway (entre 2002 et début 2004) et l'évolution des niveaux de NO et NO₂ (augmentation entre 2003 et 2004, réduction entre 2004 et 2005). En l'absence d'informations plus détaillées sur les aménagements urbains du site, des modifications de circulation ou de voirie consécutives à la mise en œuvre du tramway sont une piste potentielle d'explication.



× Emplacement approximatif de la station de mesure

(Source : AIRAQ)

Figure 94 : Clichés de l'environnement de la station trafic Gambetta (agglomération de Bordeaux)

– Concernant Valence : Une diminution est observée pour les niveaux moyens de NO et NO₂ de 2002 à 2006. L'évolution des concentrations en NO₂ est toutefois plus nuancée. En effet, si sur les cinq années, une diminution globale est observée, une tendance à la stagnation se dessine entre 2004 et 2006.

□ Le site de Marseille présente des tendances plus difficilement interprétables. En effet, pour les niveaux moyens de NO₂ relevés sur la station trafic, une baisse est observée sur la période 1999-2007 (-19%). Cependant une augmentation de +14% est relevée pour ces mêmes niveaux sur la période 2000-2006. La tendance globale est difficile à dégager et serait plutôt à la stagnation. Pour les niveaux moyens de NO relevés sur la station trafic, la tendance observée est plus nettement et plus régulièrement à la baisse (-22%) sur la période 1999-2007. Pour les niveaux I_{NO2} impactés par le trafic, les mêmes tendances ressortent avec une augmentation sur la période 2000-2006 (+16%) mais une diminution observée sur la période 1999-2007 (-28%). Pour I_{NO}, une tendance à la baisse est relevée (-20%).

□ On notera enfin que, pour l'ensemble de ces 8 stations, l'objectif de qualité de 40 µg/m³ de NO₂ en moyenne annuelle (valeur limite à respecter à partir de 2010) n'est pas respecté sur l'ensemble des périodes étudiées.

Un second niveau d'analyse est présenté dans les Figures 95 et 96 pour les sites respectifs de Lyon et Grenoble, considérant une période plus courte supposée aux émissions « constantes ». L'analyse qui suit concerne les niveaux horaires d'ozone et d'impact de NO I_{NO} et de NO₂ I_{NO2} sur une période hivernale (rôle de la photochimie minimisé) pour différentes classes d'impact de NO_x I_{NOx} (reflétant des classes d'émission du trafic semblables).

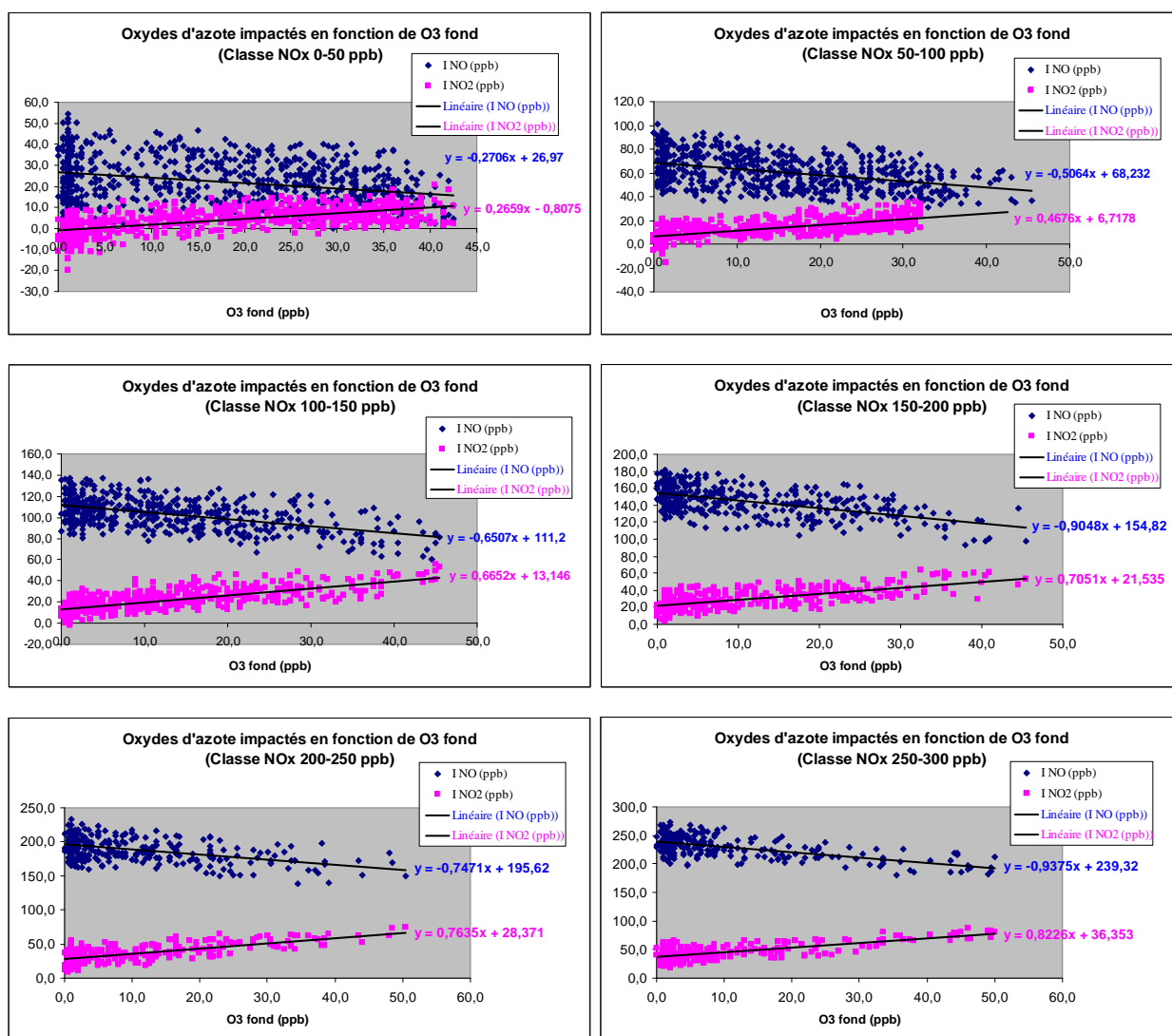


Figure 95 : Niveaux impactés de NO I_{NO} et de NO₂ I_{NO2} en fonction du niveau d'ozone de fond sur la période du 1^{er} nov. 2005 au 31 mars 2006 pour différentes classes d'impact de NO_x I_{NOx} (station : Site de la Mulatière, Lyon)

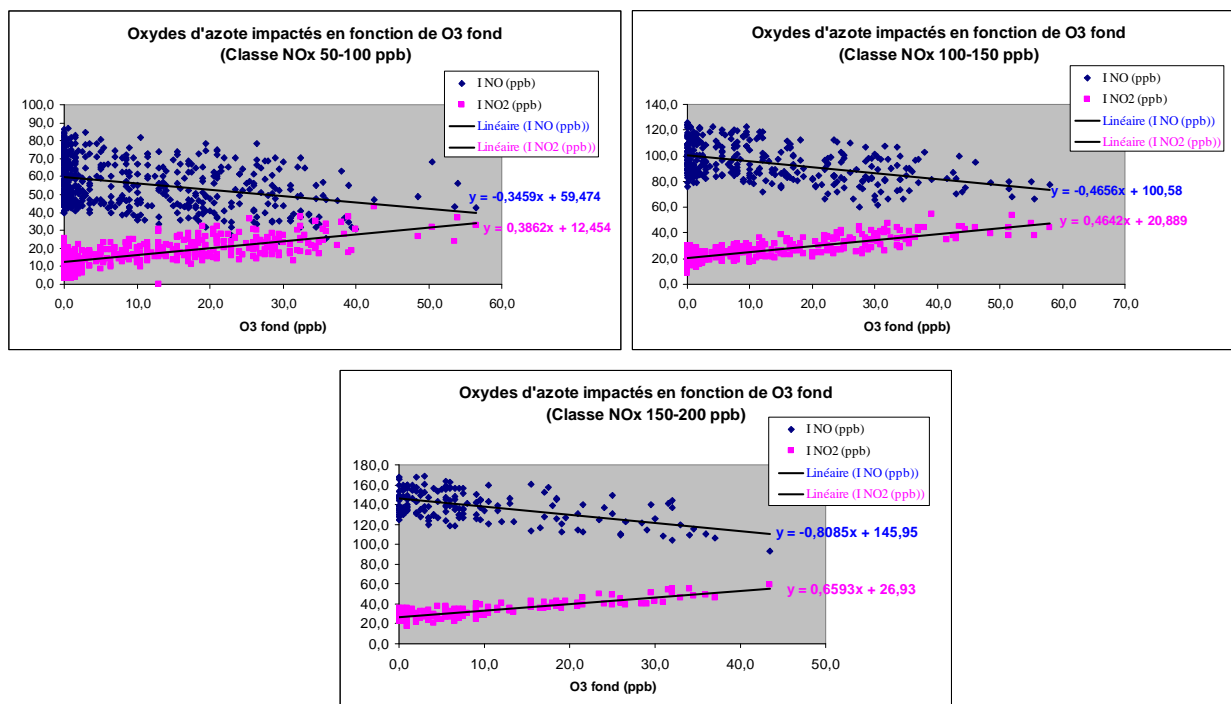


Figure 96 : Niveaux impactés de NO I_{NO} et de NO₂ I_{NO_2} en fonction du niveau d’ozone de fond sur la période du 1^{er} nov. 2005 au 31 mars 2006 pour différentes classes d’impact de NO_x I_{NO_x} (station : Site Le Rondeau, Grenoble)

Pour les sites trafic de Lyon et Grenoble étudiés, les Figures 95 et 96 montrent que, pour différents niveaux d’émission de NO_x (approchés par le biais des classes d’impact de NO_x), plus le niveau d’ozone de fond augmente, plus le niveau I_{NO_2} de NO₂ impacté augmente. A l’inverse, on observe une baisse de l’impact en NO au fur et à mesure de l’augmentation de l’ozone de fond. Quelle que soit la classe d’impact NO_x considérée (et donc schématiquement l’intensité des émissions du trafic), les niveaux de I_{NO} et I_{NO_2} montrent des tendances linéaires bien anti-corrélées (autrement dit, les valeurs absolues des coefficients directeurs des équations de droite de I_{NO} et I_{NO_2} sont très proches pour une même classe de NO_x⁴¹), ce qui tend à démontrer l’influence de la titration du NO par l’ozone, qui donne dans une même proportion du NO₂. Par ailleurs, une augmentation de la pente des droites de I_{NO} et I_{NO_2} (voir coefficients directeurs des équations de droite) est observée pour des classes de NO_x croissantes. Dans une certaine mesure, cette observation peut également refléter l’influence de la réaction de titration du NO par l’ozone, puisque cette réaction est logiquement favorisée lorsque les niveaux de NO (contributeur majoritaire des niveaux de NO_x) et d’O₃ disponibles augmentent.

Des résultats globalement similaires sont observés sur trois autres sites trafic étudiés (Marseille, Rouen et Valence) qui ont fait l’objet de ce traitement des données d’oxydes d’azote en fonction de l’ozone. Ils sont présentés dans l’Annexe 8.

41 A l’exception de la classe NO_x 0-50 ppb sur le site de Grenoble.

Les Figures 97 et 98 présentent le profil journalier de l'impact de NO₂ I_{NO_2} sur les sites trafic étudiés de Lyon et Grenoble, ainsi que le niveau de fond d'ozone, pour différentes classes d'impact de NO_x.

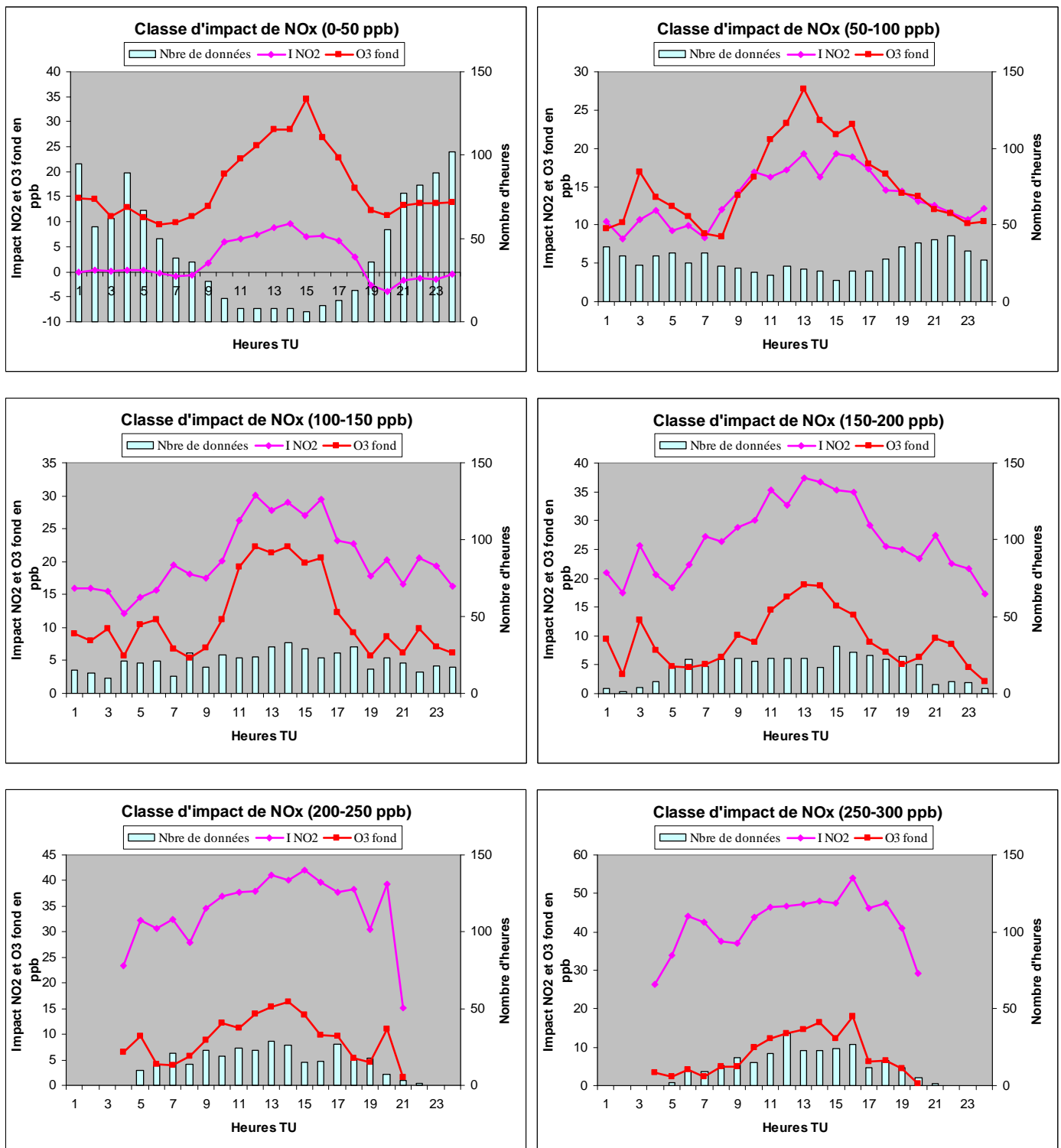


Figure 97 : Profil journalier de l'impact du NO₂ I_{NO_2} sur la période du 1^{er} nov. 2005 au 31 mars 2006 pour différentes classes d'impact de NO_x (station : Site de la Mulatière, Lyon)

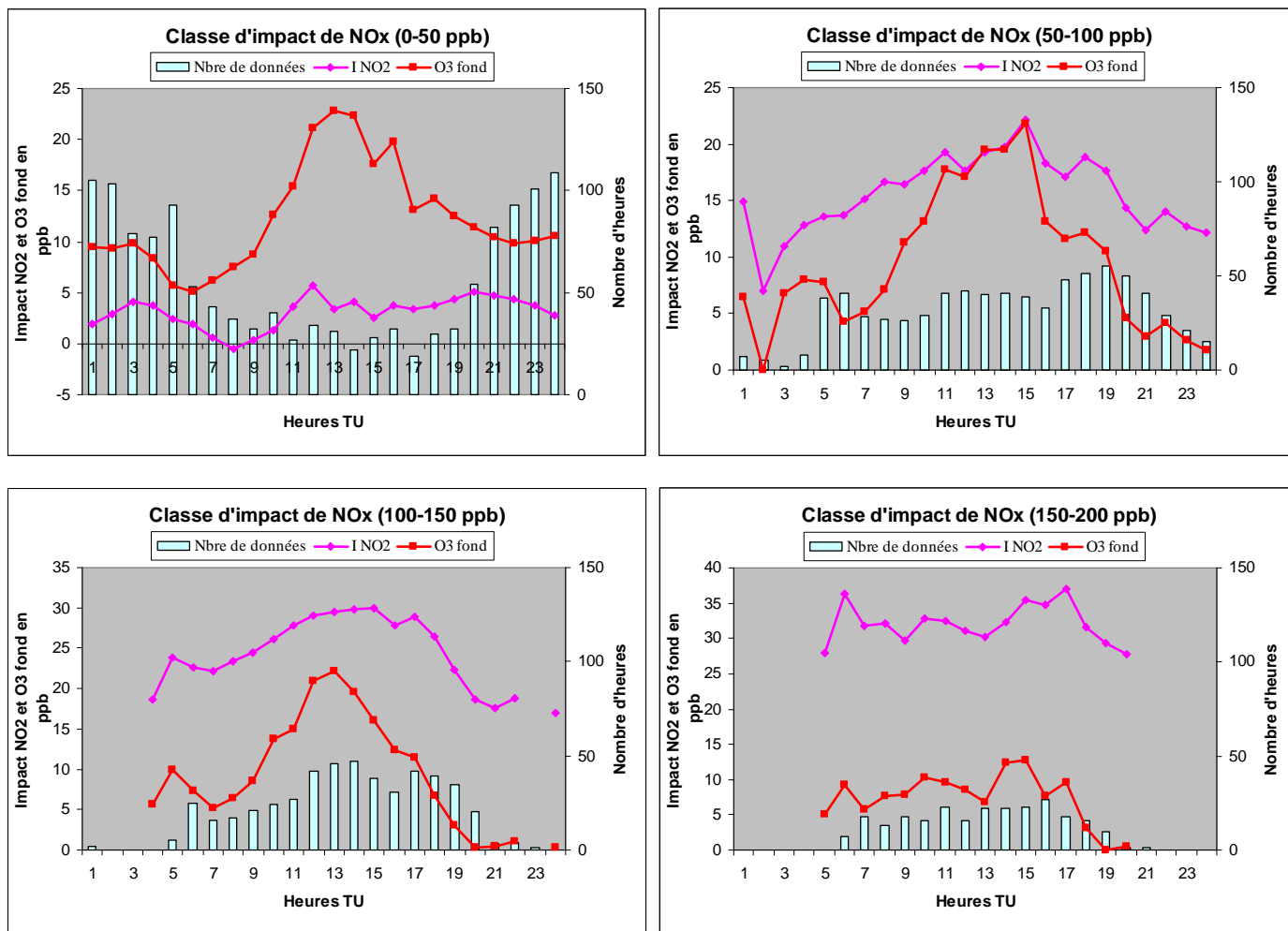


Figure 98 : Profil journalier de l'impact du NO₂ I_{NO2} sur la période du 1^{er} nov. 2005 au 31 mars 2006 pour différentes classes d'impact de NO_x (station : Site Le Rondeau, Grenoble)

Sur les Figures 97 et 98, on observe que tout au long de la journée, les niveaux d'impact de NO₂ à proximité du trafic I_{NO2} et d'ozone de fond sont très bien corrélés. Ainsi, I_{NO2} relevé à proximité du trafic est notamment lié au niveau d'ozone de fond. Seul le cas de Grenoble pour la classe d'impact NO_x 0-50 ppb fait exception. On observe alors en milieu de journée un « pic » d'ozone de fond qui n'est pas corrélé à la stagnation du niveau de NO₂ impacté par le trafic I_{NO2} . Ceci pourrait s'expliquer par les trop faibles émissions en NO_x du trafic (reflétées par la classe d'impact NO_x) pour que les niveaux de NO₂ impactés I_{NO2} soient significativement influencés par la titration du NO par l'ozone.

Par ailleurs, on remarque pour les deux sites une différence des niveaux d'ozone de fond et de I_{NO2} entre les différentes classes d'impact de NO_x présentées. En effet, pour des conditions d'émission trafic croissantes (classes de NO_x croissantes), l'ordre de grandeur des niveaux d'ozone de fond varie peu, alors que les niveaux de NO₂ impactés augmentent sensiblement. Si l'on peut considérer que le niveau d'ozone de fond reflète le niveau de pollution sur la zone géographique du site, cette observation révèle en particulier que dans des conditions d'émission trafic suffisamment fortes, il existe d'autre(s) facteur(s) liés aux émissions primaires du trafic pouvant influencer sensiblement les niveaux de NO₂ impactés (I_{NO2}).

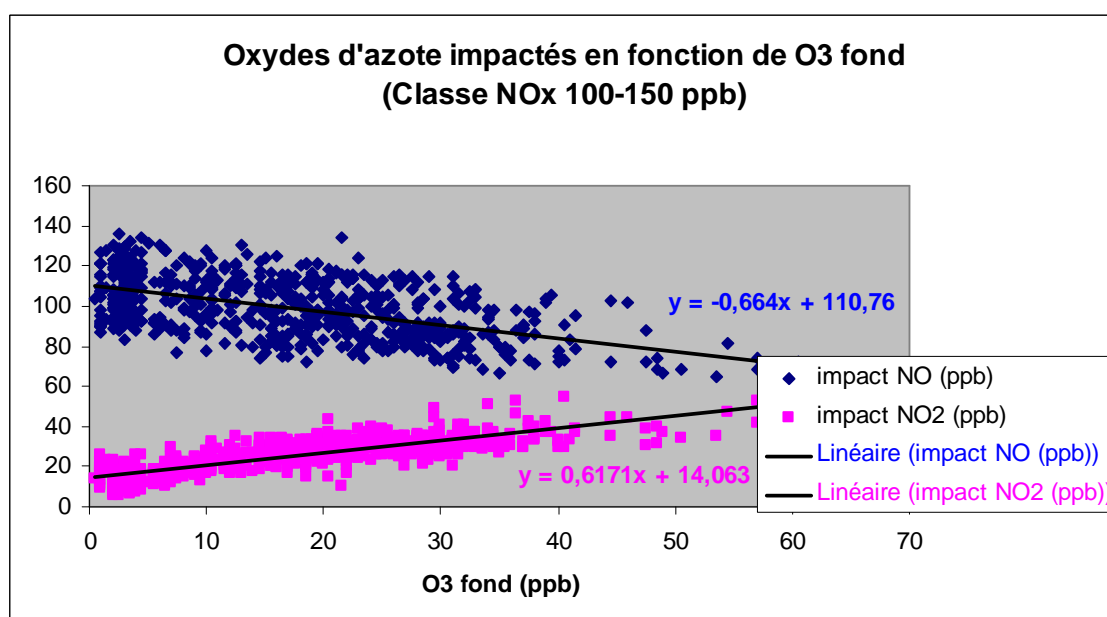
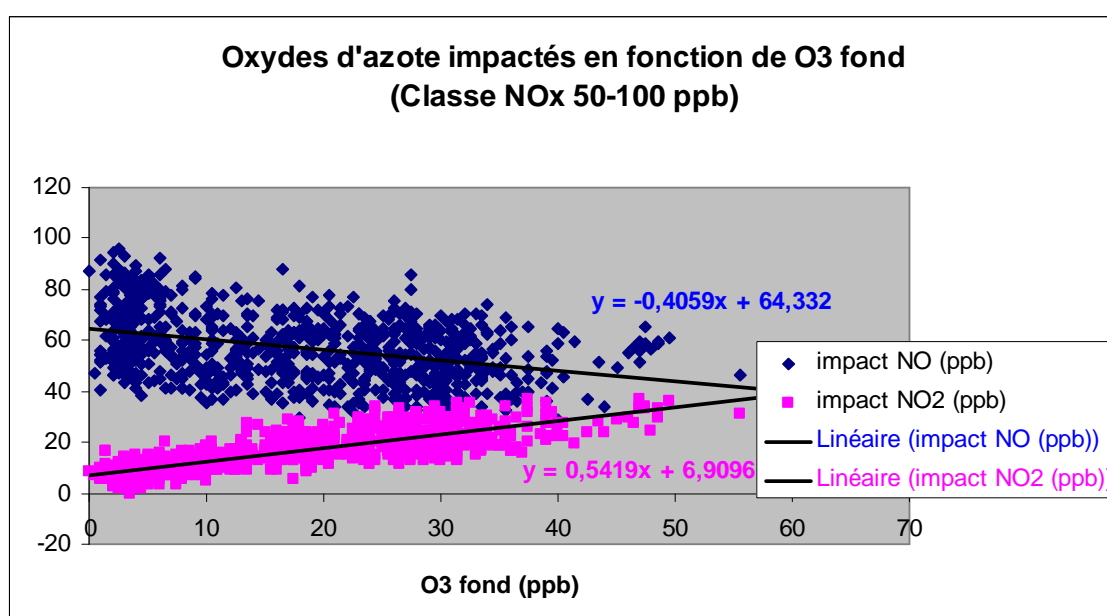
Annexe 8 : Évolution des niveaux d'oxydes d'azote à proximité du trafic routier en fonction des niveaux d'ozone, sur 3 sites (Marseille, Valence et Rouen)

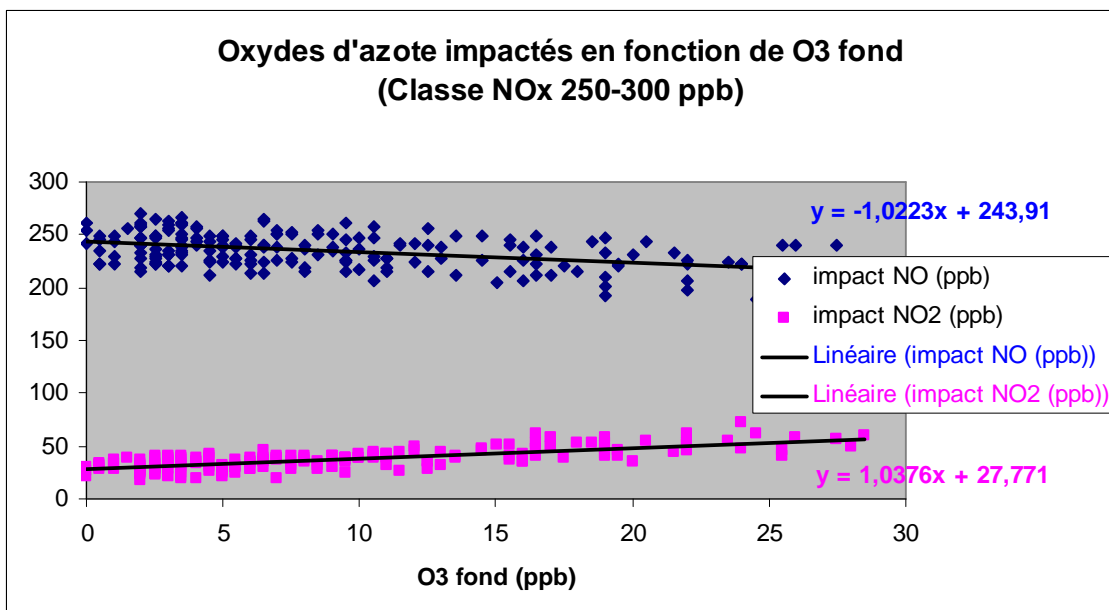
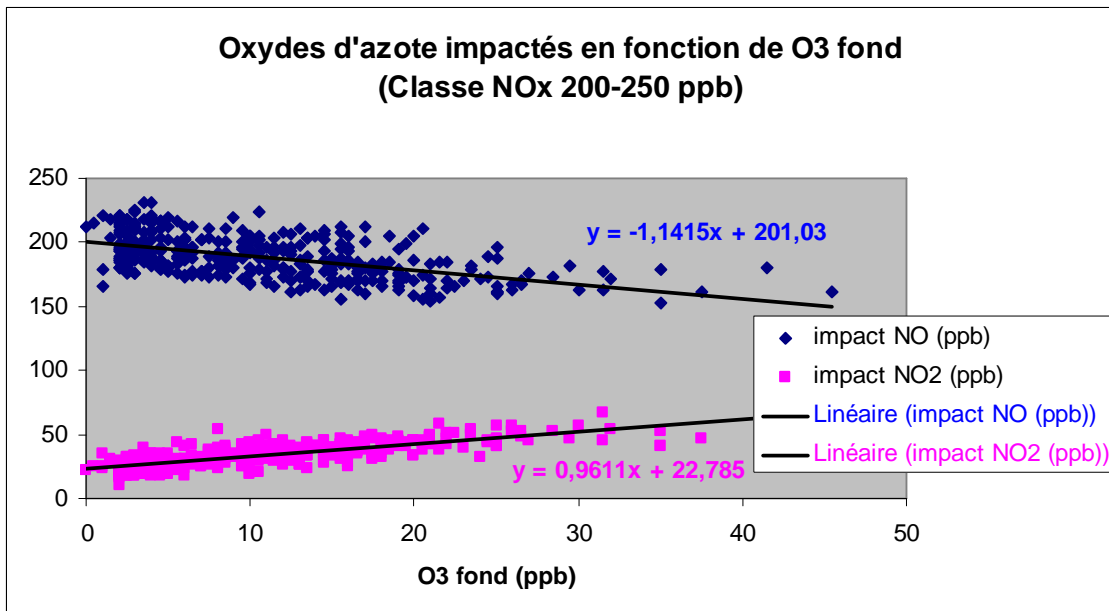
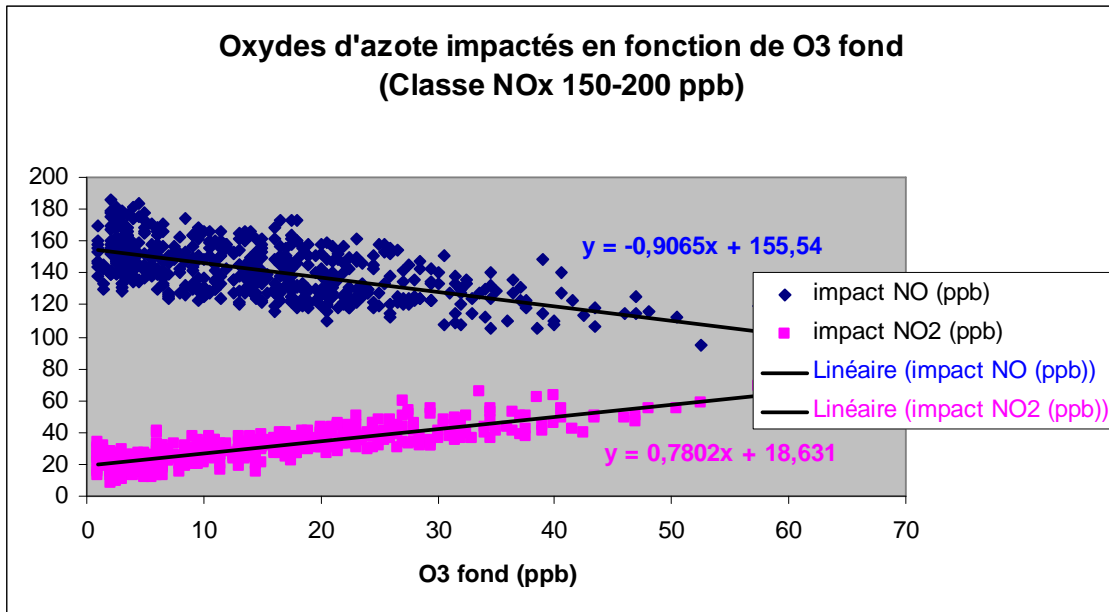
Les résultats présentés ci-dessous sont issus des traitements de concentrations horaires pour NO₂, NO, NO_x et O₃ relevées entre le 1^{er} novembre 2005 et le 31 mars 2006 sur 3 stations trafic respectives :

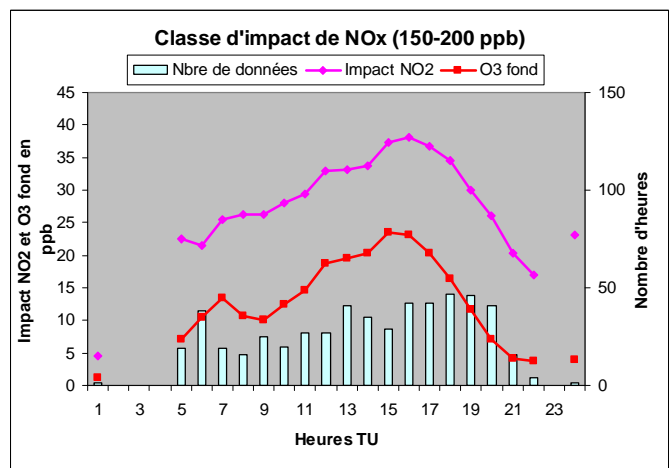
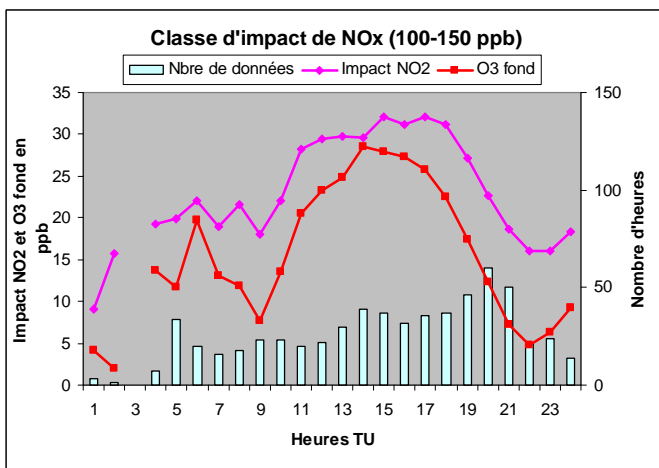
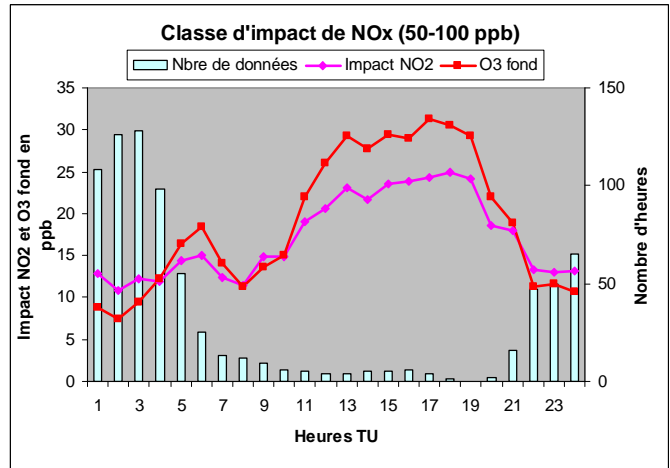
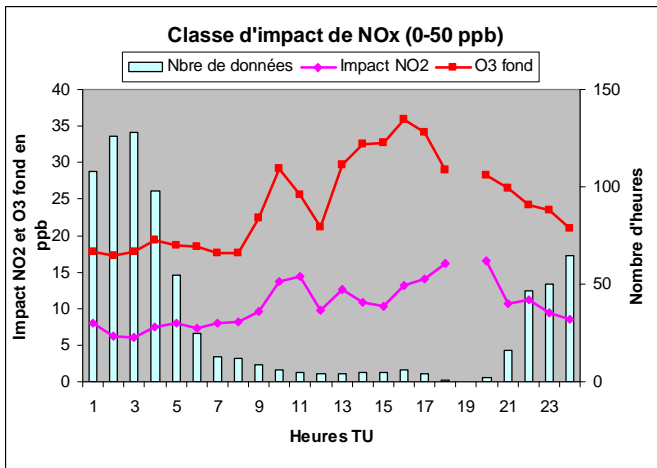
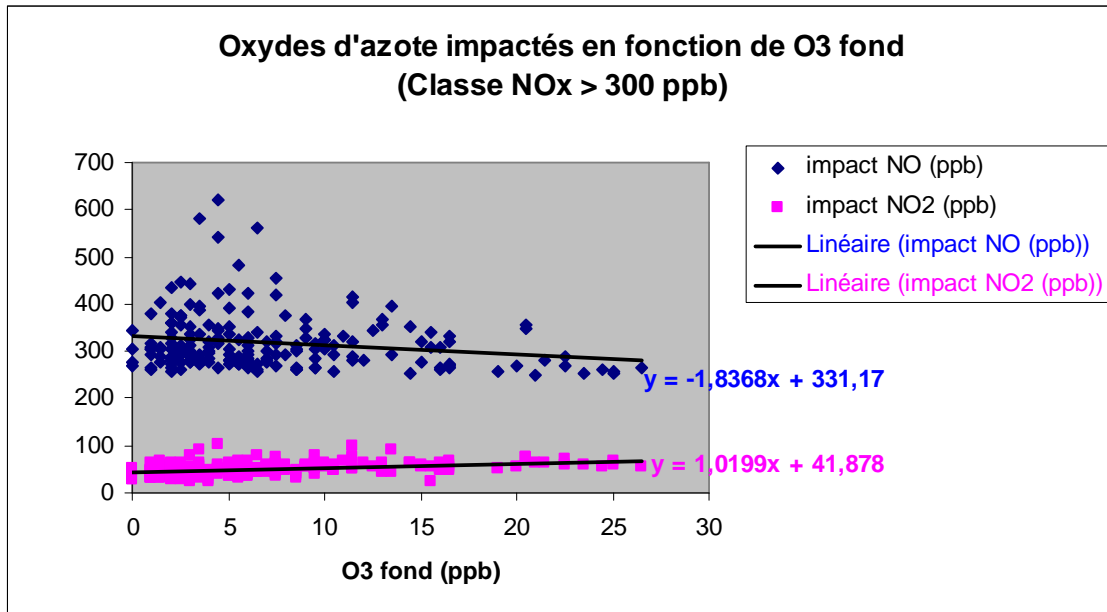
- Site de Plombières (agglomération de Marseille)
- Site Guillaume le Conquérant (agglomération de Rouen)
- Site en bordure d'A7 (agglomération de Valence)

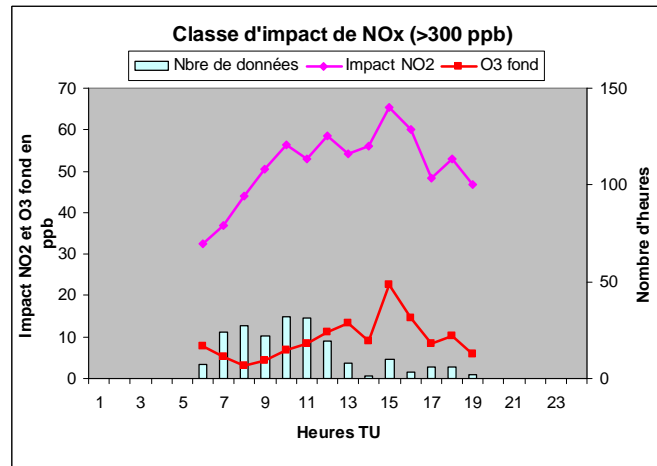
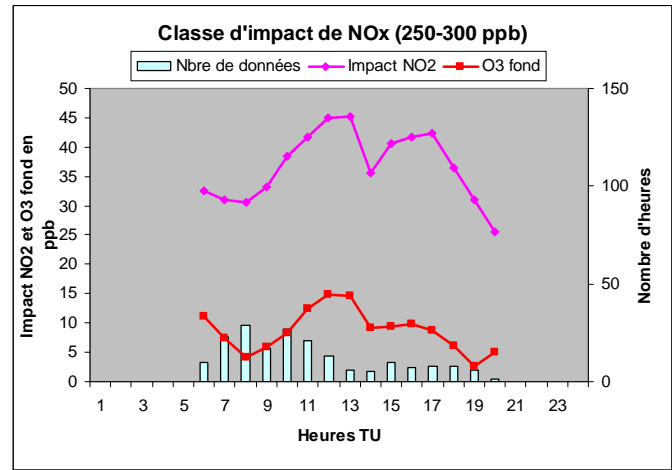
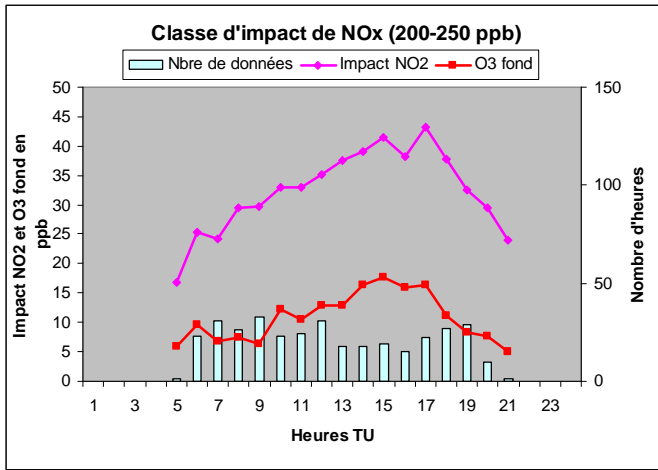
Note : les légendes « impact NO » et « impact NO₂ » dans les figures ci-après correspondent respectivement à la notion « I_{NO} » et « I_{NO2} » développée dans ce rapport.

Site de Plombières (Marseille)

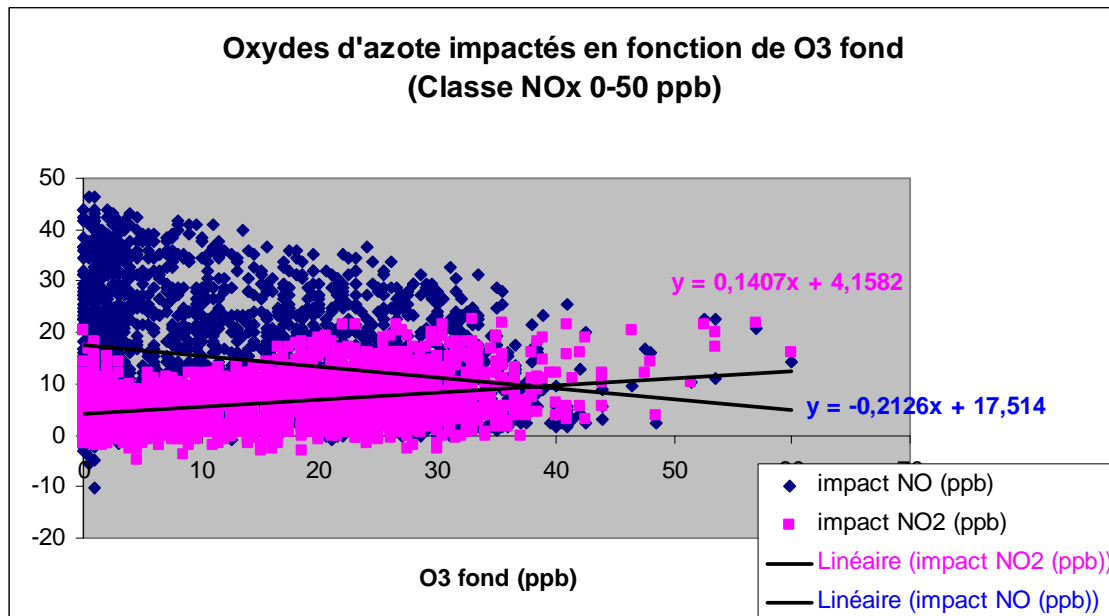


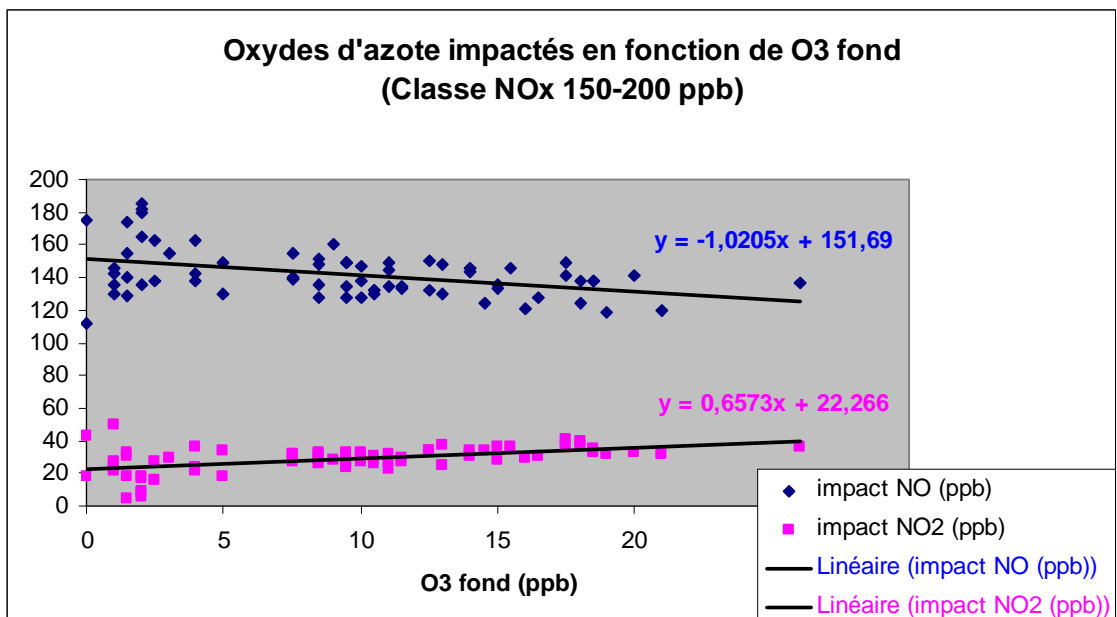
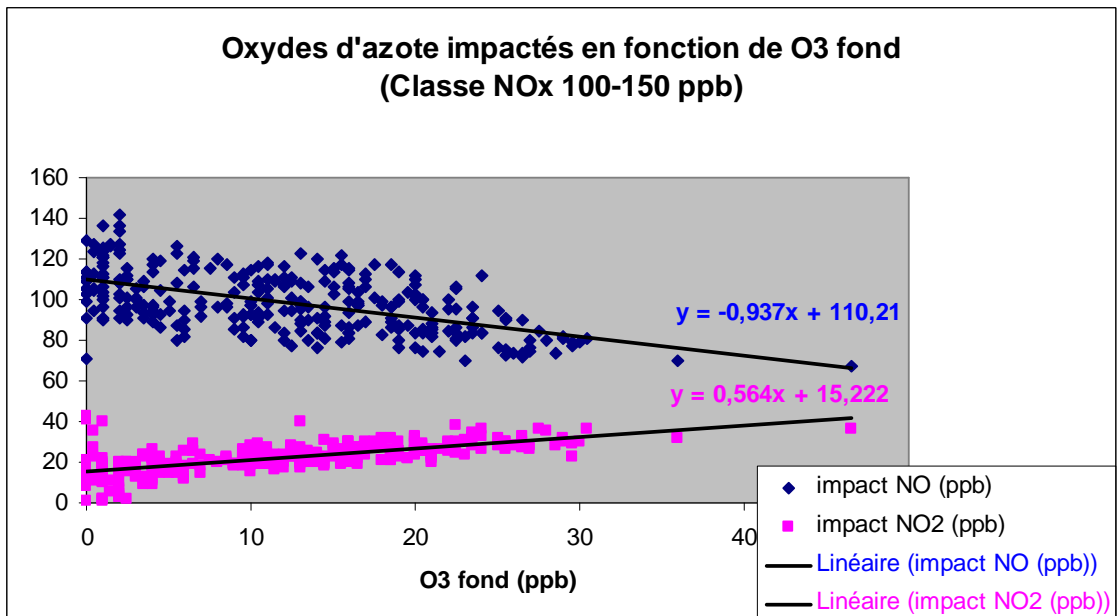
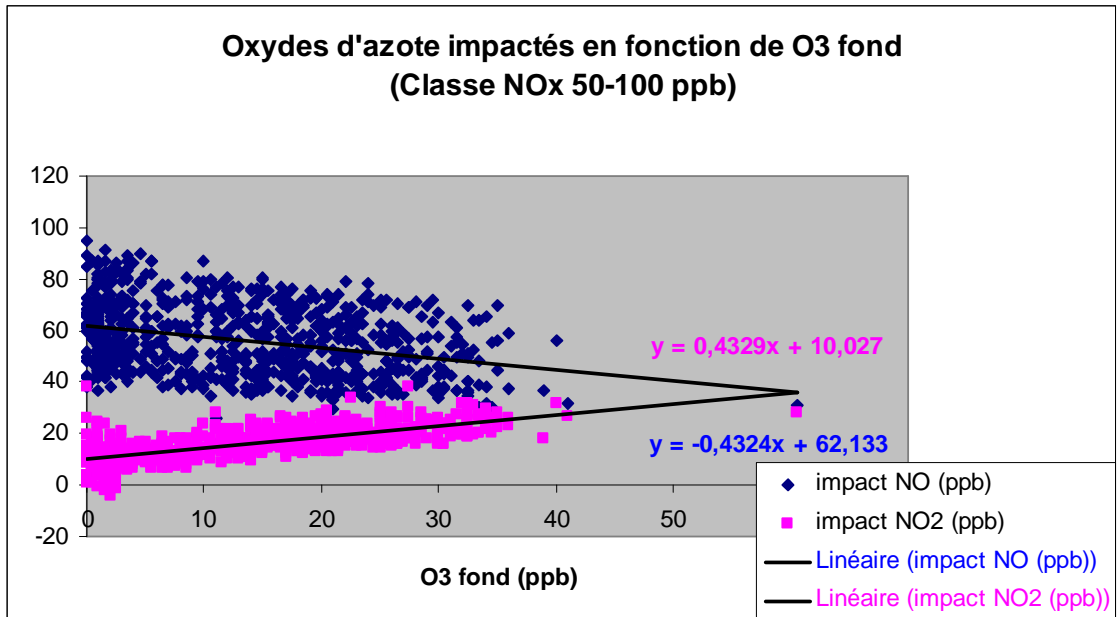




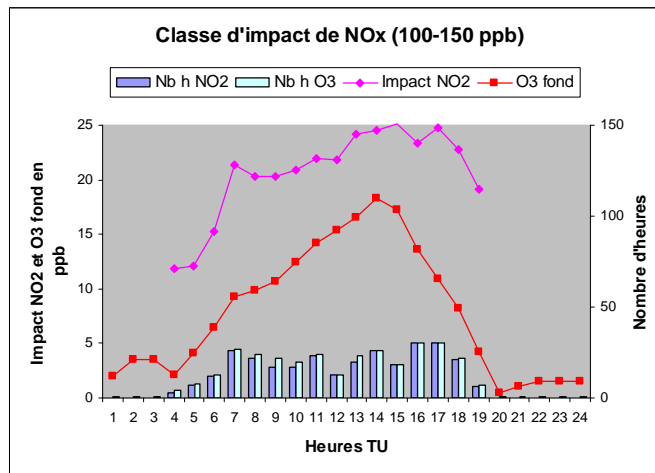
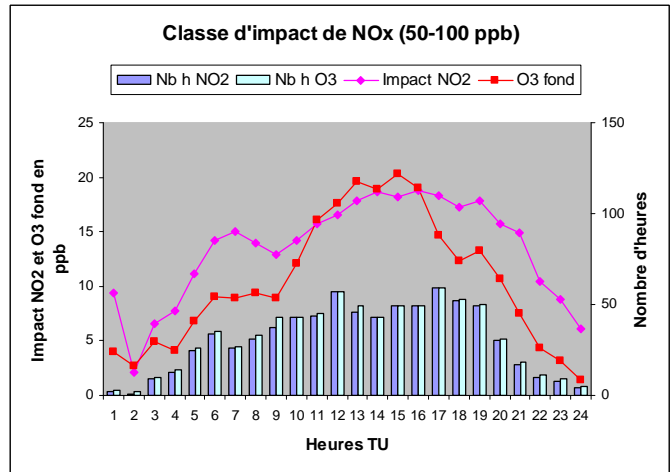
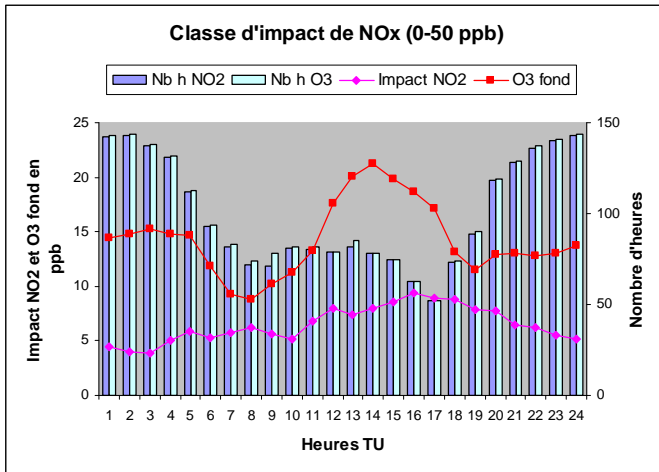


Site Guillaume le Conquérant (agglomération de Rouen)

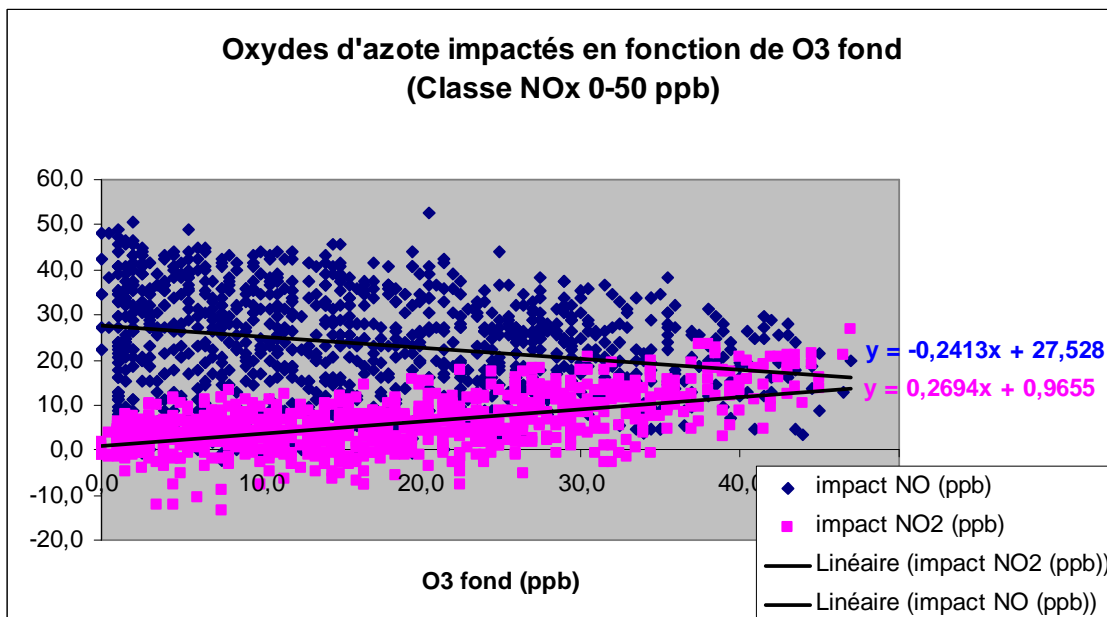


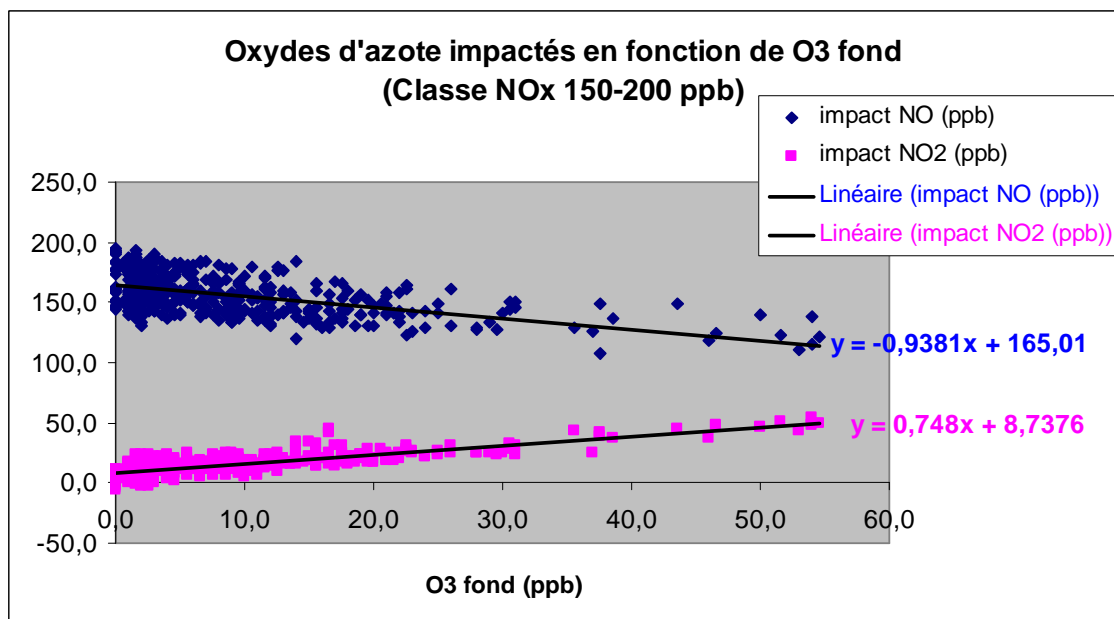
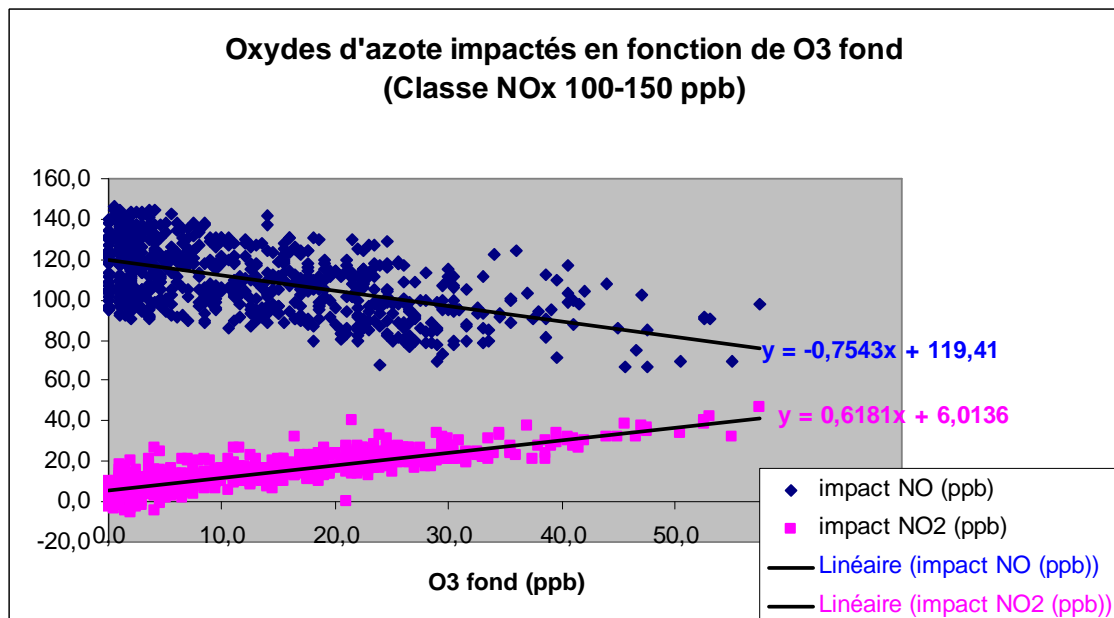
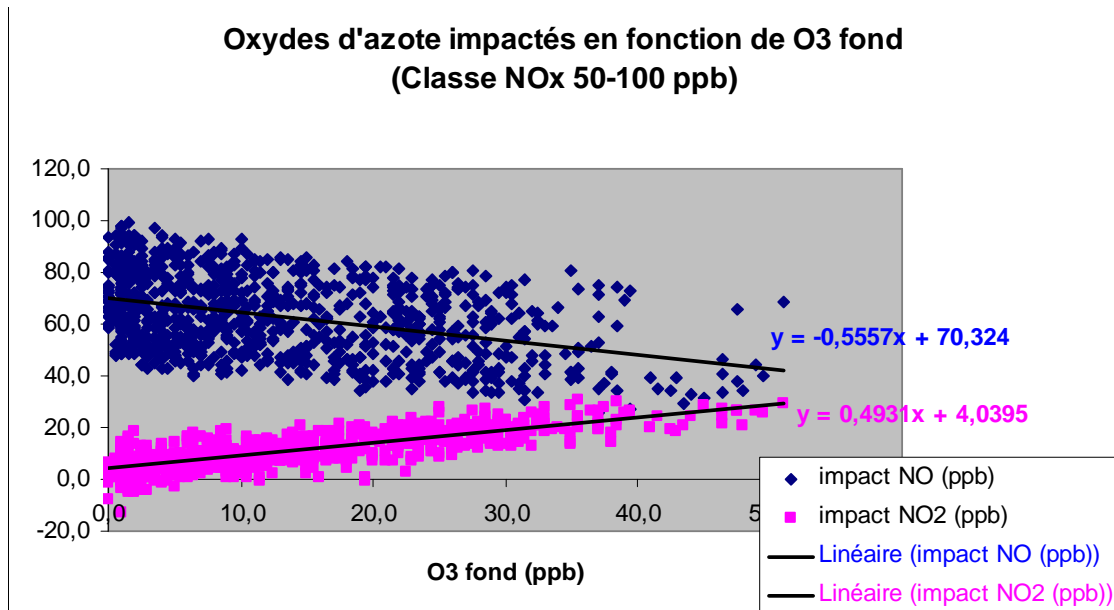


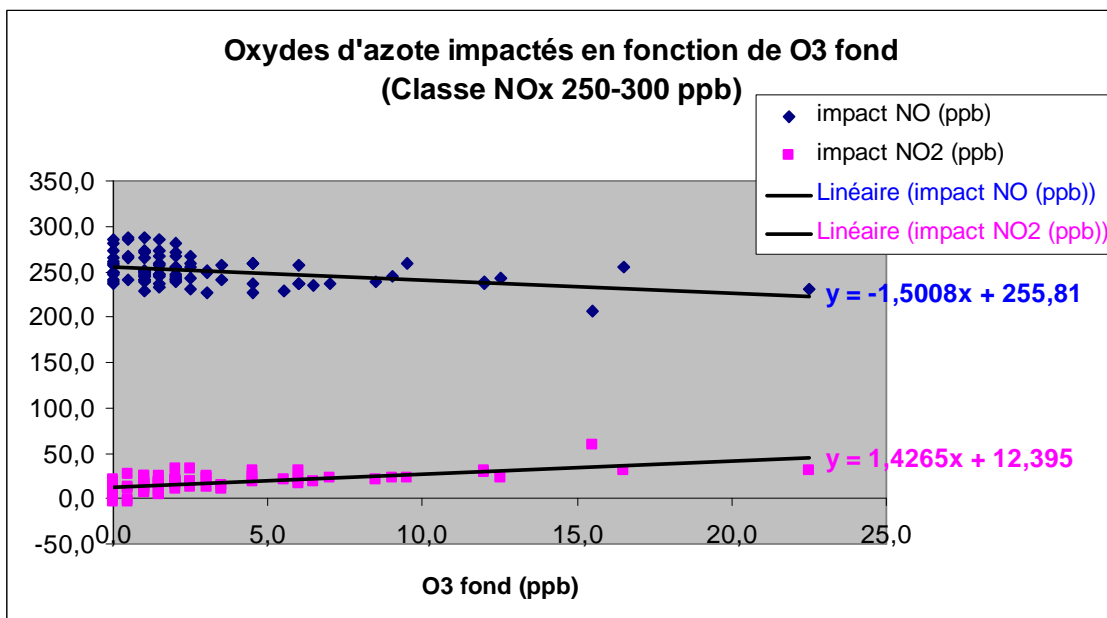
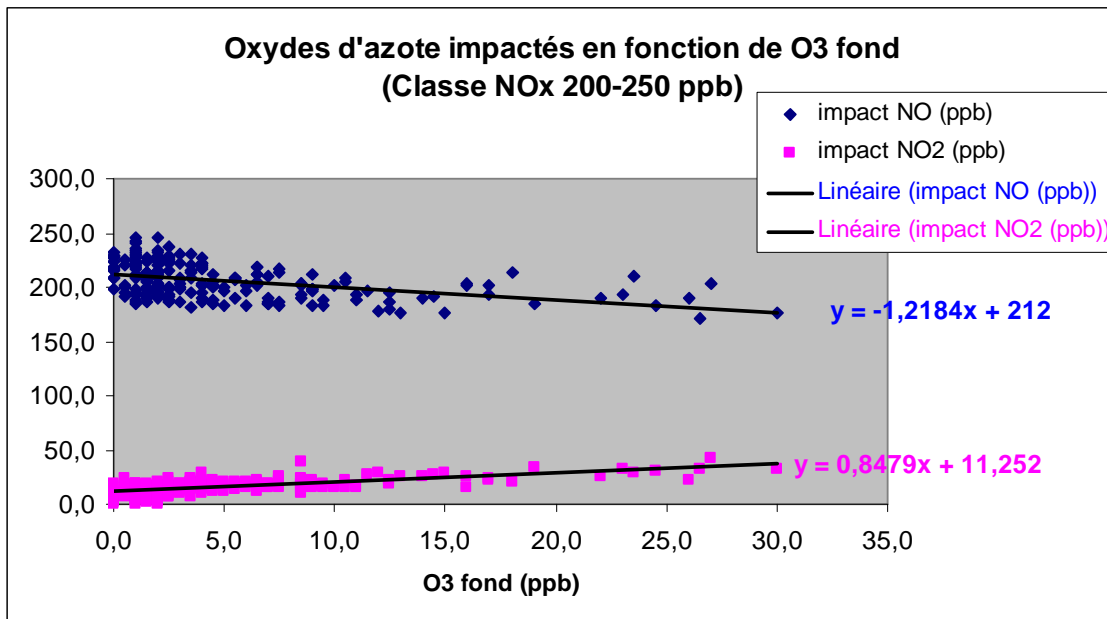
(Nombre de points insuffisants pour les classes de NOx > 200ppb)

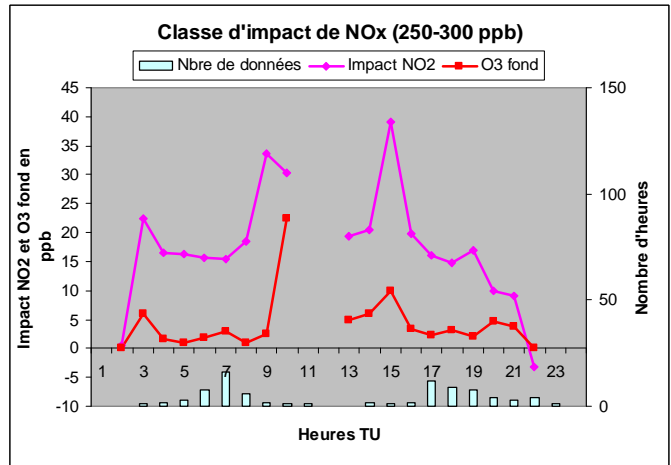
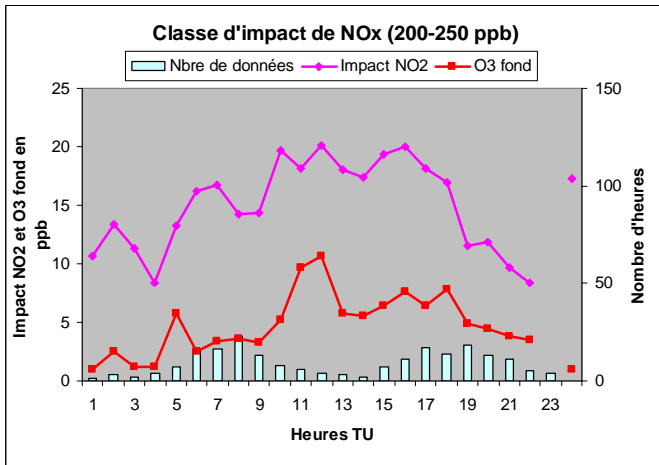
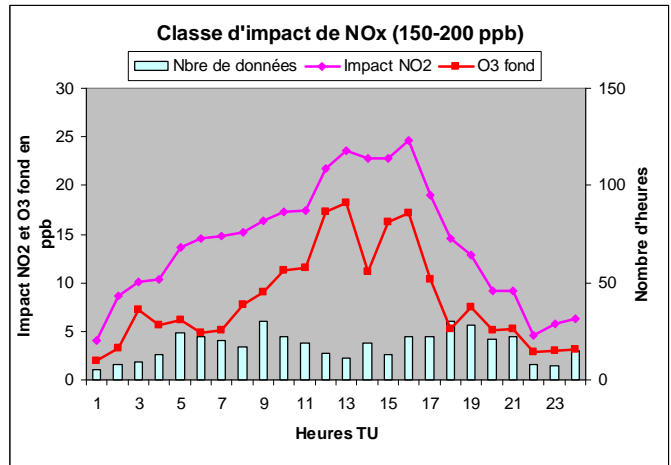
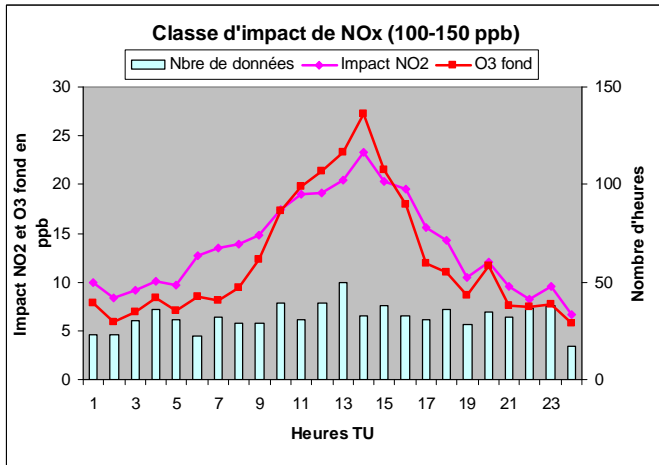
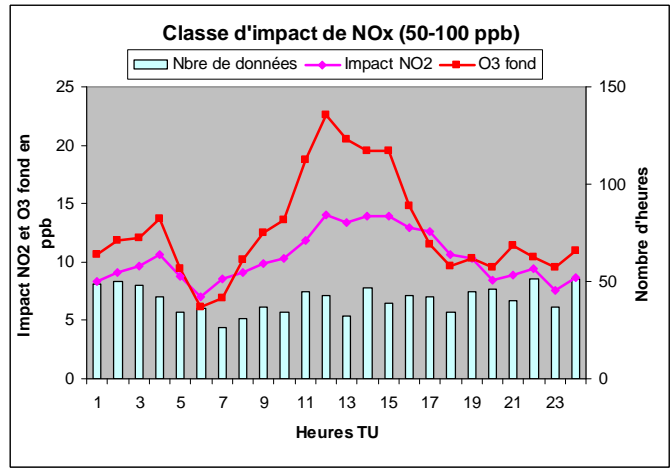
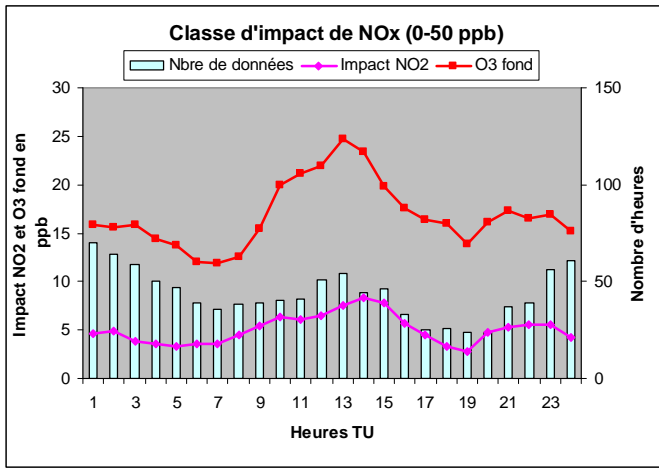


Site en bordure d'A7 (agglomération de Valence)





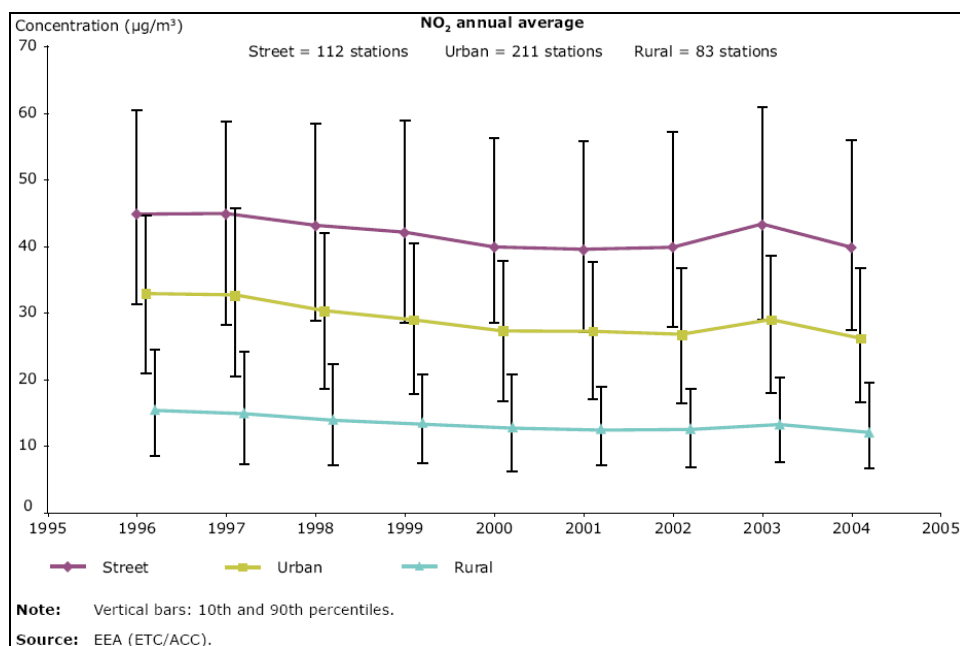




Annexe 9 : Éléments concernant l'évolution des concentrations d'oxyde d'azote dans l'air ambiant en Europe

Evolution des concentrations d'oxydes d'azote (NO, NO₂, NO_x) dans l'air ambiant, en Europe

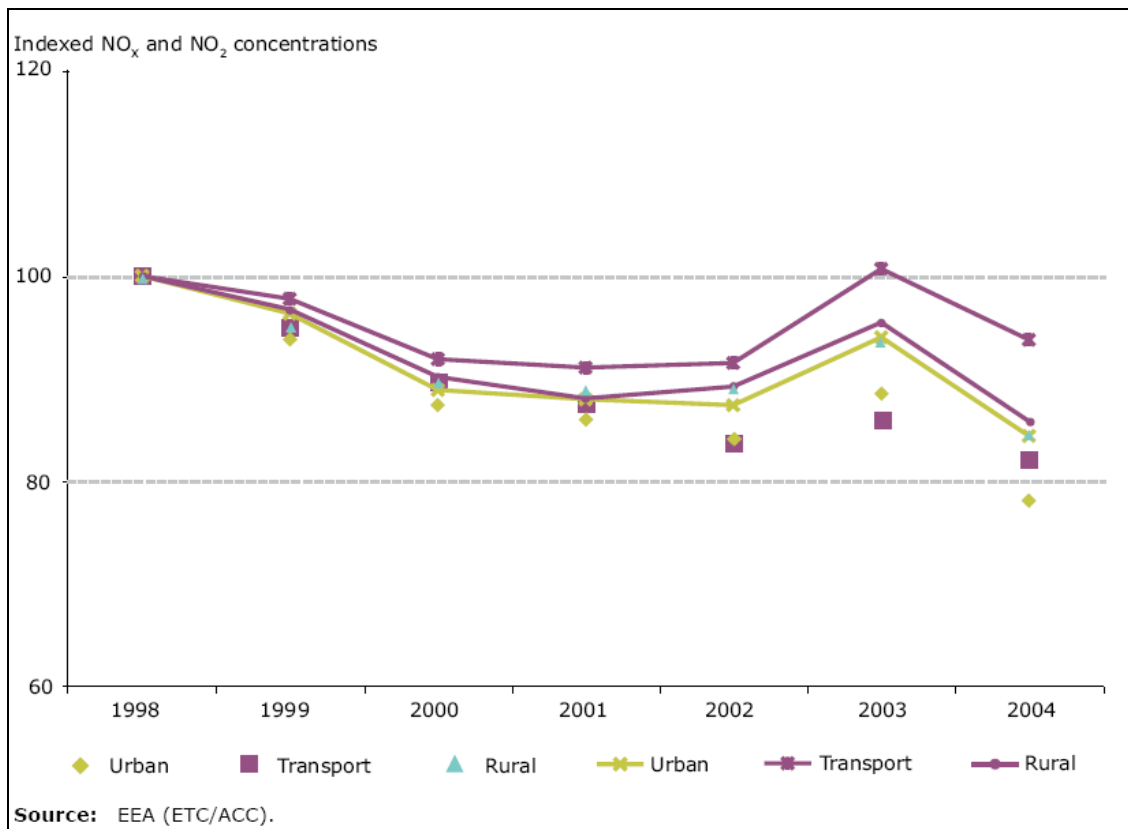
Sur la base de l'ensemble des stations européennes rapportant des mesures pour les années 1996 à 2004, la Figure 99 montre une tendance à une légère décroissance des concentrations de NO₂ (moyenne annuelle) à l'échelle globale de l'Europe, avec stagnation depuis 2000. Cette tendance est observée pour les stations rurales, urbaines et trafic.



* De 1999 à 2004, les concentrations moyennes sont calculées à partir d'un plus grand nombre de stations (1 032 stations, 22 pays)
(Source : Air pollution in Europe 1990–2004, EEA Report No 2/2007)

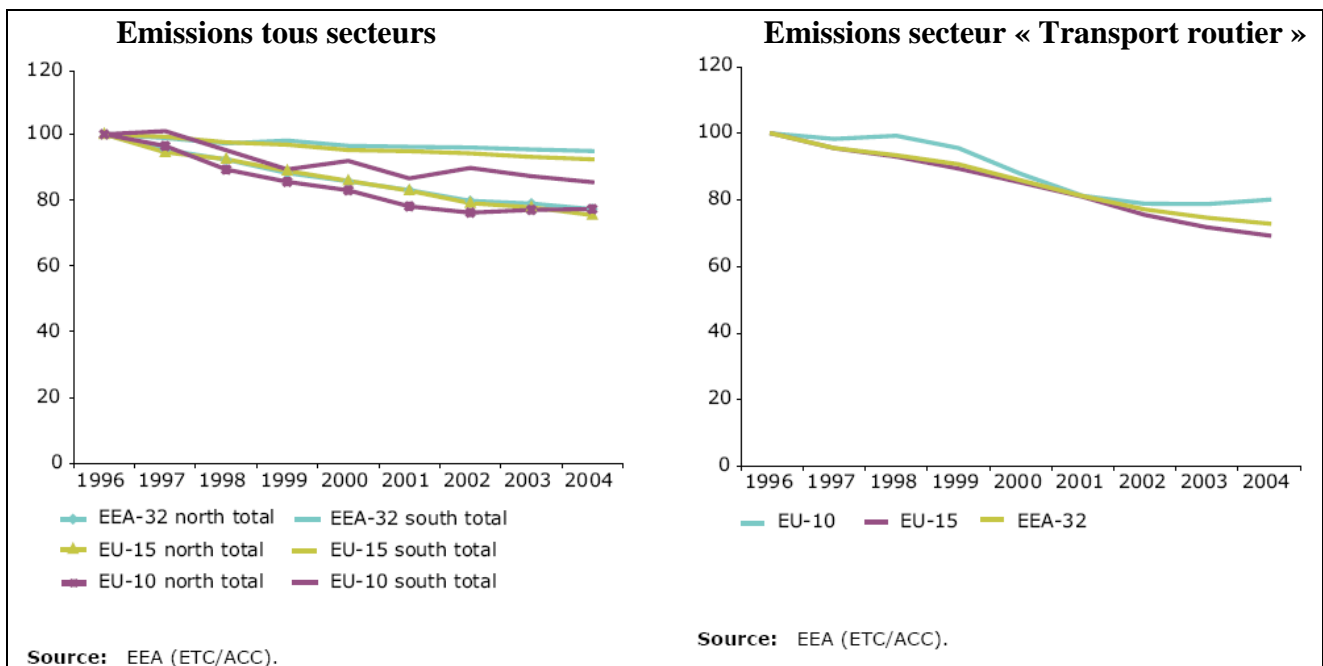
Figure 99 : Evolution globale des concentrations de NO₂ en Europe de 1996 à 2004 (toutes stations de mesure confondues)

Etablie sur la base de l'ensemble des stations européennes disposant de données de mesure pour les années 1998 à 2004, la Figure 100 montre une tendance globale à la décroissance plus marquée pour les NO_x que pour le NO₂. La réduction moyenne des concentrations de NO_x correspond assez bien à la réduction des émissions de NO_x observée sur la Figure 101.



(Source : Air pollution in Europe 1990–2004, EEA Report No 2/2007)

Figure 100 : Evolution globale des concentrations de NO₂ (lignes) et NO_x (marques) en Europe de 1998 à 2004 (450 stations urbaines, transport et rurales, dans 8 pays)



EEA-32 : 32 états membres de l'EEA

EU-15: Autriche, Belgique, Danemark, Finlande, France, Allemagne, Grèce, Irlande, Italie, Luxembourg, Pays Bas, Portugal, Espagne, Suède, Royaume-Uni

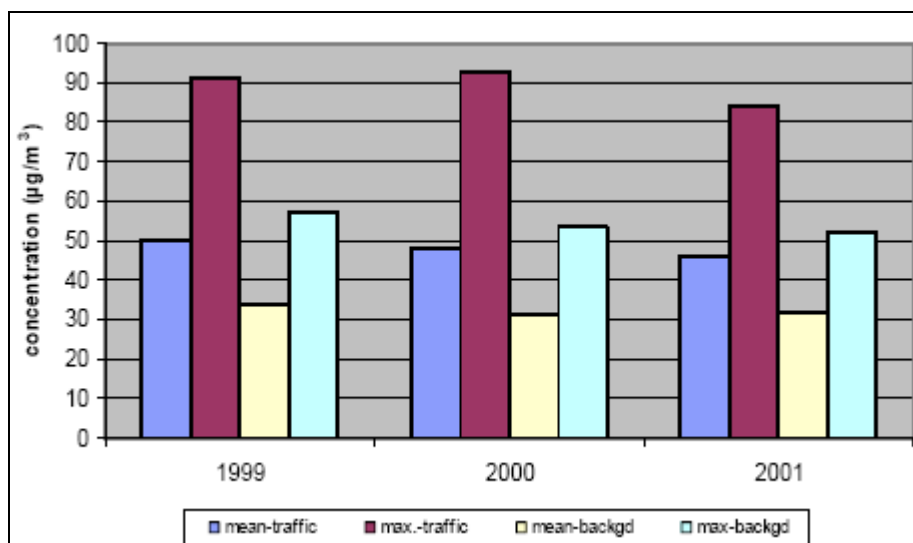
EU-10 : République Tchèque, Chypre, Estonie, Hongrie, Lettonie, Lituanie, Malte, Pologne, Slovaquie, Slovénie

(Source : Air pollution in Europe 1990–2004, EEA Report No 2/2007)

Figure 101 : Tendence globale des émissions de NO_x en Europe de 1996 à 2004

Les transports routiers sont le plus grand contributeur des émissions de NO_x en Europe (Figure 103).

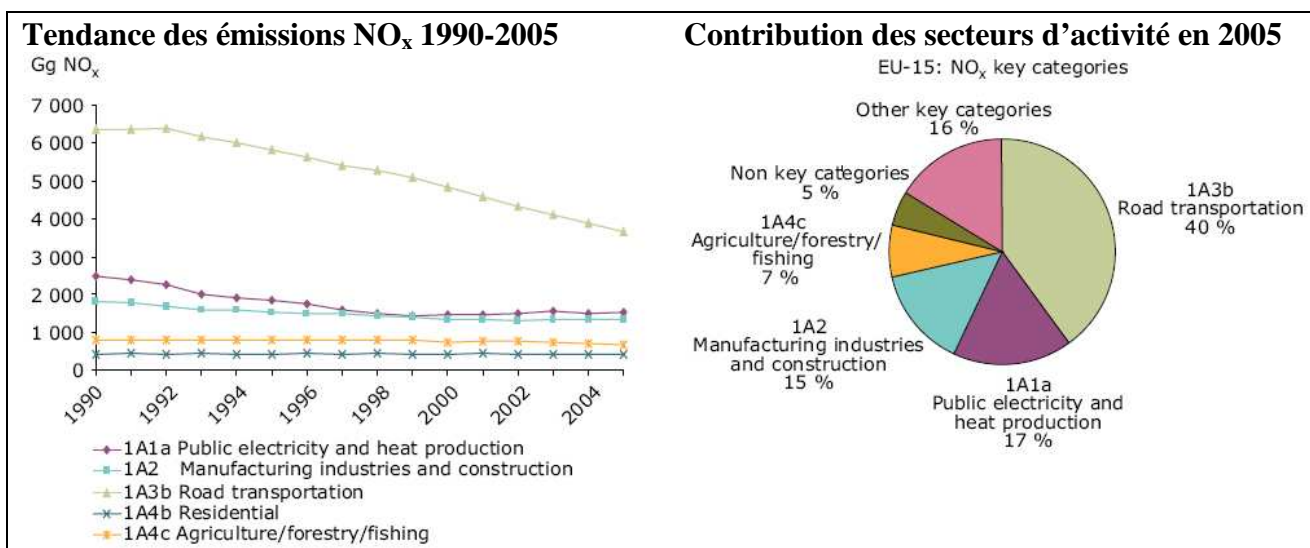
Les données analysées par l'EEA à partir de stations sélectionnées dans les agglomérations urbaines considérées majeures par l'EEA (TERM 2003 04 EEA-31. Transport contribution to air quality, Indicator Factsheet, EEA 2003), indiquent globalement une apparente stagnation des valeurs de concentrations en NO₂ (maximales et moyennes) sur les stations proches du trafic routier de 1999 à 2001, accompagnée d'une tendance similaire sur les stations de fond (Figure 102).



(Source: TERM 2003 04 EEA-31. Transport contribution to air quality, Indicator Factsheet, EEA 2003)

Figure 102 : Evolution globale des valeurs moyenne et maximale de concentrations en NO₂ (moyennes annuelles) pour les stations trafic et urbaines⁴², en Europe de 1999 à 2001

Les émissions de NO_x liées au transport routier, qui contribue selon l'EEA à plus de 40 % des émissions totales de NO_x, diminuent globalement de 42 % (Figure 103) dans les pays de l'EU-15, entre 1990 et 2005 (Annual European Community LRTAP Convention. Emission Inventory report 1990–2005. EEA Technical report No 14/2007, novembre 2007).



(Source: Annual European Community LRTAP Convention. Emission Inventory report 1990–2005. EEA Technical report No 14/2007, nov 2007)

Figure 103: Emissions NO_x selon les cinq principaux secteurs d'activité, en EU-15

⁴² Les paires de stations (trafic et urbaine) situées dans les capitales ont été préférées, mais en l'absence de données disponibles, les paires de stations choisies sont situées sur la plus grande ville disposant de données. Compte tenu d'une disponibilité des données variable d'une année à l'autre, seules les années 1999 à 2001 ont pu être retenues afin de disposer d'un jeu de données cohérent. Les stations trafic ont été sélectionnées selon la disponibilité de données annuelles et leur complétude par rapport aux données horaire disponibles. Pour certaines années et stations, la disponibilité de données était faible, toutefois celles-ci ont été utilisées en l'absence d'autre alternative possible. Source : AirBase.

La France, l'Allemagne et le Royaume-Uni présentent les plus fortes réductions d'émission de NO_x liée au trafic routier, en valeur absolue (Tableau XIV). Selon l'EEA, la réduction observée au Royaume-Uni serait due à l'introduction de pots catalytiques sur les véhicules légers et à une réglementation plus stricte sur les émissions des véhicules utilitaires lourds (Annual European Community LRTAP Convention. Emission Inventory report 1990–2005. EEA Technical report No 14/2007, novembre 2007). En France, cette réduction serait aussi associée en partie à l'introduction de pots catalytiques (Annual European Community LRTAP Convention. Emission Inventory report 1990–2005. EEA Technical report No 14/2007, novembre 2007).

Tableau XIV : Evolution globale des émissions de NO_x liées au transport routier de 1990 à 2005 dans l'EU-15

	Emissions (Gg)			Share of EU-15 emissions in 2005 (%)	Change 2004-2005		Change 1990-2005	
	1990	2004	2005		(Gg)	(%)	(Gg)	(%)
Austria	98.37	129.54	131.02	4 %	1.47	1 %	32.64	33 %
Belgium	183.65	130.72	127.17	3 %	- 3.55	- 3 %	- 56.47	- 31 %
Denmark	105.31	71.16	68.10	2 %	- 3.06	- 4 %	- 37.21	- 35 %
Finland	134.31	61.49	57.42	2 %	- 4.07	- 7 %	- 76.89	- 57 %
France	1 092.54	580.71	545.38	15 %	- 35.33	- 6 %	- 547.16	- 50 %
Germany	1 341.45	732.71	656.40	18 %	- 76.31	- 10 %	- 685.05	- 51 %
Greece	109.17	109.10	122.77	3 %	13.67	13 %	13.60	12 %
Ireland	43.88	43.84	42.86	1 %	- 0.98	- 2 %	- 1.02	- 2 %
Italy	889.30	540.74	505.93	14 %	- 34.81	- 6 %	- 383.37	- 43 %
Luxembourg	NE	NE	NE					
Netherlands	261.41	151.56	144.19	4 %	- 7.37	- 5 %	- 117.22	- 45 %
Portugal	79.83	101.94	101.59	3 %	- 0.35	0 %	21.75	27 %
Spain	513.09	539.69	517.63	14 %	- 22.06	- 4 %	4.55	1 %
Sweden	174.20	87.27	83.52	2 %	- 3.75	- 4 %	- 90.67	- 52 %
United Kingdom	1 323.80	596.94	549.25	15 %	- 47.69	- 8 %	- 774.55	- 59 %
EU-15	6 350.31	3 877.42	3 653.24	100 %	- 224.18	- 6 %	- 2 697.07	- 42 %

(Source : Annual European Community LRTAP Convention. Emission Inventory report 1990–2005. EEA Technical report No 14/2007, novembre 2007)

De façon générale, bien qu'une diminution globale des émissions de NO_x soit observée en Europe, les niveaux atmosphériques de NO₂ sur un ensemble d'agglomérations urbaines majeures ont une tendance globale à décroître faiblement voire à stagner. Cette tendance à la stagnation des niveaux atmosphériques de NO₂ sur un ensemble d'agglomérations pourrait a priori s'expliquer, selon l'EEA, par une augmentation des trajets routiers et un nombre croissant de véhicules (TERM 2003 32 EEA-31. Size and composition of the vehicle fleet. Indicator Factsheet, EEA 2003), qui compenserait en partie la réduction des NO_x à l'émission d'échappement (TERM 2003 04 EEA-31. Transport contribution to air quality, Indicator Factsheet, EEA 2003) liée aux améliorations technologiques et de qualité du carburant.

Au regard des résultats de cette analyse globale, le groupe de travail s'est attaché à cibler ensuite son analyse sur l'évolution des niveaux d'oxydes d'azote (NO, NO₂, NO_x) pour des agglomérations importantes ou des sites ayant fait l'objet d'études sur le sujet, en Europe.

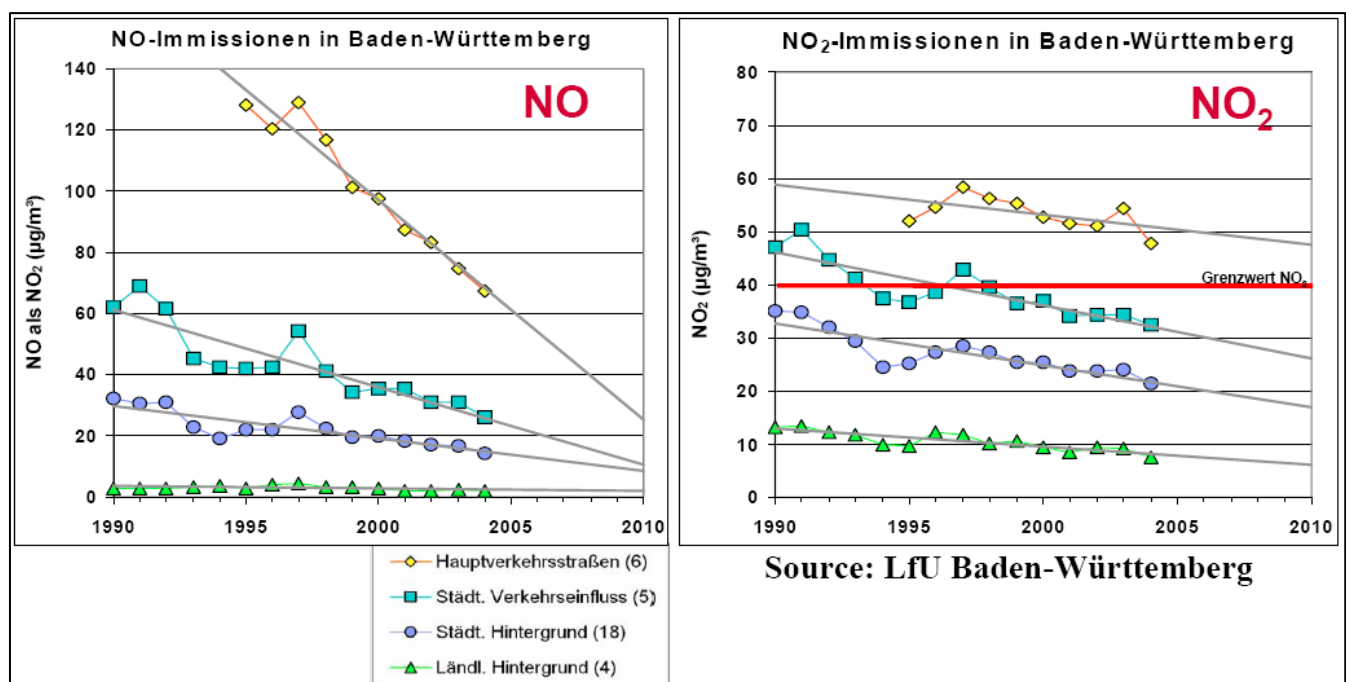
Evolution des concentrations d'oxydes d'azote (NO, NO₂, NO_x) dans l'air ambiant de sites ciblés en Europe

L'évolution des niveaux d'oxydes d'azote est présentée ci-après sur différents sites en Europe, à titre d'exemples.

La Figure 104 illustre l'évolution des concentrations moyennes ambiantes de NO et NO₂ sur différents types de sites de la région allemande de Baden-Württemberg entre 1990 et 2004 :

- Au niveau des axes routiers à fort trafic (en jaune) ;
- Au niveau des zones urbaines sous influence du trafic (en bleu turquoise) ;
- Bruits de fond urbains (en bleu) ;
- Bruits de fond ruraux (en vert).

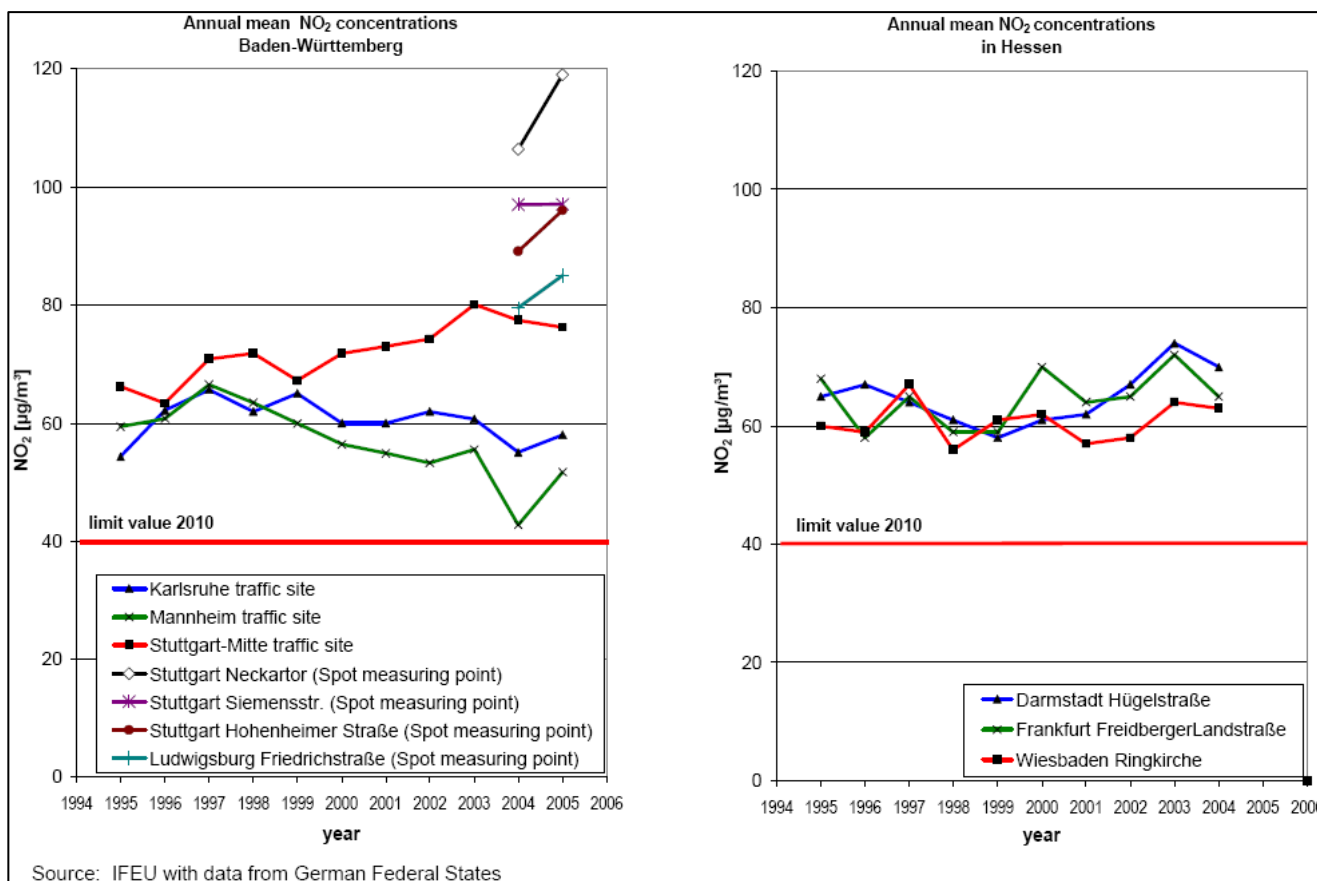
Alors que les concentrations de NO ont une tendance, plus ou moins forte selon les types de sites, à la diminution, les concentrations de NO₂ ont une tendance à la diminution plus homogène. On y observe également une différence marquée des niveaux moyens de NO et NO₂ entre les différents types sites, qui pourrait être liée à l'influence plus ou moins grande du trafic, les conditions climatiques, autre facteur de production du NO₂ dans l'atmosphère, étant a priori similaires au sein d'une même région. Les concentrations moyennes de NO₂ depuis 2000 sont inférieures à la valeur limite de qualité de l'air de 2010 (40µg/m³ en moyenne annuelle), excepté au niveau des axes routiers à fort trafic.



(Source: Klaus-P Schindler, *LDV technology: State of the art and anticipated developments*, Volkswagen AG)

Figure 104 : Evolution des concentrations de NO et NO₂ sur différents types de sites de la région Baden-Württemberg

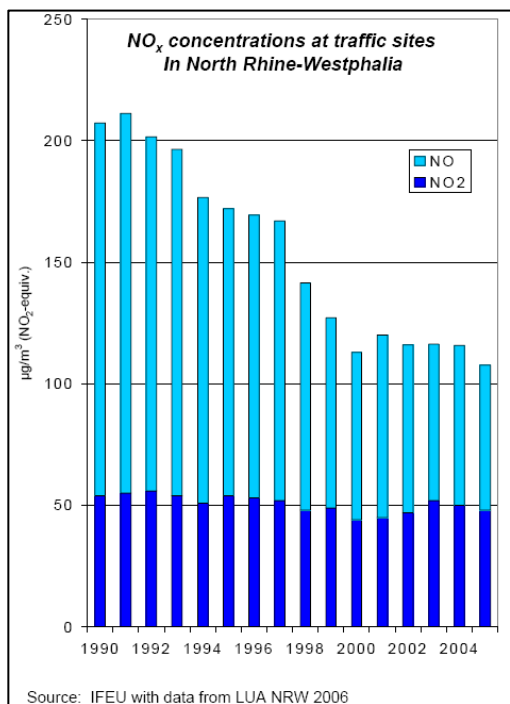
Les niveaux de concentrations de NO₂ s'avèrent parfois être supérieurs à la valeur limite de qualité de l'air de 2010 (40µg/m³ en moyenne annuelle), et leur évolution peut fluctuer sensiblement selon les sites, comme en témoigne la Figure 105 concernant des villes allemandes. On notera pour des points de mesure spécifiques au niveau d'axes routiers à Stuttgart et Ludwigsburg (et non des stations « trafic »), des concentrations moyennes annuelles de NO₂ particulièrement élevées (entre 80 et 120 µg/m³) avec des augmentations brutales entre 2004 et 2005.



(Source: Udo Lambrecht, *Findings in Germany*, IFEU)

Figure 105 : Evolution des concentrations de NO₂ sur des sites des regions Baden-Wurttemberg et Hessen

L'evolution des niveaux d'oxydes d'azote en proximite des axes routiers apparat donc comme une problematique directement liee aux caracteristiques du site trafic (climat, topographie, trafic), avec une influence importante des composantes trafic et topographie, puisque le climat varie peu pour les sites trafic d'une mme ville (Figure 105).

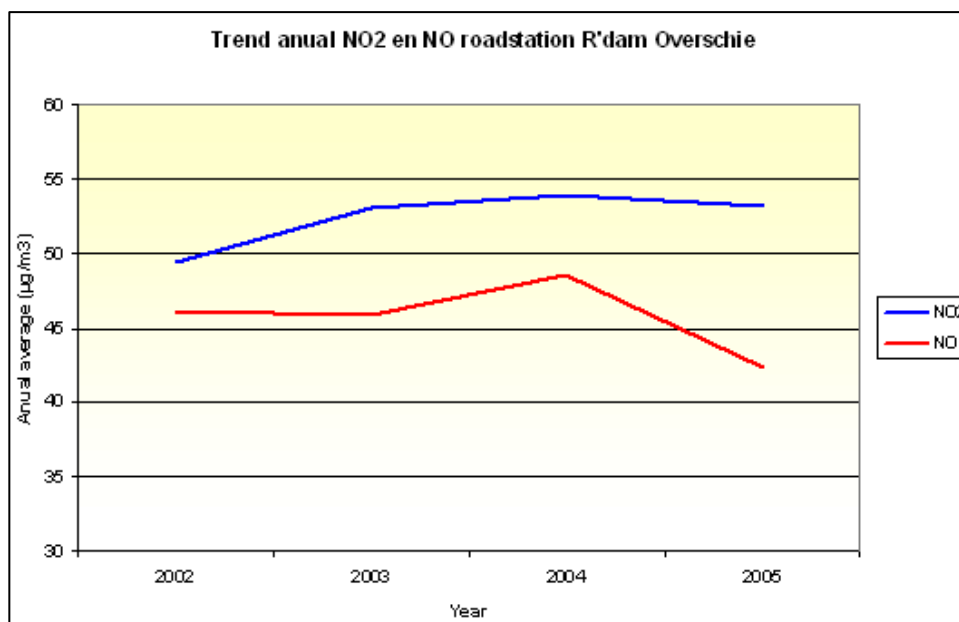


(Source: Udo Lambrecht, *Findings in Germany*, IFEU)

Figure 106 : Evolution globale des concentrations de NO₂ et NO sur un ensemble de sites trafic fortement urbanises (lander de Rhenanie-du-Nord-Westphalie)

Sur un ensemble de sites trafic fortement urbanises localises dans le lander de Rhenanie-du-Nord-Westphalie, des tendances globales  la baisse des niveaux de NO mais  la stagnation des niveaux de NO₂ sont mises en evidence (Figure 106). Pour toutes les annees de 1990  2005, le niveau moyen de NO₂ est superieur  la valeur sanitaire de 40 µg/m³ en moyenne annuelle. Cette problematique n'est donc pas cantonnee  quelques sites trafic.

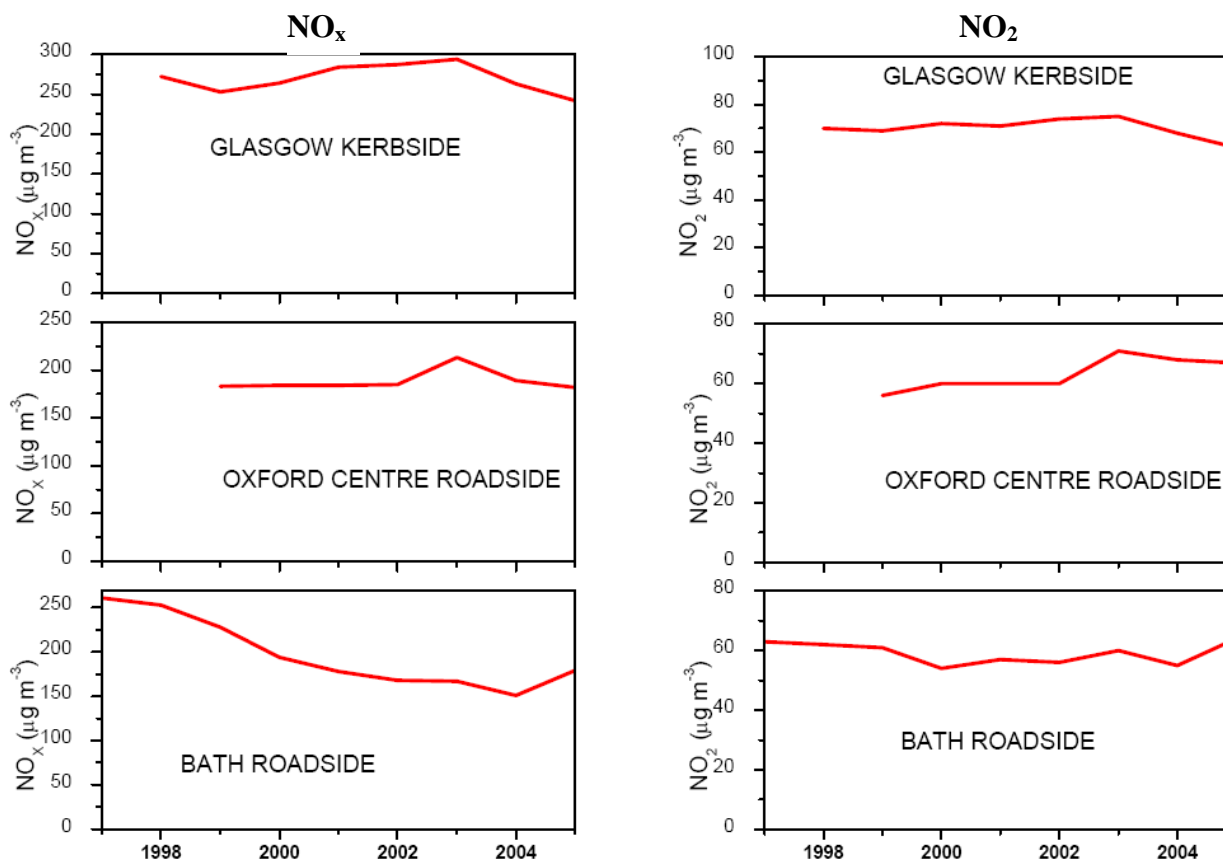
Comme le montre la Figure 107 suivante, la problematique de l'evolution des niveaux de NO₂ n'epargne pas le site trafic *Overschie* de Rotterdam (Pays-Bas), avec une tendance observee  l'augmentation de 2002  2005, et  la stagnation si l'on considere la periodes plus courte de 2003  2005, et la encore des niveaux superieurs  la valeur sanitaire de 40 µg/m³ en moyenne annuelle.



(Source : R Gense, *Direct NO₂ emissions: state of knowledge and consequences*, DCMR)

Figure 107 : Evolution des concentrations de NO₂ et NO sur le site trafic Overschie de Rotterdam

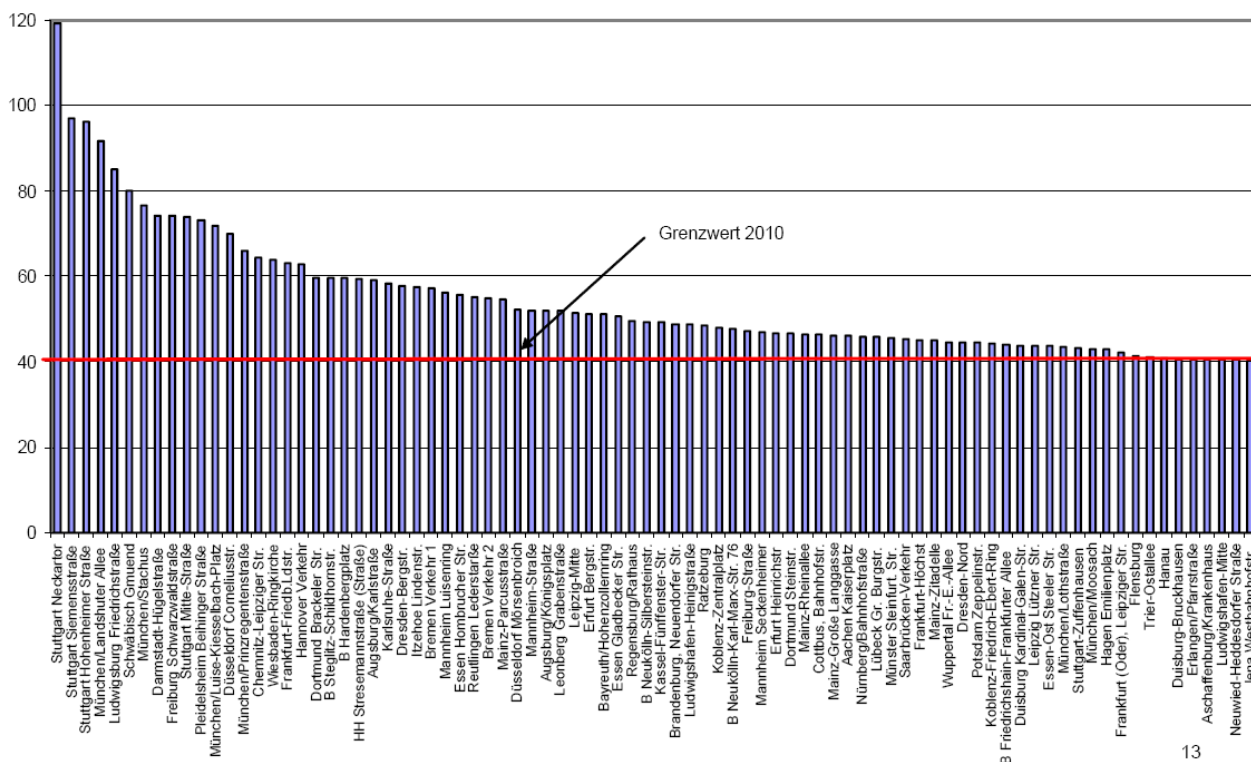
Des tendances similaires aux précédentes sont observées sur 3 sites trafic britanniques (Figure 108), avec une stagnation voire une légère augmentation des concentrations de NO₂, et des niveaux systématiquement supérieurs à la valeur sanitaire de 40 µg/m³ en moyenne annuelle.



(Source: D Carslaw, *Direct NO₂ in the UK: evidence from ambient measurements*, ITS)

Figure 108 : Evolution des concentrations de NO₂ et NO_x sur trois sites trafic du Royaume-Uni (Glasgow, Oxford, Bath)

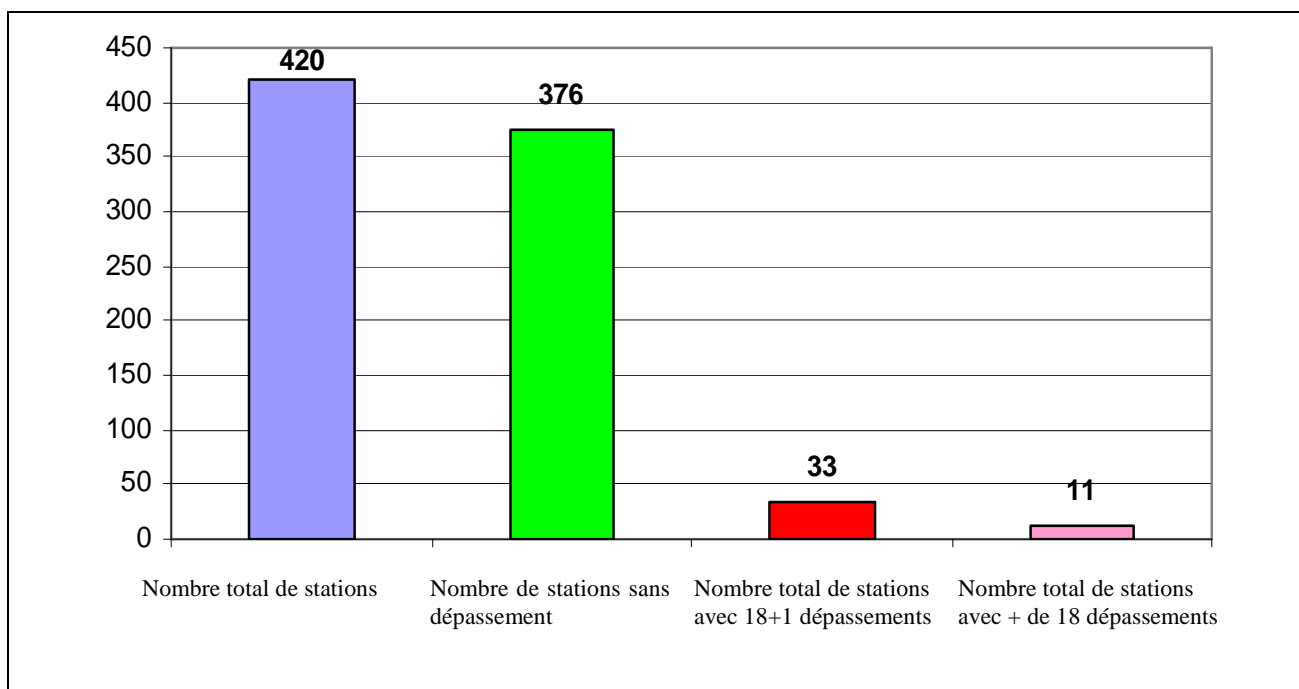
Les dépassements des valeurs limites de qualité de l'air pour le NO₂ fixées à l'horizon 2010 ne sont pas des évènements isolés, puisqu'à titre d'exemples dans les Figures 109 et 110, plusieurs stations allemandes ont recensé en 2005 des dépassements de la valeur limite de 40 µg/m³ en moyenne annuelle, et en 2006 des dépassements de la valeur limite horaire de 200 µg/m³.



Source: IFEU with data from UBA/Länder

(Source: U Lambrecht. *Legislation and future requirements for NO_x reduction*, BMU)

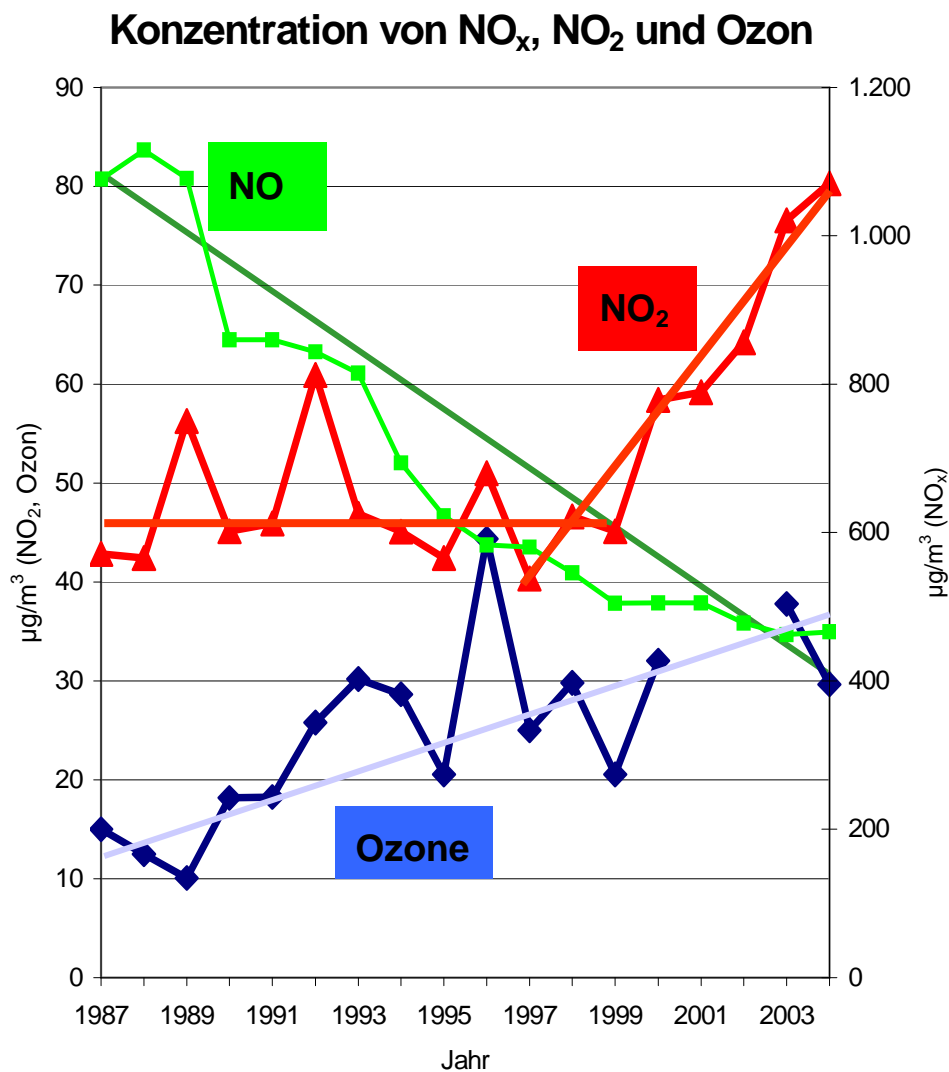
Figure 109 : Allemagne : Dépassements en 2005 de la valeur limite en moyenne annuelle de 40 µg/m³, à ne pas dépasser au 1^{er} janvier 2010



(Source : A Friedrich. *NO₂ and Post Treatment Problems in Germany*, UBA)

Figure 110 : Allemagne : Dépassements en 2006 de la valeur limite horaire de 200 µg/m³, à ne pas dépasser plus de 18 fois au 1^{er} janvier 2010

Comme évoqué précédemment, plusieurs éléments explicatifs sont avancés dans la tendance à la stagnation des niveaux de NO₂ en proximité du trafic, dont le rôle de la chimie atmosphérique et notamment de la réaction de titration du monoxyde d’azote par l’ozone (O₃ + NO → NO₂ + O₂). L’évolution des moyennes annuelles de NO, NO₂ et O₃ a été mesurée entre les voies de l’A4 en Allemagne (Figure 111). Une diminution de NO d’environ 60 %, une augmentation de l’ozone d’un facteur 2 à 3 (et de seulement 20 % depuis 1999), une stagnation du NO₂ avant 1999 et une augmentation d’un facteur 2 depuis 1998, sont rapportées. Les concentrations d’ozone seul ne suffisent pas à expliquer l’augmentation observée de NO₂ depuis 1998. Ces résultats suggèrent dans ce cas un rôle de l’augmentation des émissions de NO₂ des véhicules.



(Source : A Friedrich. NO₂ and Post Treatment Problems in Germany, UBA)

Figure 111 : Allemagne : Evolution des concentrations de NO, NO₂ et O₃ en proximité de l’A4, entre 1987 et 2003

Synthèses d'études anglaises sur la responsabilité des émissions primaires de NO₂ du trafic dans la pollution atmosphérique au NO₂

Des études anglaises menées par l'Institute for Transport Studies (Université de Leeds) et une expertise de l'Air Quality Expert Group (AQEG) ont investigué la responsabilité des émissions primaires de NO₂ du trafic. Une synthèse des principaux travaux est présentée ci-après.

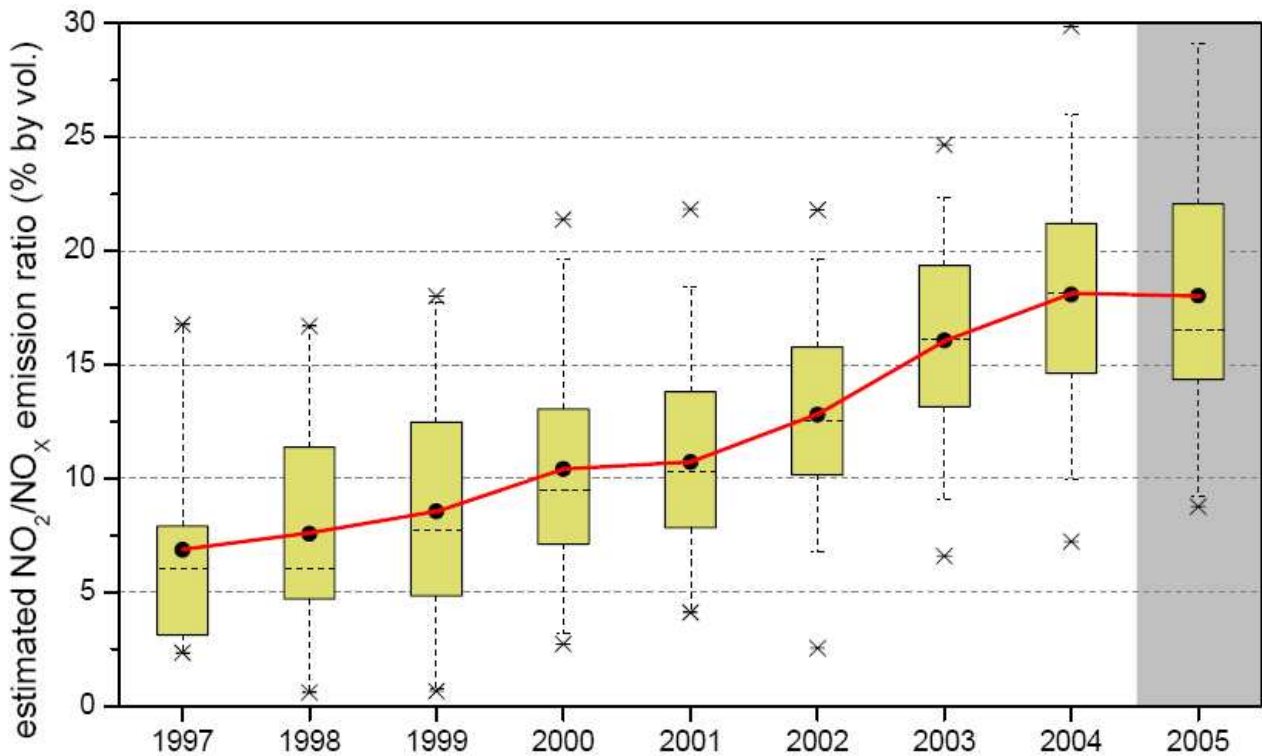
Evidence of an increasing NO₂/NO_x emissions ratio from road traffic emissions. (D.C.Carslaw, 2005)

Cette étude fait suite à des premiers travaux sur l'évolution des concentrations de NO et NO₂ à Londres, intégrant les résultats de plusieurs stations de mesures sur plusieurs années. Ces premiers travaux ont mis en évidence une évolution inattendue des concentrations de NO₂ par rapport aux prévisions des modèles de calcul. Compte tenu de ces résultats, des effets sanitaires connus du NO₂ et des probables dépassements de la valeur limite de qualité de l'air pour 2010, des travaux complémentaires ont été lancés.

Leur objectif est d'expliquer l'évolution des concentrations de NO₂ qui se compose d'une part de NO₂ « primaire » issu directement des gaz d'échappement automobile et d'autre part de NO₂ « secondaire » issu de multiples réactions chimiques mettant en jeu les éléments NO, O₃, et également HC, aldéhydes en utilisant un modèle chimique simple contraint.

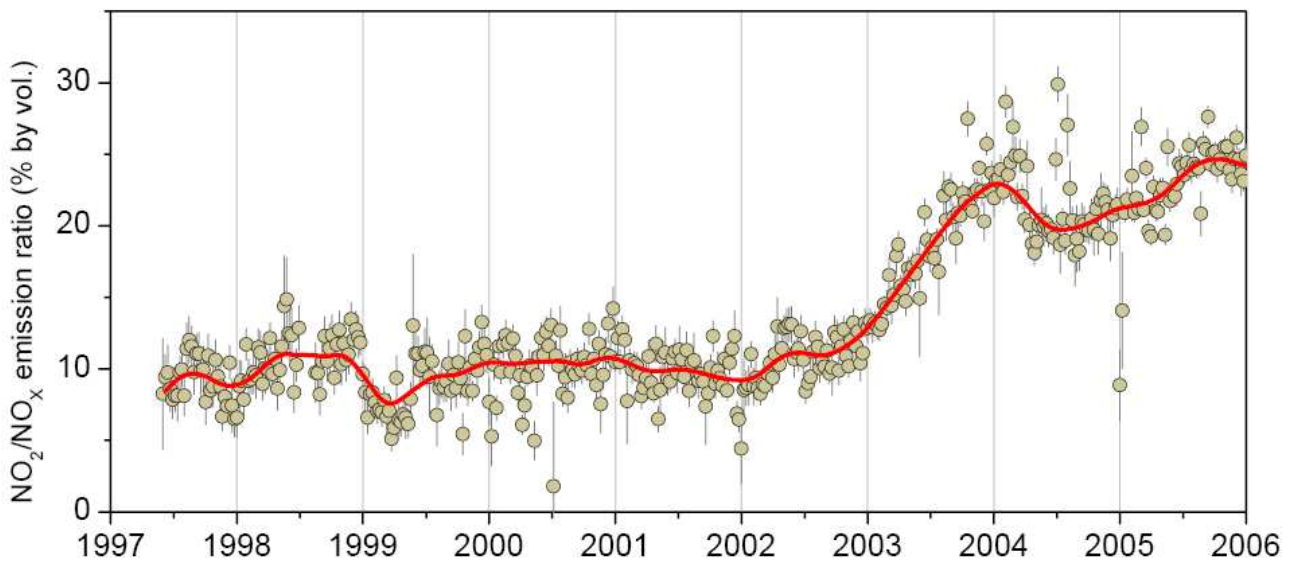
Les concentrations de polluants sont issues de 36 stations de mesures à différents endroits de Londres (centre, périphérie, bord de route, fond). L'auteur a utilisé plusieurs traitements statistiques des données d'évolution des concentrations de NO et NO₂ (test de Mann-Kenda, méthode de Sen). Il utilise également une méthodologie spécifique visant à comparer la concentration de NO₂ global issu de modèle d'équilibre NO/NO₂/O₃ + NO₂ primaire et celle mesurée instantanément (Carslaw D, Beevers S, Development of an urban inventory for road transport emissions of NO₂ and comparison with estimates derived from ambient measurements). La méthode est la suivante : hypothèse que les NO₂ et NO_x viennent du transport. Les concentrations de NO₂ proviennent soit de la réaction de titration NO+O₃, ou directement du véhicule. Il y a également une contrainte qui suppose que la différence entre la concentration horaire en NO_x de fond et celle en NO_x mesurée à proximité du trafic est due aux véhicules circulant sur la route à coté de la station. Par ailleurs, un jeu d'équation de réaction chimique impliquant NO, NO₂ et O₃ est utilisé. En considérant différentes valeurs de ratio NO₂/NO_x du trafic et le temps nécessaire à la réaction NO+O₃ => NO₂ + O₂, le meilleur choix de concentration horaire NO₂ est comparé à la mesure en minimisant au maximum l'écart. Cette méthode suppose que l'incrément de [NO₂] au dessus du niveau de fond est contrôlé par la disponibilité de l'O₃ et par les émissions de NO₂ directes. La formation de NO₂ par d'autres voies (HC) est supposée négligeable.

Cette étude montre une augmentation des concentrations de NO₂ et surtout du rapport NO₂/NO_x de façon statistiquement significative. En complément, l'origine de ces résultats est recherchée. La mise en place de filtres à particules catalysés sur les bus londoniens explique en partie ces résultats, ainsi que la réduction du trafic de véhicules particuliers par ailleurs.



(Source: D Carslaw, *Direct NO₂ in the UK: evidence from ambient measurements*, ITS)

Figure 112 : Tendance du ratio NO₂/NO_x à l'émission sur Londres



(Source: D Carslaw, *Direct NO₂ in the UK: evidence from ambient measurements*, ITS)

Figure 113 : Tendance du ratio NO₂/NO_x à l'émission (moyennes hebdomadaires) sur Marylebone Road

L'auteur confirme que le ratio NO₂/NO_x augmente et que la valeur limite de qualité de l'air du NO₂ ne sera pas respectée en 2010. Il indique également le manque de données d'émissions unitaires des différentes technologies.

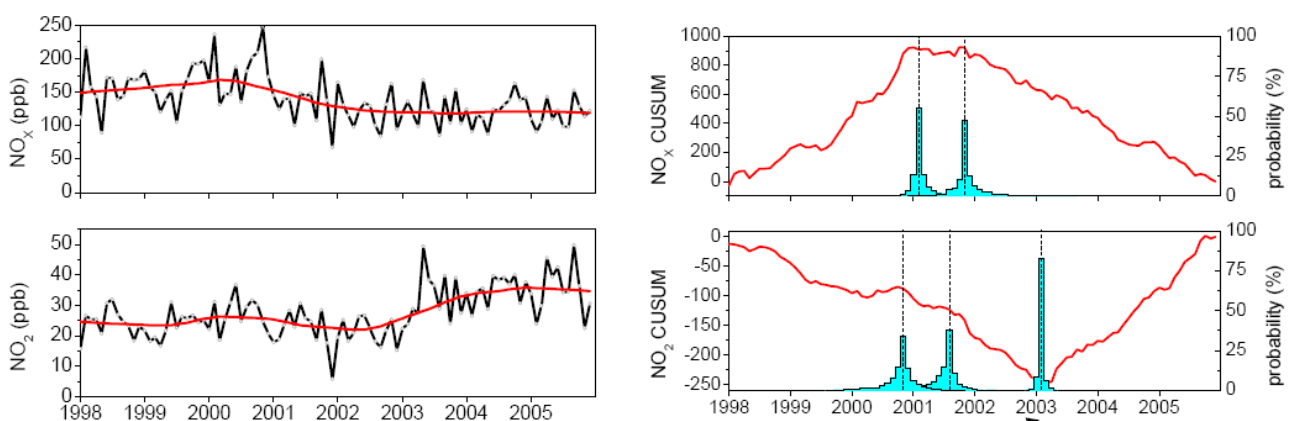
Detecting and characterising small changes in urban nitrogen dioxide concentrations (D C Carslaw, N Carslaw, 2007)

La détection et la quantification de l'amplitude des variations des concentrations des polluants atmosphériques en zone urbaine est difficile en raison de l'influence de la météorologie et de la chimie atmosphérique.

L'objectif de cette étude est de détecter et quantifier les variations des concentrations de NO₂, en zone urbaine, sur des séries temporelles en utilisant une approche modélisée de façon non-paramétrique.

Les concentrations moyennes horaires de NO_x et NO₂ de 20 stations (de proximité et de fond) londoniennes ont été analysées sur la période du 1^{er} janvier 2000 au 31 décembre 2005 ; prenant également en compte les données de trafic et les données météorologiques. Des modèles additifs généralisés (GAM), qui sont une extension non-paramétrique des modèles linéaires généralisés, ont été utilisés.

La méthode mise en œuvre a permis de mettre en évidence, sur tous les sites, une augmentation soudaine des concentrations de NO₂, comme illustré dans la Figure 114, alors que les variations de NO₂ n'auraient pas été visibles avec un traitement des données brutes.



(Source: D Carslaw, *Direct NO₂ in the UK: evidence from ambient measurements*, ITS)

Figure 114 : Mise en évidence d'une modification soudaine de l'évolution des concentrations de NO₂ (technique Cumulative Sum) sur Marylebone Road

La plupart des changements s'est produit pendant la dernière moitié de 2002 et au début de 2003 et très peu de points de changement sont observés avant 2002. Cette observation suggère une cause commune.

Les principaux facteurs avancés pour expliquer cette augmentation brutale des concentrations de NO₂ sont l'augmentation de l'utilisation des filtres à particules sur les véhicules diesel et leur catalyse d'oxydation (CRT, continuously Regenerating Trap), et principalement les bus équipés de ce système dont la proportion est passée de 39% à 79% entre 2002 et 2004.

On notera que le site de Marylebone Road, de part ses caractéristiques, est particulièrement approprié à la mise en évidence d'un lien de causalité entre le signal d'augmentation brutale des concentrations de NO₂ et le trafic de bus. En effet, ce site localisé au centre de Londres supporte la 5^{ème} plus grande flotte de bus du Royaume-Uni, avec des niveaux de concentration en NO₂ très élevés (en 2005 : 219 µg/m³ en moyenne annuelle et 2532 concentrations horaires supérieures à 200 µg/m³).

DEFRA draft report - Trends in Primary Nitrogen Dioxide in the UK (Air Quality Expert Group, 2006)

Contexte

Ce rapport est produit par le groupe d'experts qualité de l'air mis en place en 2001 au Royaume Uni pour apporter un avis scientifique indépendant en matière de qualité de l'air et notamment sur les polluants à étudier dans la « Stratégie Qualité de l'Air ». Il fait suite à un premier rapport de l' « Air Quality Expert Group » (AQEG) « Nitrogen Dioxide in the United Kingdom » qui comportait une analyse de l'évolution des concentrations moyennes annuelles du NO₂ et des NO_x jusqu'en 2001. Dans ce premier document, la concentration des oxydes d'azote diminue significativement en milieu urbain depuis 1990 en association avec une baisse des émissions dues au trafic routier. Bien que la concentration en NO₂ diminue également, cette diminution est beaucoup plus faible que celle observée pour le NO, par ailleurs le rapport NO₂/NO_x augmente.

Cette augmentation beaucoup plus importante que ce qui était attendu, a donné lieu à diverses hypothèses :

- une augmentation des émissions de NO₂ à l'échappement en lien avec la diésélisation du parc automobile,
- une augmentation des émissions de NO₂ due à l'utilisation de technologies telles que le filtre à particules installé sur les bus Londoniens,
- une augmentation de la concentration en ozone, conduisant à l'augmentation de l'oxydation du NO en NO₂.

Dans ce premier rapport, des zones de dépassement de l'objectif de qualité en moyenne annuelle étaient identifiées à proximité des voies, spécialement à Londres. Cette augmentation du rapport NO₂/NO_x à proximité des voies était jugée préoccupante.

Cette évolution s'est poursuivie et les mesures effectuées sur 6 sites de fond urbain entre 1993 et 2005 ainsi que sur 8 sites trafic (1998-2005) confirment la tendance. En dépit de la réduction des émissions en oxydes d'azote, l'objectif de qualité du NO₂ en moyenne annuelle pourrait ne pas être respecté sur certains sites en 2010.

Objectifs

Au vu de ces évolutions et des difficultés futures à respecter les objectifs de qualité du NO₂ il a été demandé au groupe d'expert qualité de l'air :

- d'examiner les émissions en NO_x issues du trafic automobile, et plus particulièrement la fraction émise sous forme de NO₂,
- d'examiner les effets des différentes technologies d'abattement sur le pourcentage de NO₂ directement émis à l'échappement (NO₂ primaire) et les futures évolutions dans les ratios d'émission,
- d'analyser les données issues des réseaux de surveillance de la qualité de l'air pour déterminer l'étendue de l'évolution du rapport NO₂/NO_x observé sur certains sites en moyenne annuelle dans un premier temps et en moyenne horaire ensuite,
- d'utiliser la modélisation pour déterminer si l'évolution du rapport NO₂/NO_x est à attribuer à une augmentation des émissions en NO₂ primaire et si oui quelle est l'origine de cette augmentation.
- d'examiner quelles autres sources pourraient être à l'origine de cette évolution, comme par exemple, une augmentation de la concentration de fond en ozone.

Matériels et méthodes

Ce rapport passe en revue des informations existantes sur les émissions des véhicules et les stations de surveillance de la qualité de l'air. Il intègre également les résultats produits par différents modèles, ceci afin d'essayer d'identifier l'origine de l'augmentation du rapport NO₂/NO_x. Il fait un état de l'art des connaissances dans le domaine des émissions de NO₂/NO_x à l'échappement, synthèses de campagnes de mesures du NO₂ et des NO_x réalisées en Grande Bretagne, modélisation.

Principaux résultats

Les émissions de NO₂ primaire

Jusqu'à présent le pourcentage de NO₂ primaire (f-NO₂, dans la suite du résumé) était estimé dans une fourchette de 0 à 10%, et de l'ordre de 5%. Ce pourcentage est issu d'un petit nombre de mesure sur des véhicules comportant des systèmes de traitement des gaz d'échappement assez simples et se pose la question de la représentativité de ce pourcentage.

Diverses études ont été effectuées afin de préciser ce ratio, au Royaume Uni et dans divers autres pays Européens.

La principale difficulté rencontrée est l'absence de protocole standardisé d'échantillonnage et de mesure du NO₂. Le protocole le plus utilisé est basé sur un échantillonnage des gaz d'échappement dilués dans des sacs de prélèvement et analyse. Hors il s'avère que le NO₂ est instable et le pourcentage NO/NO₂ peut évoluer. La dilution du gaz à l'échappement peut par ailleurs introduire divers biais. Certaines méthodes de mesure apparaissent par ailleurs plus adaptées.

Émissions de f-NO₂ en fonction des véhicules

Toutefois, les mesures effectuées sur différents véhicules vont toutes dans le même sens.

Pour les véhicules essences Euro 3, le f-NO₂ peut être considéré au voisinage de 5% (2%-10%), quelle que soit la technologie.

Pour les véhicules passagers diesel, ce rapport est bien plus élevé. Une fourchette assez large de 20% à 70% se dessine en fonction des véhicules et des cycles de conduite pour Ricardo (2003). Une fourchette plus large est proposée dans l'étude menée par TNO (Gense et al., 2006) pour les véhicules diesel : 5% - 80% avec un taux de NO₂ plus important pour les véhicules Euro 3 et Euro 4.

Le f-NO₂, le plus élevé, est identifié pour les véhicules diesel équipés des systèmes de catalyse d'oxydation très réactifs.

Les taxis Londoniens auraient des f-NO₂ de l'ordre de 7% (mesure sur 2 taxis) et à Londres également, les véhicules de livraison Euro 3 auraient des f-NO₂ compris entre 22 et 38%.

Pour les véhicules lourds, l'étude TRL TRAMAQ (Latham et al., 2004) propose une fourchette de 0%-50% avec 70% des véhicules compris entre 8% et 18% et une valeur médiane de 13%.

Une étude mise en place par la Société de transport londonienne TfL sur ces bus révèle un f-NO₂ de l'ordre de 45% pour ses bus obéissant à la norme Euro III et équipés d'un filtre à particules. Le rapport est plus faible pour les Euro IV (environ 10%).

Évolution du parc automobile

La proportion de véhicules diesel au Royaume Uni devrait continuer à croître jusqu'en 2010 et se stabiliser. De l'ordre de 24% des ventes en 2002, les véhicules diesel devraient atteindre 42% des ventes en 2010.

Les véhicules diesel représentent 90% des véhicules lourds. L'installation de filtre à particules sur ces véhicules se développe même si le système n'est pas encore obligatoire et en 2005, les véhicules équipés de filtre à particules représentent 2,7% des véhicules en circulation.

Dans le cas des bus Londoniens, la flotte est équipée de filtres à particules à 93% en 2005.

Comparaison des émissions estimées en NO₂ primaires et des concentrations en NO₂ mesurées sur huit sites trafic.

Les nouveaux rapports f-NO₂ ont été évalués en relation avec les concentrations mesurées pour le centre de Londres. Une bonne corrélation est mise en évidence entre l'augmentation estimée des émissions du NO₂ primaire et l'augmentation des concentrations mesurées dans les sites de proximité.

Les enseignements de la mesure des concentrations ambiantes de NO₂

Le suivi de la qualité de l'air à Londres, de 1998 à 2005, montre une augmentation plus importante que prévue du rapport NO₂/NO_x pour 44 sites de proximité et 24 des 28 sites de fond urbain.

Des augmentations ont également été observées pour certains sites de proximité automobile extérieurs à Londres ainsi que pour certains sites de fond urbains.

Il est à noter toutefois que pour un certain nombre de site, aucune tendance claire n'a pu être observée.

Aucune explication rationnelle n'a pu être apportée face à ces différences de comportement par manque de données sur les émissions des véhicules spécifiques à ces territoires.

Des différences similaires ont été observées entre les sites, au niveau des moyennes annuelles et des moyennes horaires.

Utilisation de la modélisation pour établir un lien entre l'augmentation des émissions directes de NO₂ et les concentrations ambiantes de NO₂

Différents modèles (5) ont été utilisés afin d'expliquer le comportement du NO₂.

Tous les modèles convergent pour montrer qu'une augmentation de 5% du NO₂ primaire sur la période 2002 – 2005 peut expliquer l'évolution des concentrations en NO₂ mesurées.

Cette augmentation peut être due à l'augmentation des véhicules diesel Euro 3 dans le parc automobile, véhicules équipés de catalyseurs d'oxydation, et / ou à l'augmentation du nombre de véhicules à Londres équipés de filtres à particules.

Il est difficile d'attribuer l'augmentation de la concentration en NO₂ uniquement à la pénétration des véhicules diesel Euro dans le parc automobile, cette augmentation n'étant pas observée sur tous les sites de mesures extérieurs à Londres.

La sensibilité particulière de Londres aux émissions de NO₂ primaires, en raison de sa taille et de la forte densité des émissions est également évoquée. Toutefois les concentrations en NO₂ n'augmentent pas dans toutes les grandes agglomérations anglaises.

Une analyse statistique des observations effectuées sur le site de mesure de Marylebone, site pour lequel des concentrations élevées et croissantes en NO₂ ont été relevées de 1998 à 2005, et de la pénétration progressive du filtre à particules dans la flotte de bus Londonien montre que l'introduction du filtre à particules apporte une explication plausible à l'évolution de la concentration en NO₂. Sur ce site en effet, un nombre de bus croissant est introduit de 2000 à 2005, progressivement équipés de filtres à particules.

Le suivi des particules sur ce même site montre une très forte diminution de la concentration des PM_{2,5} (particules fines < 2,5µm) et une diminution plus faible de la concentration des particules plus grossières, ceci également parallèlement aux observations précédentes.

Les particules grossières pourraient être un indicateur du trafic croissant des bus sur le site de mesure.

D'autres hypothèses ont également été étudiées telles que l'augmentation de la concentration de fond de l'ozone et ont été éliminées. En effet, le suivi des concentrations en ozone de 2002 à 2005, période qui a vu le rapport NO₂/NO_x évoluer le plus fortement, n'a pas mis en évidence une augmentation de la concentration en ozone permettant d'expliquer le phénomène.

Il n'est pas possible d'exclure l'émission directe d'oxyde nitreux, mais l'émission de NO₂ primaire semble être une explication plus plausible. Toutefois une étude approfondie des émissions en oxyde nitreux est à envisager, ce composé pouvant contribuer à l'évolution de la concentrations en particules (PM_{2,5}-PM₁₀).

Le groupe d'expert qualité de l'air considère qu'un changement dans le pourcentage NO₂/NO_x, directement à l'émission, est la meilleure hypothèse pour expliquer l'évolution des concentrations en NO₂ et NO_x à Londres entre 2002 et 2005. Cette hypothèse est fortement appuyée par les mesures faites à l'échappement sur les véhicules diesel Euro 3, équipés de catalyseurs d'oxydation, ainsi que sur les véhicules lourds équipés de filtres à particules.

Perspectives d'évolution des concentrations en NO₂

La modélisation des concentrations en NO₂, en utilisant les émissions de NO₂ primaires évaluées entre 2004 et 2010 met en évidence une augmentation des concentrations en NO₂ pouvant conduire à des dépassements de l'objectif de qualité en moyenne annuelle de 40µg/m³.

Cette augmentation pourrait toutefois être compensée par la diminution des émissions de NO_x. Il est difficile d'affiner ce résultat, en raison des incertitudes associées aux émissions de NO₂.

Le groupe d'expert qualité de l'air recommande un inventaire spécifique des émissions de NO₂, mis à jour régulièrement, pour faciliter la modélisation des concentrations futures en NO₂.

Annexe 10 : Effets sanitaires du dioxyde d'azote

A l'exception des éléments explicitement signalés, l'annexe 10 est une adaptation synthétique en français du texte de l'OMS relatif au dioxyde d'azote et issu de l'ouvrage « Air Quality Guidelines, Global Update 2005 » (OMS, 2006, p.333-394). Les équivalences présentées entre µg/m³ et ppm sont celles indiquées par l'OMS.

Cinétique et métabolisme

70 à 90% du dioxyde d'azote inhalé est absorbé au niveau du tractus respiratoire, ce taux d'absorption étant exacerbé suite à des exercices physiques (Wagner H-M., 1970 ; Bauer MA et al., 1986). Une part non négligeable du dioxyde d'azote inhalé est éliminée au niveau du nasopharynx (environ 40-50% chez le chien et le lapin) ; aussi, l'exercice accentuant la respiration par voie buccale, une distribution augmentée de dioxyde d'azote dans les parties basses du tractus respiratoire peut alors être attendue (US-EPA., 1993 ; Advisory Group on the Medical Aspects of Air Pollution Episodes, 1993 ; Berglund M. et al., 1993 ; Wagner H.M., 1985 ; VDI, 1985).

Les études de modélisation mathématique montrent qu'une exposition maximale des tissus du tractus respiratoire (parties basses) au dioxyde d'azote est prévisible à la jonction des voies respiratoires et de la région d'échange des gaz dans les poumons chez l'homme, le rat, le cochon d'Inde et le lapin. Lorsque les volumes courants inhalés augmentent (exercice physique par exemple), la dose distribuée au niveau de la région d'échange de gaz augmente substantiellement plus qu'au niveau des voies respiratoires (Miller F.J. et al., 1982 ; Overton J.H., 1987).

Des études expérimentales ont montré que le dioxyde d'azote ou ses sous-produits peuvent être rémanents dans les poumons sur des périodes prolongées. Des acides nitreux et nitriques ou leurs sels ont été observés dans le sang et les urines après exposition au dioxyde d'azote (US-EPA, 1993 ; Berglund M. et al., 1993 ; VDI, 1985 ; Wagner H.M., 1985).

Synthèse d'études expérimentales (animal, tests in vitro)

Le dioxyde d'azote exerce divers effets biologiques sur les animaux exposés expérimentalement, tels que des effets sur le métabolisme, la structure, la fonction et l'inflammation pulmonaire, et sur les défenses immunitaires contre les infections pulmonaires. Cependant, à cause des différences inhérentes entre les espèces mammifères (capacité d'inactivation du dioxyde d'azote par exemple), on ne peut conclure avec exactitude quant à la survenue de ces effets suite à l'exposition chez l'Homme.

Les études animales actuellement disponibles permettent d'identifier des effets toxiques qui pourraient survenir chez l'Homme. Toutefois la déduction avec un certain niveau de confiance des effets réellement causés par des doses inhalées ou des concentrations spécifiques de dioxyde d'azote se révèle très complexe.

Métabolisme pulmonaire

Sauf exceptions, la plupart des études biochimiques sur le poumon ne montrent des effets qu'après une exposition aigue ou subchronique à des niveaux supérieurs à 3760 µg/m³ (2 ppm) (US-EPA, 1993 ; Berglund M. et al., 1993 ; Advisory Group on the Medical Aspects of Air Pollution Episodes, 1993). L'effet observé sur le métabolisme lipidique du poumon est une exception notable. En effet, la peroxydation lipidique est augmentée chez le rat exposé à des concentrations de 752 µg/m³ (0.4 ppm) (en continu pendant 18 mois) et 75 µg/m³ (0.04 ppm) (en continu pendant 9 mois), suivant l'indicateur utilisé (Sagai M. et al., 1984 ; Ichinose T. et al., 1983).

Les effets sur le métabolisme lipidique et antioxydant montrent un profil de réponse dépendant à la fois de la concentration et de la durée d'exposition (Ichinose T., Sagai M., 1982). Aux niveaux de dioxyde d'azote les plus élevés, sont fréquemment observés une induction de l'œdème pulmonaire, une augmentation du métabolisme antioxydant, une augmentation des enzymes pulmonaires associée à des lésions cellulaires, et des modifications au niveau des lipides pulmonaires.

Bien que ces altérations ne soient pas complètement comprises, elles pourraient être les signes précurseurs de lésions cellulaires, qui deviennent manifestes à partir d'expositions à des concentrations plus élevées ou sur des périodes plus longues (US-EPA., 1993 ; Berglund M. et al., 1993 ; Advisory Group on the Medical Aspects of Air Pollution Episodes, 1993 ; VDI, 1985 ; Wagner H.M., 1985).

Structure pulmonaire

Dans les régions alvéolaires et trachéobronchiales, des concentrations de 640 µg/m³ (0.34 ppm) résultent en la substitution des cellules épithéliales alvéolaires de type I et des cellules épithéliales ciliées par respectivement des cellules de type II plus « oxydo-résistantes » et des cellules bronchiolaires non ciliées (cellule de Clara). De plus, les cellules substituées présentent des altérations cytoplasmiques et une morphologie hypertrophique après une courte exposition (10 jours) à des concentrations supérieures à 940 µg/m³ (0.50 ppm), la significativité de ces altérations restant inconnue (US-EPA., 1993 ; Berglund M. et al., 1993 ; Advisory Group on the Medical Aspects of Air Pollution Episodes, 1993 ; Wagner H.M., 1985).

La répétition des expositions ainsi que leur durée modifient les réponses observées. Ainsi, une étude des lésions pulmonaires chez le rat (Rombout P.J.A. et al., 1986) où la dose totale, produit de la durée d'exposition et de la concentration, restait constante mais où chacun des deux termes variait a montré l'influence majeure des concentrations de dioxyde d'azote sur l'importance des métaplasies épithéliales. Pour ce qui concerne l'occurrence temporelle des effets, Evans et al. (Evans M.J. et al., 1975) ont observé la survenue d'hyperplasies épithéliales répétées sur une semaine, avec un pic vers le second jour. Rombout et al. (Rombout et al., 1986) ont montré que des modifications interstitielles induites par le dioxyde d'azote étaient encore présentes deux mois après l'arrêt d'une exposition d'une durée d'un mois.

Chez la souris, le rat, le chien et le singe, une exposition à long terme a mené à des modifications structurelles similaires à un emphysème, associé à un rétrécissement de la membrane des capillaires alvéolaires, une perte d'épithélium cilié et des augmentations de collagène pulmonaire. Une revue de rapports de recherche conduite par l'US-EPA (US-EPA, 1993) sur l'exposition au dioxyde d'azote et l'emphysème a conclu que les rapports étaient insuffisamment détaillés pour permettre un jugement indépendant sur la survenue ou non d'emphysèmes « de type humain ». Toutefois, trois études rapportent des éléments en faveur de l'existence d'emphysème « de type humain » à la suite d'une exposition au dioxyde d'azote à des niveaux bien supérieurs aux concentrations ambiantes (de 0,25 à 20 ppm selon les études).

Des études visant à localiser la déposition de collagène dans les poumons ont exposé des furets à 940 ou 18800 µg/m³ (0.5 ou 10 ppm) de dioxyde d'azote pendant une période journalière de 4 heures durant 8 ou 15 semaines. Une augmentation de la déposition de collagène a été identifiée dans la sous-muqueuse des bronchioles, bien que ce résultat n'ait une significativité statistique que pour le groupe exposé à 18800 µg/m³ (10 ppm) (Rasmussen R.E., 1994).

Fonction pulmonaire

Pour des expositions répétées à des concentrations élevées de dioxyde d'azote (1880 - 9400 µg/m³ soit 1 - 5 ppm), une certaine évidence se dégage en termes d'altérations de la mécanique respiratoire et de la fonction ventilatoire. Ces effets incluent une augmentation de la fréquence respiratoire (US-EPA, 1993 ; Berglund M. et al., 1993 ; Advisory Group on the Medical Aspects of Air Pollution Episodes, 1993 ; VDI, 1985), alors que des expositions subchroniques à des niveaux supérieurs à 1880 µg/m³ ont réduit la distensibilité pulmonaire et l'échange des gaz (US-EPA, 1993 ; Berglund M. et al., 1993 ; Advisory Group on the Medical Aspects of Air Pollution Episodes, 1993). L'effet de l'exposition aussi bien à 940 qu'à 18800 µg/m³ (0.5 ou 10 ppm) sur des particules traceuses de la clairance dans les voies respiratoires de furets durant le développement postnatal du tractus respiratoire a également été examiné. La clairance thoracique était réduite dans les deux groupes d'exposition, mais était significativement différente dans le groupe d'exposition à 940 µg/m³ (0.5 ppm) par rapport au groupe témoin exposé à de l'air « propre » (Rasmussen R.E., 1994).

Inflammation des voies respiratoires et réactivité

Le dioxyde d'azote est un radical libre et peut donc réduire les défenses anti-oxydantes des tissus, et ainsi causer des lésions et des réactions inflammatoires.

Les effets d'une exposition à court terme (24 heures) sur l'inflammation éosinophile des voies respiratoires et l'hypersensibilité bronchique ont été examinés chez des souris BALB/c sensibilisées à l'ovalbumine et exposées à 3760 µg/m³ (2 ppm) de dioxyde d'azote (Hussain et al., 2004). Une augmentation des lésions épithéliales, une réduction de l'expression des mucines ainsi qu'une augmentation du tonus basal des muscles lisses ont été observés. Bien qu'une légère augmentation des neutrophiles des voies respiratoires ait été détectée, aucune association entre exposition et, cellules éosinophiles des voies respiratoires ou augmentation de l'hypersensibilité bronchique n'a été mise en évidence.

A des concentrations supérieures, la réponse inflammatoire a été étudiée chez le rat exposé en continu par inhalation à 18800 µg/m³ (10 ppm) pendant 1, 3 et 20 jours, avec un focus particulier sur l'état d'activation des macrophages alvéolaires (Garn H. et al., 2003). Tandis que le nombre de cellules inflammatoires et la concentration totale de protéines dans le liquide de lavage bronchoalvéolaire étaient augmentés, le TNF-α était nettement réduit avec l'augmentation de la durée d'exposition. A l'inverse, les IL 10 et 6 et les protéines SOCS-3 (Suppressor Of Cytokine Signalling-3) étaient élevées. De plus, la stimulation in vitro par des lipopolysaccharides, de cellules issues de lavages bronchoalvéolaires a révélé une capacité réduite de production de TNF-α, IL 1β, et monoxyde d'azote, mais une transcription et libération nettement augmentée d'IL 10. De plus, des niveaux élevés d'IL 6, de récepteurs SRB (Scavenger Receptor de classe B) et d'ARNm de SOCS-3 ont été détectés dans les cellules issues de lavages bronchoalvéolaires chez des animaux exposés. Les analyses de macrophages alvéolaires hautement purifiés ont indiqué que les changements dans leur état d'activation étaient très probablement responsables des effets observés.

Défenses immunitaires

Plusieurs types d'études animales indiquent une augmentation de la sensibilité pulmonaire aux infections bactériennes et peut être virales (US-EPA., 1993 ; Berglund M. et al., 1993).

Le plus large ensemble de données a été collecté en utilisant un modèle d'infectiosité qui mesure les défenses antibactériennes totales des poumons de souris. Pour des expositions à long terme (6 mois), la plus faible concentration testée qui ait un effet était 940 µg/m³ (0,5 ppm) (Ehrlich R., Henry M.C., 1968). Après 3 heures d'exposition, la plus faible concentration testée qui ait un effet était 3760 µg/m³ (2 ppm) (Ehrlich R., 1977). L'exposition continue à des concentrations allant de 940 à 52640 µg/m³ (0,5 à 28 ppm) a conduit à des augmentations linéaires et concentrations-dépendantes de la mortalité liée à une infection pulmonaire (Gardner D.E. et al., 1997). Des études additionnelles ont montré que l'augmentation de la mortalité est fortement dépendante du régime d'exposition. La concentration apparaît comme un facteur plus important que la durée d'exposition dans l'augmentation de la susceptibilité aux infections.

Plusieurs données, dont ces dernières, montrent que les pics et profils d'exposition sont d'importants déterminants de la réponse (US-EPA., 1993 ; Graham J.A., 1987 ; Miller F.J. et al., 1987). Certaines études indiquent que plusieurs mois d'exposition à des niveaux d'environ 940 µg/m³ (0,5 ppm) peuvent augmenter la sensibilité aux bactéries et virus, et que des expositions aiguës à des niveaux plus élevés peuvent diminuer l'activité bactéricide au niveau des poumons et la fonction des macrophages alvéolaires.

En résumé, il est à noter que (US-EPA., 1993 ; Berglund M. et al., 1993 ; Advisory Group on the Medical Aspects of Air Pollution Episodes, 1993 ; VDI, 1985) :

- les effets du dioxyde d'azote sont davantage dus aux concentrations d'exposition qu'à la durée ou à la dose totale (C × T),
- il existe des différences de sensibilité entre les espèces étudiées,
- les concentrations effectives les plus faibles de dioxyde d'azote dépendent également du microorganisme pathogène utilisé dans l'étude,
- les faibles niveaux causent des effets uniquement après des expositions répétées.

Ces résultats chez l'animal, associés au modèle d'infectiosité et à d'autres études mécanistiques impliquent chez l'Homme une potentielle influence du dioxyde d'azote sur les défenses immunitaires (telles que les macrophages alvéolaires). Toutefois, la relation quantitative entre les niveaux de dioxyde d'azote entraînant des effets chez l'animal et chez l'Homme reste inconnue. Bien que de nombreuses études fournissent des éléments montrant l'existence d'effets sur l'immunité humorale et à médiation cellulaire, leur interprétation est complexe (US-EPA., 1993 ; Berglund M. et al., 1993).

Etudes in vitro

L'exposition de plasma sanguin humain à 26230 µg/m³ (13.95 ppm) de dioxyde d'azote a abouti à un déficit rapide en acide ascorbique, acide urique, et protéines à groupements thiol, ainsi qu'à une peroxydation lipidique et une déplétion en α-tocophérol (vitamine E) (Halliwell B. et al., 1992). Une autre étude a montré, pour des concentrations en dioxyde d'azote plus faibles (94-1880 µg/m³, soit 0.05-1.0 ppm), une déplétion des défenses anti-oxydantes, des acides urique et ascorbique dans les liquides de lavage bronchoalvéolaire chez l'homme (Kelly F.J., Tetley T.D., 1997). Plus récemment, une détérioration significative de la libération de radicaux superoxydes par les cellules isolées du lavage bronchoalvéolaire, a été mise en évidence pour des expositions de 1, 3 ou 20 jours chez le rat (18800 µg/m³ soit 10 ppm) (Ölker C. et al., 2004).

Des effets du dioxyde d'azote sur différentes cultures de cellules ont été décrits, tels que des lésions membranaires et une augmentation de la perméabilité membranaire, tout en rappelant la plus faible résistance des modèles utilisés par rapport à l'épithélium humain intact (Devalia J.L. et al., 1993).

Avec des systèmes physiologiquement plus pertinents, des concentrations de 200 à 800 µg/m³ (0.1 à 0.43 ppm) ont provoqué une inflammation dans des explants humains de muqueuse nasale en culture (Schierhorn K. et al., 1999). Les réponses pro inflammatoires précoces suivant une brève exposition à un niveau élevé de dioxyde d'azote (84600 µg/m³, soit 45 ppm) ont aussi été étudiées en utilisant des cellules de l'épithélium bronchique humain (Ayyagari V.N. et al., 2004). Les études par immunofluorescence ont confirmé la formation de 3-nitrotyrosine induite par le stress oxydatif. Les cellules exposées ont présenté des augmentations prononcées en nitrites (utilisés comme référence au monoxyde d'azote), IL 8, IL 1β et TNF-α. De plus, afin de simuler les conditions « inflammatoires » préexistantes de l'épithélium bronchique, telles qu'elles pourraient exister dans l'asthme ou dans d'autres pathologies d'hyperréactivité des voies respiratoires, les cellules ont été prétraitées avec différentes cytokines pro inflammatoires pendant 24 heures avant exposition au dioxyde d'azote. Ce prétraitement suivi de l'exposition au dioxyde d'azote a systématiquement accru la production de monoxyde d'azote et d'IL 8.

Effets sur la reproduction

Une étude récente a examiné les effets chez le rat adulte d'une exposition foetale aux émissions de moteurs Diesel contenant du dioxyde d'azote (1504 ou 188 µg/m³, soit 0,80 ou 0,10 ppm) avec ou sans particules (1,71 ou 0,17 mg/m³) sur le nombre de cellules testiculaires et sur la production quotidienne de sperme (Watanabe N. et al., 2005). Les rats adultes exposés aux émissions Diesel durant la période foetale ont présenté une réduction de la production quotidienne de sperme causée par un nombre insuffisant de cellules de Sertoli. Tous les groupes exposés ont présenté des réactions quasi identiques à l'inhalation, signifiant que la phase gazeuse incluait les toxiques responsables des effets observés ; ceux-ci n'ont pas été identifiés, bien que le dioxyde d'azote soit un composant majeur.

Autres effets (cancérogénèse, génotoxicité, tératogénèse, effets extrapulmonaires)

A ce jour, aucun effet en terme de tumeurs malignes ou de tératogénèse n'a été identifié dans la littérature (US-EPA, 1993 ; Berglund M. et al., 1993 ; Witschi H., 1988). Un nombre limité d'études de génotoxicité avec soit des méthodes in vitro, soit des méthodes in vivo et des concentrations élevées (exemple : 50000 µg/m³, soit 27 ppm) a produit des résultats mitigés (Victorin K., 1994). Des effets extrapulmonaires ont également été observés mais ne permettent pas une interprétation en terme de risques chez l'Homme (US-EPA, 1993). De nombreuses études examinant l'interaction du dioxyde d'azote avec d'autres polluants atmosphériques, principalement l'ozone, montrent que les effets sont soit dus à l'ozone seul, soit additifs, soit synergiques, suivant l'effet critique et le profil d'exposition (Rombout P.J.A. et al., 1986).

Conclusions

Globalement, des effets ont rarement été observés pour les expositions aiguës (heures) à de relativement faibles niveaux de dioxyde d'azote chez l'animal. Cependant, les expositions subchroniques et chroniques (semaines ou mois) pour ces niveaux causent une variété d'effets incluant des altérations du métabolisme, de la structure et de la fonction pulmonaire, des réactions inflammatoires et une hypersensibilité aux infections pulmonaires. Des altérations de type emphysème impliquant la destruction de la barrière alvéolaire ont été rapportées uniquement pour des concentrations très élevées (supérieures à 0,25 ppm). Les études toxicologiques à la fois in vitro et chez l'animal font apparaître un large potentiel d'effets sanitaires chez l'Homme. Toutefois, l'extrapolation quantitative, avec un degré de confiance suffisant, des concentrations toxiques de l'animal à l'homme reste à ce jour complexe.

Synthèse d'études d'exposition humaine contrôlée

Tout comme les études expérimentales réalisées chez l'animal ou in vitro, les études d'exposition humaine contrôlée se sont intéressées à différents paramètres couvrant différentes réactions possibles de l'organisme suite à une exposition au NO₂.

Fonction pulmonaire

Chez l'adulte en bonne santé ne présentant pas de pathologies respiratoires préexistantes, des concentrations supérieures à 1880 µg/m³ (1 ppm) sont nécessaires pour observer des modifications de la fonction pulmonaire (US-EPA, 1993 ; Berglund M. et al., 1993 ; Advisory Group on the Medical Aspects of Air Pollution Episodes, 1993 ; Bylin G. et al., 1985 ; Folinsbee L.J. et al., 1978 ; Linn W.S. et al., 1985 ; Salome C.M. et al., 1996 ; Stresemann E., Von Nieding G., 1980). Dans la mesure où ces concentrations ne sont quasiment jamais observées dans l'air ambiant, la plupart des études d'exposition contrôlée au NO₂ se sont concentrées sur des sujets présentant certaines pathologies respiratoires susceptibles d'accroître leur sensibilité au regard de telles expositions.

Ainsi, de nombreuses études ont été réalisées chez des personnes présentant de l'asthme, une broncho-pneumopathie chronique obstructive (BPCO) ou une bronchite chronique. Elles ont montré qu'une exposition à des niveaux plus modérés de NO₂ était susceptible chez ces sujets d'induire des modifications des paramètres de la fonction pulmonaire (FEV₁ : volume maximal expiré en 1s, CVF : capacité vitale forcée, et résistance des voies respiratoires, notamment).

Les asthmatiques semblent être les sujets les plus sensibles pour ce qui concerne ces paramètres, bien que les études disponibles ne permettent pas de conclure quant aux liens entre les effets observés d'expositions à court terme (30 min à 2 heures) d'une part et les symptômes et la gravité de l'asthme d'autre part. Cependant, aucune étude n'inclut les sujets les plus gravement atteints, que ce soit pour l'asthme ou l'hyperréactivité bronchique. Chez les sujets asthmatiques, le plus faible niveau d'exposition entraînant des modifications directes des paramètres de la fonction respiratoire confirmées par plus d'un laboratoire est de 560 µg/m³ (0,3 ppm) pendant 2h/2h30 (Roger L.J. et al., 1990 ; Bauer M.A. et al., 1986 ; Avol E.L. et al., 1989). Quelques études ont montré également des tendances non significatives à la modification de certains paramètres de la fonction pulmonaire à la suite d'expositions de plus courte durée (20 à 60 mn) à des niveaux plus faibles (188 et 230 µg/m³) (Folinsbee L.J. et al., 1978 ; Hazucha M.J. et al., 1983 ; Orehek J. et al., 1976). Cependant, on dénote un manque de cohérence au sein de ces résultats : ainsi des expositions de courte durée (1h/1h15) à des niveaux bien plus élevés (1 à 4 ppm) sur des sujets réalisant par intermittence une activité physique n'entraînent aucune modification de la fonction pulmonaire (Linn W.S., Hackney J.D., 1984 ; Linn W.S. et al., 1986 ; Linn W.S. et al., 1985), et certains résultats n'ont pu être répliqués avec des groupes de sujets différents au sein d'un même laboratoire (Roger L.J. et al., 1990 ; Morrow P.E., Utell M.J., 1989).

Chez les sujets atteints de BPCO, la même hétérogénéité des résultats est retrouvée.

Dans l'ensemble, la totalité des études disponibles à ce jour montrent que les effets sur la fonction pulmonaire de l'exposition au NO₂ à des concentrations similaires à celles observées dans l'air ambiant ne semblent pas pouvoir être rapportés à une relation concentration-réponse classique. De plus, les études sont difficilement comparables entre elles du fait de différences dans les méthodes mise en œuvre, et elles souffrent individuellement d'une faible puissance liée à la petite taille des échantillons étudiés.

Symptômes respiratoires

Aucune aggravation des symptômes respiratoires n'a été observée en deçà d'1ppm (1880 µg/m³) de NO₂, tant chez les sujets en bonne santé que les sujets asthmatiques. Chez les sujets en bonne santé, des symptômes ont été provoqués par des concentrations de 7520 µg/m³ (4ppm), sans que cet effet soit retrouvé chez des asthmatiques exposés à la même concentration (Linn W.S., Hackney J.D., 1984).

Réactivité bronchique

L'hyperréactivité bronchique est l'une des composantes majeure de la maladie asthmatique. De nombreuses études ont tenté d'évaluer l'impact de l'exposition au NO₂ sur la réactivité bronchique provoquée par différents stimuli (substances chimiques, stimuli physiques, allergènes....)

Chez des adultes volontaires en bonne santé, des concentrations supérieures à 1880 µg/m³ (1ppm) sont nécessaires pour observer des augmentations de la réactivité bronchique (US-EPA., 1993 ; Berglund M. et al., 1993). Ainsi, tout comme pour les paramètres de la fonction pulmonaire, de nombreuses études se sont concentrées sur les sujets présentant des pathologies respiratoires préexistantes, qui en dehors de toute exposition ont une réactivité bronchique plus élevée que les sujets exempts de ces pathologies.

Bien que les résultats souffrent là encore d'un manque de cohérence entre études, ou même entre les différentes conditions d'exposition au sein d'une même étude, les concentrations les plus faibles pour lesquelles des augmentations significatives de la réactivité bronchique ont été observées chez les sujets asthmatiques sont de 488 µg/m³ (0,26 ppm) (Bylin G. et al., 1988).

Pour ce qui concerne la potentialisation des allergènes par une exposition préalable au NO₂, des études ont montré que l'exposition préalable au NO₂ (800 µg/m³, 0,43 ppm et 500 µg/m³, 0,27 ppm, respectivement) augmentait la réponse de sujets asthmatiques à l'inhalation d'allergènes d'acariens ou de pollen (Tunnicliffe W.S. et al., 1994 ; Strand V. et al., 1997 ; Strand V. et al., 1998). Une étude visant à comprendre les mécanismes d'un tel effet de potentialisation a permis de montrer que l'exposition au NO₂ (500 µg/m³, 0,27 ppm pendant 30 mn) augmentait la réponse inflammatoire induite par les allergènes au niveau des bronches (Barck C. et al., 2002). Afin de se rapprocher des conditions d'expositions rencontrées dans la vie courante, où des expositions à des niveaux relativement élevés de NO₂ peuvent se produire, mais de façon ponctuelle et éventuellement répétée, une étude a utilisé un protocole d'exposition se rapprochant de ces conditions (Barck C. et al., 2005). Des individus présentant un asthme allergique ont été exposés un premier jour pendant 15 mn à 500 µg/m³ (0,27 ppm) de NO₂, puis le deuxième jour, ils étaient exposés deux fois 15 mn à la même concentration. Chez ces sujets, des niveaux élevés de protéine cationique éosinophile (associée à la réponse inflammatoire induite par les allergènes au niveau des bronches) ont été observés dans le sang et les crachats après exposition aux allergènes, sans toutefois que le nombre de neutrophiles (un autre paramètre associé à la réponse inflammatoire induite par les allergènes) ne soit augmenté.

Une étude a également exposé 20 sujets dans un tunnel routier où le niveau médian de NO₂ atteignait 313 µg/m³ (0,17 ppm) pendant 30 minutes (Svartengren M. et al., 2000). Quatre heures après cette exposition, les auteurs ont observé des augmentations des réponses asthmatiques à l'inhalation d'allergènes, des diminutions de la fonction pulmonaire, ainsi que la recrudescence des symptômes asthmatiques par rapport aux témoins non exposés à la pollution du tunnel. Cependant, il convient de souligner que dans ces conditions réelles, l'exposition au NO₂ s'accompagnait d'une exposition aux particules (100 µg/m³ de PM_{2,5}), et vraisemblablement à d'autres polluants tels que les COV et le CO.

Inflammation des voies respiratoires

La réalisation de bronchoscopies accompagnées du recueil de lavages broncho-alvéolaires à la suite d'expositions contrôlées permet d'évaluer les effets de l'exposition au NO₂ sur les voies respiratoires chez l'Homme.

Des niveaux élevés de NO₂ (5640 à 7520 µg/m³, soit 2 à 3 ppm) entraînent effectivement des augmentations de la cellularité des lavages broncho-alvéolaires, ainsi que de leur teneur en médiateurs de l'inflammation (US-EPA, 1993). Pour des niveaux d'exposition plus faibles, les réponses observées diffèrent selon les marqueurs étudiés, les sujets considérés (« sains » ou asthmatiques) et les conditions d'exposition (durée et fréquence d'exposition, présence de périodes d'exercice au cours de l'exposition). D'après ces études, la concentration la plus faible entraînant des variations significatives d'au moins un marqueur de l'inflammation semble être 1130 µg/m³ (0,6 ppm), pour des expositions à minima de 3h d'affilée, ou de 2h répétées deux fois au cours de 6 jours (Boushey H.A. et al., 1988 ; Frampton M.W. et al., 1989). Il est à noter que les concentrations de glutathion augmentent immédiatement (1h30 et 6h) après l'exposition au NO₂, pour ensuite revenir à la normale (Kelly F.J. et al., 1996), suggérant une réponse protectrice limitée dans le temps.

L'étude d'expositions répétées dans le temps à des niveaux plus faibles (2h tous les jours pendant 4 jours à 108 µg/m³, 0,06 ppm) entraîne une augmentation faible mais significative de la proportion de lymphocytes « natural killer » (Linn W.S. et al., 1985). Cependant, des expositions répétées à des niveaux bien plus élevés (2820 et 7520 µg/m³, soit 1,5 et 4 ppm) pendant 20 mn tous les deux jours durant 6 jours réduit le nombre de lymphocyte B et « natural killer », et altère le ratio CD4+/CD8+ (Morrow P.E. et al., 1992 ; Helleday R. et al., 1995).

Défenses immunitaires

Une étude a évalué les effets du NO₂ sur les défenses antivirales (Goings SA et al., 1989). Les sujets ont été exposés pendant 2h par jour à 1 à 3 ppm de NO₂ durant 3 jours, puis à un virus Influenza atténué. La petite taille de l'échantillon limitant drastiquement la puissance de l'étude, seule une tendance non significative à une augmentation de la sensibilité des personnes exposées à l'infection par le virus a pu être observée. Une autre étude a également observé une diminution de l'inactivation du virus Influenza par les macrophages alvéolaires à la suite d'une exposition pendant 3h à 1128 µg/m³ (0,6ppm) (Frampton MW et al., 1989).

Interaction du NO₂ avec d'autres polluants

Une augmentation de la réactivité bronchique a été observée chez des sujets « sains » pour des expositions successives au NO₂ (1130µg/m³, 0,6 ppm) puis à l'ozone (Hazucha MJ et al., 1994). Chez des sujets asthmatiques modérés, l'exposition conjointe au NO₂ (720 µg/m³, 0,38 ppm) et au SO₂ (7000 µg/m³) entraîne une augmentation de la réactivité bronchique qui est maximale 24h après l'exposition et se maintient jusqu'au jour suivant (Rusznak C et al., 1996 ; Devalia JL et al., 1994).

L'exposition aux émanations de moteurs diesel (ancienne technologie, ajout du groupe de travail) contenant 1000 ou 2700 µg/m³ de NO₂ (0,53 ou 1,44 ppm) et 100 ou 300 µg/m³ de PM10 entraîne une réponse inflammatoire au niveau des voies respiratoires, indiquée par différents marqueurs (Rudell B et al., 1996 ; Salvi SS et al., 2000). Il est à noter qu'une telle réponse n'a pas été retrouvée après des expositions uniques ou répétées à du NO₂ seul à des niveaux 8 à 40 fois plus élevés (Blomberg A et al., 1997 ; Blomberg A et al., 1999). Ainsi, si un effet additif ou de synergie du NO₂ dans la réponse inflammatoire ne peut être exclu, il est improbable dans les conditions utilisées ici que la réponse inflammatoire puisse être associée au NO₂ uniquement.

Une étude prise en compte par la synthèse de l'OMS (Gong et al., 2005) concerne l'inhalation simultanée de NO₂ (725 µg/m³, 0,4ppm) et de PM_{2,5} (environ 200 µg/m³) par des sujets âgés atteints de BPCO, avec en parallèle l'étude des effets de l'inhalation de PM_{2,5} et de NO₂ pris isolément. Cette étude a fait l'objet d'une analyse détaillée au sein du groupe de travail, qui est reprise ici en raison de l'intérêt de cette étude au regard de l'objet de la saisine.

Dans cette étude, l'exposition se fait dans une chambre individuelle. Les particules ambiantes sont concentrées à l'aide d'un concentrateur Harvard/EPA. Pour les expositions à l'air filtré, ou au NO₂ seul, l'air provenant du concentrateur et allant vers la chambre d'exposition passe au travers d'un filtre HEPA. Pour les expositions aux CAP, une proportion variable de l'air provenant du concentrateur passe également au travers du filtre HEPA, afin d'ajuster les niveaux de particules dans la chambre d'exposition. Ceux-ci sont mesurés au moyen d'un néphélomètre Data-RAM. Des échantillons sont collectés pendant l'exposition à l'aide d'un « multistage micro-orifice uniform deposit impactor » (MOUDI), afin de déterminer ultérieurement par gravimétrie et par spéciation les expositions intégrées sur la période d'exposition.

Le NO₂ est introduit dans la chambre d'exposition à partir d'une bonbonne munie d'un débitmètre, et sa concentration dans la chambre est mesurée en continu par chimiluminescence.

Les volontaires âgés sont recrutés parmi les volontaires d'études précédentes, et par petites annonces. 6 sujets « sains » (4 femmes et 2 hommes, âge moyen 68 ans) sont tout d'abord exposés, puis 18 sujets « BPCO » (9 hommes et 9 femmes, âge moyen 72 ans). Les sujets « BPCO » sont d'anciens gros fumeurs ayant arrêté de fumer depuis plus d'un an, présentant au moment de l'étude une toux chronique et/ou un essoufflement et une obstruction des voies respiratoires modérée à sévère. Les patients traités par bronchodilatateurs et corticostéroïdes ont poursuivi leur traitement pendant l'étude. Les sujets « sains » sont des sujets présentant une fonction pulmonaire normale, pas d'antécédents de tabagisme, ni de signes d'une maladie cardio-vasculaire.

Chaque sujet se reposait pendant 1h dans une pièce contenant de l'air pur, puis était ensuite exposé pendant 2h dans l'une des 4 situations suivantes :

- a- air filtré
- b- 0,4 ppm de NO₂
- c- CAP, principalement < 2,5µm, à environ 200µg/m³
- d- CAP et NO₂ simultanément

Chaque sujet a été exposé à chacune des 4 situations, avec au moins 2 semaines d'écart entre deux expositions. Pendant les 2h d'exposition, les sujets effectuaient 4 fois 15mn d'exercice physique modéré, entrecoupés de 4 fois 15 mn de repos.

Le rythme cardiaque ainsi que la saturation artérielle étaient mesurés en continu pendant l'exposition et pendant 4h après. La capacité vitale forcée (FVC), le volume forcé expiré en 1s (FEV₁), et le flux maximal à mi-expiration (MMEF) ont été mesurés par spirométrie immédiatement avant l'exposition, immédiatement après l'exposition, 4h et 22h après la fin de l'exposition. Les symptômes ont été recueillis par questionnaire standardisé toutes les 15 mn pendant l'exposition, et lors de chaque mesure par spirométrie, ainsi que la pression artérielle, le rythme cardiaque, et la saturation. Le rythme ventilatoire a également été recueilli pendant 1,5 min au cours des 5 dernières minutes des 2^{ème} et 4^{ème} périodes d'exercice pendant l'exposition. Le lendemain de l'exposition, des tests d'induction de l'expectoration, ainsi que des comptages cellulaires dans les crachats sont effectués.

Les analyses statistiques sont réalisées par ANOVA, en prenant en compte la répétition des mesures chez les sujets, et la présence de données manquantes pour certains sujets.

Les concentrations de particules mesurées à posteriori dans la chambre mettent en évidence la présence de particules ultrafines en quantités similaires dans les 4 conditions d'expositions (particules non filtrées par le filtre HEPA). Bien que des particules coarse soient générées à l'intérieur de la chambre dans les conditions a et b, le niveau de particules coarse est plus élevé dans les conditions c et d. De la même façon, des particules fines sont générées à l'intérieur de la chambre dans les conditions a et b ($10 \mu\text{g}/\text{m}^3$), tandis que les niveaux atteignent $170 \mu\text{g}/\text{m}^3$ dans les conditions c et d.

Dans les conditions a et c, les niveaux de NO₂ étaient proches de 40 ppb, correspondant aux niveaux dans l'air ambiant aux mêmes périodes, tandis que les niveaux atteignaient 400 ppb dans les conditions b et d.

Les paramètres de la fonction respiratoire, à l'exception de MMEF, ne sont modifiés significativement ni chez les sujets « sains », ni chez les sujets « BPCO », quelles que soient les conditions d'exposition. Le MMEF montre une diminution significative chez les sujets « sains » en lien avec l'exposition aux CAP, en prenant en compte un délai après l'exposition.

La saturation en oxygène diminuait légèrement mais significativement en lien avec l'exposition aux CAP.

La pression artérielle n'est pas affectée par les expositions. Le rythme cardiaque montre de légères augmentations significatives, plus élevées pour les conditions b, c et d que pour a.

La variation des symptômes déclarés ne diffère pas selon les expositions.

Les comptes cellulaires totaux dans les crachats ne sont pas affectés par les conditions d'exposition. Par contre, la proportion de cellules épithéliales columnaires est significativement diminuée, tant chez les sujets « sains » que chez les « BPCO » à la suite de l'exposition aux CAP.

Les diminutions de FEV1 et FVC montrent une relation dose-réponse significative en lien avec la teneur en sulfate des CAP dans les conditions d.

Les niveaux de polluants dans l'air ambiant au cours des 24h ayant précédé l'exposition ne montrent pas de lien avec les paramètres mesurés avant l'exposition, sauf pour les mesures de la fonction respiratoire, avec cependant des différences selon le paramètre et le type de sujet considérés.

Ainsi, ces résultats semblent montrer l'absence de synergie dans les effets entre CAP et NO₂, ainsi que l'absence d'effets pour NO₂ seul dans les conditions étudiées ici. Les paramètres de la fonction respiratoire sont relativement peu affectés par l'exposition aux CAP, bien qu'il s'agisse de sujets âgés et BPCO pour certains. Les effets de l'exposition aux CAP sur MMEF et la saturation sont plus marqués chez les sujets « sains », de façon cohérente avec ce qui avait été observé précédemment par la même équipe.

Les auteurs de l'étude pointent certaines limites : faible nombre de volontaires « sains », impossibilité de mesurer directement les effets sur les voies aériennes périphériques et les alvéoles, expositions très courtes en durée, interférence avec les conditions externes (climat et pollution), développement éventuel d'une tolérance à l'exposition aux particules au cours de l'étude. Au final, malgré ces limites, et la faible puissance de l'étude, il semble que dans ces conditions d'exposition, où les niveaux sont d'après les auteurs 10 fois plus élevés que les niveaux dans l'air ambiant tant pour les particules que pour le NO₂, les effets respiratoires du mélange PM-dioxyde d'azote soient principalement le fait des particules.

Conclusions

De nombreuses études d'exposition humaine contrôlée rapportent des effets aigus sur la santé après exposition à des concentrations de dioxyde d'azote dépassant $500 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (0,25 ppm), tant chez les sujets sains que chez les sujets asthmatiques, et une méta-analyse (Folinsbee, 1992) a indiqué des effets pour des expositions à des niveaux supérieurs à $200 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (0,1 ppm) chez les asthmatiques.

Synthèse d'études épidémiologiques

D'un point de vue épidémiologique, d'importantes caractéristiques du dioxyde d'azote se doivent d'être soulignées. Le dioxyde d'azote est fortement corrélé aux particules de l'air ambiant, les deux étant issus des mêmes sources de combustion, et le dioxyde d'azote se convertissant en nitrates et contribuant ainsi intrinsèquement à la masse de particules fines. Plusieurs études ont noté une corrélation élevée entre les niveaux de dioxyde d'azote et de particules en suspension générés par les mêmes sources de combustion. Pour un site donné, une forte corrélation a pu être observée entre le dioxyde d'azote et le carbone organique et élémentaire, les acides inorganiques, les PM 2,5 et les particules ultrafines (Gauderman WJ et al., 2000 ; Gauderman WJ et al., 2002 ; McConnell R et al., 2003 ; Seaton A et al., 2003). Le dioxyde d'azote pourrait donc être considéré comme un très bon indicateur du mélange complexe particules-gaz émis par les véhicules du trafic.

Par conséquent, il est très difficile de différencier les effets du dioxyde d'azote de ceux des autres polluants dans les études épidémiologiques. Les études en milieu extérieur sont plus informatives lorsque les distributions temporelles ou spatiales de dioxyde d'azote et de particules sont différentes. L'indépendance (partielle) de ces deux polluants alors obtenue est utilisée pour évaluer l'effet du dioxyde d'azote comme contrôle de l'effet des particules, sinon pour montrer que des niveaux élevés de dioxyde d'azote accentuent les risques liés aux particules. Cette dernière observation peut être la conséquence d'une accentuation intrinsèque des effets des particules par le dioxyde d'azote, ou la résultante de la présence de composés particuliers plus nocifs pour des niveaux élevés de dioxyde d'azote (WHO Regional Office for Europe, 2003). Enfin, les études concernant les effets à court terme de la pollution atmosphérique sont généralement basées sur la variabilité quotidienne des niveaux de polluants mesurés par quelques dispositifs de surveillance de la qualité de l'air.

Les concentrations de particules (en particulier les PM 2,5) sont relativement homogènes spatialement sur des zones d'étude étendues, et la variabilité quotidienne de l'exposition de la population est bien représentée par les quelques dispositifs de surveillance. A l'inverse, il existe une variabilité spatiale plus importante pour le dioxyde d'azote, et il est en conséquence probable que la variation quotidienne de l'exposition au dioxyde d'azote soit moins bien décrite que dans le cas des particules.

Etudes fondées sur l'air extérieur : effets à court terme

Le tableau en annexe 11 liste les principaux résultats d'études sélectionnées par l'OMS et relatives aux effets à court terme du dioxyde d'azote.

Etudes de séries temporelles sur la mortalité

La revue de l'OMS conclut que les concentrations quotidiennes de dioxyde d'azote sont significativement associées à des excès de mortalité, principalement cardiovasculaire et respiratoire. L'estimation de l'excès de mortalité globale, dérivée d'une méta-analyse dont la qualité est jugée bonne par l'OMS, est de 2,8% (95% IC 2,1-3,5) pour une augmentation de 24 ppb. L'ajustement de l'effet des particules réduit l'estimation de cet excès de mortalité à 0,9% (95% IC -0,1-2,0) avec un intervalle de confiance incluant le zéro (Stieb DM et al., 2002). Dans les villes européennes étudiées (Katsouyanni K et al., 2001 ; Samoli E et al., 2003), l'effet des particules sur la mortalité quotidienne était plus important dans les zones présentant des niveaux élevés de dioxyde d'azote.

Etudes de séries temporelles sur la morbidité chez l'adulte

Plusieurs études de série temporelle ont été publiées, examinant les effets du dioxyde d'azote sur les admissions à l'hôpital ou le recours aux services d'urgence, principalement pour des pathologies cardiovasculaires et respiratoires. Les résultats de ces études semblent indiquer un effet du dioxyde d'azote (Spix C et al., 1998 ; Anderson HR et al., 1997 ; Sunyer J et al., 1997). Après ajustement sur les niveaux des autres polluants, les estimations d'effet sont parfois diminuées ou non statistiquement significatives, rendant les conclusions moins évidentes. Toutefois, pour certaines études, particulièrement celles relatives aux admissions pour asthme, le dioxyde d'azote était associé à des effets sanitaires, davantage que les particules. Les résultats d'une étude unicentrique américaine récente ont montré des associations entre le dioxyde d'azote et les visites aux services d'urgence, pour des troubles respiratoires (excès de risque relatif pour une augmentation de 20 ppb de la valeur horaire maximale journalière en dioxyde d'azote : 1,6% (95% IC 0,6-2,7) pour les troubles respiratoires dans leur ensemble, 1,9% (95% IC 0,6-3,1) pour les infections des voies respiratoire supérieures, 3,5% (95% IC 0,6-6,5) pour les BPCO, 4,7% (95% IC 1,1-8,5) pour l'asthme, 2,7% (95% IC 0,5-5,0) pour l'asthme chez l'enfant de 2 à 18 ans) et des troubles cardiovasculaires (effet pour 20 ppb de dioxyde d'azote pendant 1 heure : 2,5% (95% IC 1,2-3,9) pour les troubles cardiovasculaires globaux, 2,9% (95% IC 0,5-5,3) pour les pathologies cardiaques ischémiques) (Peel JL et al., 2005).

Etudes de séries temporelles sur la morbidité asthmatique chez l'enfant

De nombreuses études épidémiologiques ont examiné les associations entre polluants atmosphériques et les admissions à l'hôpital, le recours aux services d'urgence ou les consultations pédiatriques, pour l'asthme chez l'enfant.

Dans le cadre du projet européen APHEA 2, l'analyse d'associations entre les polluants extérieurs et le recours aux services d'urgence pour des affections respiratoires à Londres de 1992 à 1994 a révélé une forte relation entre les niveaux de dioxyde d'azote et les visites aux urgences pour l'asthme chez l'enfant, particulièrement durant les saisons chaudes (Atkinson RW et al., 1999). Les PM10 et fumées noires montraient également des liens significatifs. Une analyse parallèle des consultations à Londres par des praticiens généralistes pour asthme et autres affections respiratoires moins sévères a montré des liens importants avec le dioxyde d'azote chez l'enfant, là aussi particulièrement durant l'été, tandis qu'aucun effet n'a été retrouvé pour l'adulte (Hajat S et al., 1999). Des analyses conduites à Rome sur la période 1995-1997 ont montré des résultats très similaires à ceux précédemment mentionnés pour Londres, avec une forte association entre dioxyde d'azote et admissions hospitalières pour infections respiratoires aiguës et asthme chez l'enfant (Fusco D et al., 2001). Aucun effet statistiquement significatif des particules n'a cependant été mis en évidence dans cette dernière étude.

Les résultats de l'étude APHEA 2 évaluant l'association entre particules et admissions à l'hôpital pour affections respiratoires dans 8 villes ont été publiés en 2001 (Atkinson RW et al., 2001). Les PM10 et fumées noires y étaient considérées comme les principaux facteurs d'intérêt, tandis que les polluants gazeux étaient uniquement considérés comme des facteurs potentiellement confondants. Avec les modèles multipolluants, l'ozone et le dioxyde de soufre n'altéraient pas substantiellement les estimations d'effet pour les PM10 et les fumées noires, alors que l'inclusion du dioxyde d'azote dans les modèles diminuait drastiquement l'effet des PM10 et fumées noires. Cet effet confondant du dioxyde d'azote a été interprété comme indiquant que les effets des particules peuvent être dus à leur provenance de sources liées au trafic routier et qu'ils seraient donc fortement corrélés au dioxyde d'azote.

Des études de grande envergure examinant le dioxyde d'azote et l'asthme chez l'enfant ont également été conduites au Canada, en Australie et Nouvelle-Zélande (admissions hospitalières), ainsi qu'aux Etats-Unis (recours aux urgences). L'étude canadienne rapporte, pour une exposition de 6 jours cumulés et une augmentation de 11 ppb en dioxyde d'azote, des excès de risque de 12% (1-23%) chez les garçons, et 16% (2-31%) chez les filles, l'effet du dioxyde d'azote restant inchangé après ajustement avec les particules coarse (Lin M et al., 2002 ; Lin M et al., 2003). La méta-analyse réalisée en Australie et Nouvelle-Zélande présente, pour une augmentation interquartile (5,1 ppb) de la moyenne journalière des concentrations en dioxyde d'azote, un excès de risque de 6% (95% IC 0,2-12,1%) (Barnett AG et al., 2005). Une technique de couplage (« jours contrôle ») a permis d'évaluer l'effet d'un polluant tout en contrôlant l'effet d'un autre. Chez les sujets âgés de 1 à 4 ans, le contrôle sur les PM10 a atténué l'effet du dioxyde d'azote à une valeur non significative, tandis que pour les sujets âgés de 5 à 14 ans, il n'a pas affecté les résultats du dioxyde d'azote, l'effet des PM10 étant lui sensible à l'effet du dioxyde d'azote. L'impact du dioxyde d'azote était plus important dans les villes les plus chaudes, et là encore durant la saison estivale. L'étude américaine conduite à Atlanta rapporte, pour une augmentation de 20 ppb des concentrations horaires en dioxyde d'azote, un risque relatif de 1,027 (95% IC 1,005-1,050).

En conclusion, les études épidémiologiques convergent pour montrer une association consistante entre la pollution de l'air, et les admissions à l'hôpital, le recours aux urgences et les consultations médicales concernant l'asthme chez l'enfant. La plupart des études rapporte un effet des particules et de l'ozone. Cependant, dans beaucoup d'études récentes, le dioxyde d'azote est fortement lié aux admissions à l'hôpital ou au recours aux services urgentistes pour cause d'asthme. Dans plusieurs cas, le dioxyde d'azote est le seul polluant qui soit associé à des effets sanitaires, ou qui conserve un effet après ajustement avec d'autres polluants.

Etudes de panel chez l'enfant asthmatique

Les études de panel chez les enfants asthmatiques et les enfants présentant des symptômes respiratoires chroniques, rassemblent des individus atteints d'asthme plus ou moins sévère et sous traitement médicamenteux. Pendant plusieurs mois, les sujets enregistrent quotidiennement leurs résultats cliniques. Les paramètres cliniques étudiés peuvent être des symptômes (toux, respiration sifflante, essoufflement avec respiration bruyante, crises d'asthme), des usages médicamenteux (bronchodilatateurs ou bêta-agonistes), ou la fonction pulmonaire (par exemples : débits maximaux expiratoires, FEV₁, CVF). En parallèle, la pollution de l'air est mesurée avec les facteurs de confusion potentiels (par exemples : facteurs météorologiques, jours ouvrés) en tenant compte de leur variation quotidienne.

Les résultats des études de panel analysées par l'OMS sont plutôt incohérents, la large étude PEACE (Roemer W et al., 1998) n'ayant notamment montré aucun effet pour chacun des polluants mesurés. Les résultats incohérents peuvent être dus aux difficultés en termes de dimensionnement approprié des panels, de durée du suivi, de composition (avec ou sans symptômes, traitement de l'asthme, sensibilisation, sévérité), d'observance, et à d'autres facteurs intervenant tels que les épidémies de grippe. Néanmoins, en dépit des incohérences entre les résultats des études de panel, les études comprenant un nombre important de sujets et de jours indiquent un effet du dioxyde d'azote sur les symptômes et les mécanismes de défenses anti-infectieuses. Ces résultats sont conformes aux conclusions des études de série temporelle (admissions à l'hôpital) et des études en milieux intérieurs (voir ci-après), montrant un effet net du dioxyde d'azote sur l'incidence des infections virales chez les asthmatiques.

Etudes fondées sur l'air extérieur : Effets à long terme

Les études sur les effets sanitaires à long terme ont évalué l'association entre le dioxyde d'azote et la morbidité et mortalité chez l'enfant et l'adulte. Les erreurs de classification d'exposition sont une problématique majeure pour ce type d'étude. En effet, de par leur design, d'une part les estimations sur une zone d'étude négligent la variabilité spatiale (souvent élevée) du dioxyde d'azote à l'intérieur de la zone (ville, zone urbaine), d'autre part ces estimations tiennent compte seulement d'une partie de l'exposition individuelle, ne considérant pas l'ensemble des lieux d'exposition et sources polluantes (transport, travail/école, appareils domestiques, loisirs...). De plus, les études relatives à la variabilité spatiale de l'état de santé sont confrontées à de possibles facteurs confondants qui ne peuvent être contrôlés, tels que les facteurs de risque pour les pathologies étudiées et d'autres polluants du trafic. Le tableau en annexe 12 présente la liste des résultats d'études sélectionnées par l'OMS pour les effets à long terme du dioxyde d'azote.

Asthme, troubles respiratoires et atopie

Un nombre conséquent d'études ont évalué l'association entre la morbidité respiratoire chez l'enfant et l'adulte, et l'exposition au dioxyde d'azote, caractérisée par des estimations de concentrations mesurées ou modélisées au niveau d'une zone, à l'école ou au domicile. Des études transversales et de cohortes ont été conduites, l'OMS portant une attention particulière aux études de cohorte considérées comme plus fiables pour fixer des valeurs guide de la qualité de l'air.

En résumé, les études de cohorte semblent suggérer une association entre les concentrations de dioxyde d'azote à l'adresse du domicile, et l'incidence d'asthme chez l'enfant. Une des principales limites réside dans le fait que les données disponibles à partir des études de cohorte concernent pour la plupart des enfants âgés de 2 ans uniquement. Par ailleurs, les études rapportent des excès de risque individuel élevés, sans qu'aucune ne soit à ce jour en mesure d'attribuer intrinsèquement les effets observés aux concentrations de dioxyde d'azote. Les résultats de ces études peuvent donc être considérés comme une preuve substantielle de l'impact à long terme liée à la pollution du trafic sur le développement de l'asthme, mais ne permettent pas de dégager une part de responsabilité d'un polluant en particulier. Enfin, une augmentation pas uniquement de l'asthme, mais aussi de la toux et des symptômes de bronchite, a été mis en évidence. Là encore, ces effets ne peuvent cependant être attribués au dioxyde d'azote seul avec une certitude suffisante.

Fonction pulmonaire

L'étude de cohortes *Southern California Children's Health Study* fournit une évidence de liens entre les niveaux de dioxyde d'azote et le développement de la fonction pulmonaire chez l'enfant, et suggère que les valeurs caractéristiques de la fonction pulmonaire inférieures à 80% pourraient être 5 fois plus probables dans les quartiers plus pollués (Gauderman WJ et al., 2000 ; Gauderman WJ et al., 2002 ; Gauderman WJ et al., 2004). En Europe, une association entre le dioxyde d'azote et la fonction pulmonaire chez l'adulte a été mise en évidence. Toutefois, des doutes subsistent quand à l'attribution de ces effets au dioxyde d'azote seul, et sont motivés par des associations d'ampleur similaire avec les particules émises par le trafic.

Cancer

Des études ont évalué l'association entre exposition au dioxyde d'azote ou aux oxydes d'azote et cancers en Europe. Ces expositions sont souvent dominées par la pollution liée au trafic et par conséquent les composés cancérigènes dont les niveaux sont corrélés à ceux d'oxydes d'azote pourraient inclure les particules Diesel, le benzène ou les HAP. La suspicion que d'autres polluants associés aux particules sont plus probablement responsables est également supportée par les résultats de l'*American Cancer Society Study* qui montre une absence de liens entre cancer et dioxyde d'azote en présence d'une association positive entre PM_{2,5} et mortalité par cancer pulmonaire (Pope CA III et al., 2002).

Sur la base des études analysées, l'OMS suggère donc que la pollution liée au trafic pourrait être associée au cancer chez l'enfant et au cancer pulmonaire chez l'adulte, mais aucune preuve n'est à ce jour apportée qui permette d'attribuer ces associations au dioxyde d'azote seul. De plus, les études européennes pourraient démontrer que l'association entre la pollution liée au trafic et les cancers est mieux décrite en tenant compte de la variation spatiale « intrazone » plutôt que « interzone » du dioxyde d'azote.

Le tableau en annexe 13 présente la liste des résultats d'études sélectionnées par l'OMS ayant évalué l'association entre exposition au dioxyde d'azote et cancer.

Effets sur le fœtus et la reproduction

L'exposition à la pollution atmosphérique durant la grossesse peut être liée au faible poids corporel chez le nouveau-né, au retard du développement intra-utérin, à la naissance prématurée et à la mortalité périnatale. Il semble qu'il existe une certaine évidence d'association entre la pollution de l'air liée au trafic et les effets sur le fœtus. Cependant, on ne peut conclure à un effet indépendant et intrinsèque du dioxyde d'azote sur la reproduction et la naissance.

Le tableau en annexe 14 présente la liste des résultats d'études sélectionnées par l'OMS ayant évalué l'association entre exposition au dioxyde d'azote et effet sur le fœtus.

Mortalité (long terme)

Des données européennes récentes suggèrent que les concentrations long terme de dioxyde d'azote et d'oxydes d'azote étaient associées à un excès de risque de mortalité toutes causes confondues (Filleul L et al., 2005 ; Hoek G et al., 2002, Nafstad P et al., 2004). Cependant, aucune étude n'a montré une évidence pour le dioxyde d'azote seul, contrairement à la pollution particulaire liée au trafic qui semble responsable des associations observées. Par ailleurs, les études européennes pourraient là encore démontrer que l'association entre la pollution liée au trafic et la mortalité est mieux décrite en tenant compte de la variation spatiale « intrazone » plutôt que « interzone » du dioxyde d'azote.

Etudes en milieux intérieurs

Plusieurs investigations épidémiologiques ont été conduites dans des milieux intérieurs (essentiellement au domicile) et leurs résultats sont controversés. Ce type d'étude n'est pas non plus exempt du possible effet confondant de la pollution particulaire, considérant les sources de dioxyde d'azote mais aussi de particules fines et ultrafines, telles que la combustion du gaz naturel (four, cuisson...). Le monoxyde d'azote, l'humidité et les moisissures peuvent aussi jouer un rôle confondant. De plus, les mesures d'exposition au dioxyde d'azote en milieux intérieurs sont essentiellement obtenues par des dispositifs de prélèvement passifs installés pendant quelques semaines. Aussi, considérant la variabilité importante de l'usage individuel des sources de pollution intérieure au dioxyde d'azote et de la ventilation sur une année, il est complexe d'estimer l'exposition à long terme. Des associations sont toutefois rapportées entre la fréquence des symptômes respiratoires chez les nourrissons et enfants asthmatiques ou risquant de le devenir, et l'augmentation des concentrations de dioxyde d'azote dans l'air intérieur.

Annexe 11 : Effets à courts termes du NO₂ : Etudes en populations basées sur l'air extérieur (OMS, 2006)

Référence	Lieu d'étude	Type d'étude	Effet	Particules - concentrations	Particules - effets	Corrélation Particules-NO ₂	NO ₂ - concentrations	NO ₂ - effets	NO ₂ ajusté sur les particules - effets
Stieb, Judek & Burnett (2002)	32 locations worldwide	Meta-analysis of time series studies	Daily mortality	PM ₁₀ , range of means 26.9-123.2 µg/m ³	2.0% (CI 0.4-2.1) per 31.3 µg/m ³	NA	Range of means 20.4 – 103.3 µg/m ³	2.8 % (CI 2.1 – 3.5) per 24 ppb	0.9 % (CI-0.1 – 2.0) in multi-pollutant model
Anderson et al. (1998)	London, United Kingdom	Time series of hospital admissions	Asthma admissions (0-14 years)	BS, mean 14.6 (SD7.0) µg/m ³	0.58 % (CI-1.27-2.46) per 10 µg/m ³	NA	Mean 37.2 (SD 13.2) pbb	1.25 % (CI 0.3 – 2.2) per 10 ppb	2.26 % (CI 0.83-3.71) per 10 ppb, adjusting for BS
Hajat et al. (1999)	London, United Kingdom	Time series of family doctor consultations	Asthma in children	PM ₁₀ , mean 28.5 (SD 13.7) µg/m ³	3.8 % (CI – 1.0 – 8.8) per 16,5 µg/m ³	0,73	Mean 33.6 (SD 10.5) pbb	6.1 % (CI 1.2 – 11.3) per 22.5 ppb	No two-pollutant model needed as PM ₁₀ not significant in single-pollutant model
Lin et al. (2002 ; 2003)	Toronto, Canada	Case-crossover of hospital admissions	Asthma in children (6-12 years)	PM ₁₀ , mean 30.1 (SD 13.6) µg/m ³	14% increase (CI 2-28) in boys and 18% (CI 0.2-36) in girls per 8.4 µg/m ³ PM _{10-2.5} (coarse particles)	0,52	Mean 25.2 (SD 9.0) pbb	NA	12 % increase (CI 1 -23) in boys and 16% (CI 2 – 31) in girls per 11 ppb increase in nitrogen dioxide, adjusting for PM _{2.5} and PM ₁₀
Metzger et al. (2004)	Atlanta, USA	Time series of visits to emergency departments (1993-2000)	All cardiovascular Ischaemic heart disease	PM ₁₀ , median 23.3 µg/m ³ (10%-90%,13.2-44.7)	0,9% (CI-0.2 – 1.9) per µg/m ³ 1.1% (CI-0.8-3.0) per 10 µg/m ³	0.49 (1 hour)	Median (1 hour) 44.0 pbb (10%-90%, 25-68)	2.5% (CI 1.2-3.9) per 20 ppb 1-hour nitrogen dioxide 2.9 % (CI 0,5-5.3) per 20 ppb	No two-pollutant model needed as PM ₁₀ not significant in single-pollutant model
Barnett et al. (2005)	Seven cities in Australia and New Zealand	Case-crossover of hospital admissions	All respiratory (5-14 years) Asthma (5-14 years)	PM ₁₀ , range of means 16.5-20.6 µg/m ³	1.9 % (CI 0.1-3.8) per 7.5 µg/m ³ 1.7% (CI-1.7,5.3) per 7.5 µg/m ³	0.25-0.57	Range of means 7.0-11.7 pbb	5.8% (CI 1.7 - 10.1)per 5.1 pbb 6% (CI 0.2 – 12.1) per 5.1 pbb	6.4% (CI 3.0 – 9.8) and PM ₁₀ no longer significant No two-pollutant model needed as PM ₁₀ not significant in single-pollutant model
Peel et al.(2005)	Atlanta, USA	Time series of visits to emergency departments (1993-2000)	All respiratory COPD Asthma Paediatric asthma	PM ₁₀ , mean 27.9 (SD 12.3) µg/m ³	1.3 % (CI 0.4 – 2.1) per 10 µg/m ³ 1.8% (CI-6.0-4.3) per 10 µg/m ³ 9.9% (CI 6.5-13.5) per 10 µg/m ³ 1.6% (CI-0.2-3.4) Per 10 µg/m ³	0.49 (1 hour)	Mean (1 hour) 45.9 (SD 17.3) pbb	1.6% (CI 0.6-2.7) per 20 ppb 1-hour nitrogen dioxide 3.5% (CI 0.6 – 6.5) Per 20 ppb 1 – hour nitrogen dioxide 4.7% (CI 1.1 – 8.5) Per 20 ppb – 1 hour nitrogen dioxide 2.7% (CI 0.5 -5.0) per 20 ppb – 1 hour nitrogen dioxide	Nitrogen dioxide effect for asthma not attenuated, while the estimates for other pollutants suggested weaker or no association

Annexe 12 : Effets à longs termes du NO₂ : Etudes de cohorte sur l'asthme, affections et fonction respiratoires (OMS, 2006)

Référence	Lieu d'étude, population, période	Effet	NO ₂ - Concentrations (moyenne)	NO ₂ - Odds ratio (95% CI)	Commentaires
Shima & Adachi (2000)	7 communities in Japan with different levels of air pollution ; pupils (n=842) aged 9-10 ; annual questionnaire 1992-1994	Wheeze and asthma	10 ppb (range of 3-year average 7.0-31.3 ppb)	1.76 (1.04 – 3.23) wheeze, adjusted 2.10 (1.10 – 4.75) Asthma, adjusted	Incidence of asthma (range 0-3.06%) and wheeze (range 0-6.5%) was low; no absolute numbers are given.
Brauer et al. (2002)	Prospective birth cohort (n=3745), age 2 years, from a series of rural and urban communities in the Netherlands (1996-2001)	Asthma, respiratory symptoms up to 2 years of age	10.3 µg/m ³ (range of annual averages 12-58 µg/m ³)	1.13 (0.99-1.29) wheeze, adjusted 1.18 (0.93-1.51) asthma, adjusted	Outdoor levels at the home of subjects were estimated using a validated model. Reported associations refer to disease status at two years. Estimates of similar size obtained for highly correlated pollutants PM _{2.5} and soot. Strongest association seen for ear, nose and throat infections and air pollutants.
Gehring et al. (2002)	Prospective birth cohort (n=1757), living in Munich; Germany, follow-up until age 2 years (1996-2001)	Asthma, respiratory symptoms up to 2 years of age	8,5 µg/m ³ (range of annual averages 19-67 µg/m ³)	0,94 (0.79-1.12) wheeze, adjusted 1,24 (1.02-1.51) dry cough at night, adjusted	GIS-based modelling of exposure at the birth address. Comparable effect estimates obtained for PM _{2.5} and soot. Stronger effect estimates obtained at age of 1 year (1.36 (1.07-1.74) dry cough at night, adjusted), especially in males.
Emenius et al. (2003)	Nested case-control study, n = 540 (181 cases with recurring wheezing and 359 age-matched controls) based on a birth cohort from Sweden (n=4089) (1994-1998)	Recurrent wheeze at age 2 years	10 µg/m ³ (range of 4-week measurements 6-46.7 µg/m ³)	1.20 (0.90-1.60), adjusted	Analyses used estimated winter-time averages outside the children's homes; range of these exposures not presented. Stronger effects for children who did not fulfil the criterion for recurrent wheeze until their second year of life. Interaction between nitrogen dioxide and exposure to environmental tobacco smoke.
McConnell et al. (2003)	12 communities in Southern California with different levels of air pollution ; pupils with asthma (n=475) age 9-13 years in 1993, with two or more follow-up questionnaires between 1996 and 1999	Bronchitic symptoms	1 ppb (range of 4-year average 4.2-8.0 ppb)	1.02 (1.00-1.03) between community, adjusted 1.07 (1.02-1.13) between community, adjusted	Associations of similar strength were seen for PM _{2.5} and elemental carbon. The effect of nitrogen dioxide was independent of adjustments for PM ₁₀ ; PM _{10-2.5} , acids and elemental carbon. Co-linearity of the effect was observed for ozone, PM _{2.5} and elemental carbon.
Gauderman et al. (2004)	12 communities in Southern California with different levels of air pollution ; 1759 fourth-graders enrolled in 1993 aged 9-11 years (1993-2001)	Growth rate of lung function (FVC, FEV ₁ , maximum mid-expiratory flow (MMEF)	34.6 ppb (range of 8- year average 4-39 ppb)	-95 ml (-189-1 ml) FVC, adjusted -101 ml(-165-38 ml) FEV ₁ , adjusted -211 ml/s (-378-44 ml/s) MMEF, adjusted	Effects on FVC and FEV ₁ , were largest for acid vapours, which were highly correlated with nitrogen dioxide.

Annexe 13 : Effets à longs termes du NO₂ : Etudes sur les risques de cancer (OMS, 2006)

Référence	Lieu d'étude, population, période	Effet	NO ₂ -Concentrations (moyenne)	NO ₂ - Odds ratio (95% CI)	Commentaires
Feychting, Svensson & Ahlbom (1998)	142 patients with childhood cancer and 550 controls	Cancer (risk ratio)	Annual averages, categories of quartiles	No estimate for continuous exposure given	Range of nitrogen dioxide exposure is not reported. A relative risk estimate of 2.7 (95% CI 0.9 – 8.5) was found for total cancer at nitrogen dioxide concentrations of 50 µg/m ³ or higher compared to 39 µg/m ³ or lower. At 80 µg/m ³ the relative risk was 3.8 (95% CI 1.2 – 12.1).
Nyberg et al. (2000)	1042 patients with lung cancer and 2364 controls aged 40-75 years, Stocklom Country, Sweden, 1950-1990	Lung cancer (risk ratio)	10 µg/m (modelled 10-year average)	1.10 (0.97 – 1.23) adjusted	Full range of exposure not reported. Results were robust against consideration of sulfur dioxide concentrations. There might be a suggestion of a threshold at around 30 µg/m ³ nitrogen dioxide.
Raashou-Nielsen et al. (2001)	1989 children with leukaemia, tumour of the central nervous system or malignant lymphoma and 5506 control children, Denmark, 1968-1991	Leukaemia, tumour of central nervous system or malignant lymphoma (risk ratio)	Modelled (range 1.5 – 28 ppb)	No estimate for continuous exposure given	Nitrogen dioxide and benzene were modelled based on a validated model at residential address for pregnancy and childhood. Exposure is expressed per 1000 ppb-person-days. No overall increased risk observed, but malignant lymphomas were increased in association with exposure to nitrogen dioxide and benzene during pregnancy. Risk increases across quartiles and positive test for trend
Filleul et al. (2005)	14 284 adults recruited in 24 areas of 7 French cities (1974-1976), 25-year mortality follow-up based on death certificates	Lung cancer mortality (hazard ratio)	10 µg/m ³ (range 12-61 µg/m ³ after exclusion (18 areas) range 12-32 µg/m ³)	24 areas : 0.97 (0.85-1.10) 18 areas : 1.48 (1.05-2.06), both adjusted	No validation of cancer cases; no association with other correlated pollutants and lung cancer observed.
Hoek. et al. (2005)	5000 adults in the Netherlands aged 55-69 years, 8-years follow-up, 1986-1994	Lung cancer mortality (hazard ratio)	30 µg/m ³ (range of annual averages 14.7-67.2 µg/m ³)	1.25 (0.42-3.72) adjusted	Only 60 cases were identified ; no validation of cancer cases. Estimates are for background and local concentrations combined.
Pope et al. (2000)	Approximately 409 000 to 493 000 adults in the United States from 78 metropolitan areas (nitrogen dioxide data as of 1980) or from 101 metropolitan areas (nitrogen dioxide data as of 1982-1998)	Lung cancer mortality (relative risk)	Increment not given (mean (SD) 1980 : 27.9 ppb (9.2 ppb)	Estimates only reported as figure	No association observed for nitrogen dioxide but observed for PM _{2.5} . Neither increments nor size of effects are reported.

Annexe 14 : Effets à longs termes du NO₂ : Etudes relatives aux effets sur le fœtus (OMS, 2006)

Référence	Lieu d'étude, population, période	Effet	NO ₂ -Concentrations (moyenne)	NO ₂ - Odds ratio (95% CI)	Commentaires
Liu et al. (2003)	229 085 births in Vancouver, Canada, 1986-1998	Preterm birth, low-birth-weight birth, intrauterine growth retardation (odds ratio)	10 ppb	1.08 (0.99 – 1.17) preterm birth, adjusted, last month 1.05 (1.01 – 1.10) intrauterine growth retardation, adjusted, first month	Full range of exposure not reported. Similar results observed with other pollutants (sulfur dioxide and carbon monoxide). Pollutants were highly correlated.
Wilhelm & Ritz (2003)	13 464 pre-term births and 21 124 controls, 3 771 term low-birth-weight births and 26 351 controls, Los Angeles, 1994-1996	Preterm birth or term low birth-weight birth (odds ratio)	1 pphm	1.05 (1.02-1.08) preterm birth, adjusted 1.06 (1.01-1.11) term low-birth-weight birth, adjusted	Nitrogen dioxide concentrations were taken from the best station near to the home address. Estimates of nitrogen dioxide were reduced to null if traffic density was considered in the same model.
Dales et al. (2004)	12 Canadian cities, daily number of sudden infant deaths (n=1556), 1984-1999	Sudden infant death (relative risk)	10.9 ppb (range of mean over study period 9.6-25.8 ppb)	1.15 (1.07-1.24), 3-days average, adjusted	Nitrogen dioxide concentrations were taken from the best station near to the home address. Estimates of nitrogen dioxide were reduced to null if traffic density was considered in the same model.

Annexe 15 : Ajustement temporel de la valeur guide OMS du NO₂ établie sur une heure (200 µg/m³) pour une durée d'exposition de 8 heures

Les ajustements temporels employés lors de la construction de valeurs de référence sont généralement issus de l'application d'une loi connue sous le nom de loi de Haber. Suite à ses recherches en 1924, Haber observa une relation constante entre la concentration (« c », en mg/m³) de gaz dans l'air et la durée d'exposition (« t », en minutes) menant à la mort d'un animal. Cette relation a été exprimée à l'aide d'une formulation mathématique simple $c \times t = k$ (où k est un effet constant). Selon cette loi, la concentration et le temps sont considérés comme des paramètres d'influence équivalente sur la toxicité. Selon cette théorie, des produits identiques de la concentration d'une substance dans l'air par la durée d'exposition induiraient le même effet toxique. Ceci conduit à considérer que l'incidence et/ou la sévérité d'un effet dépend de l'exposition totale à une substance potentiellement toxique sans faire de distinction entre les pics d'exposition et les expositions plus étalées dans le temps.

Cependant, la loi de Haber est, en réalité, un cas particulier d'une relation plus générale : $c^n \times t = k$ ou $c \times t^m = k$. Par conséquent, la loi de Haber n'est suivie que lorsque $n = 1$ et $m = 1$ (Miller *et al.*, 2000). Selon Ten Berge *et al.* (1986), la relation $c^n \times t = k$ (avec $n \neq 1$) permet de prédire la réponse induite par un composé volatil suite à une exposition aiguë par voie respiratoire. Cette étude consistait en une réévaluation et une modélisation de données brutes relatives à la toxicité aiguë de telles molécules. Seules les études analysant des concentrations et des durées d'exposition variables ont été incluses. La modélisation mathématique utilisée est la suivante : $Y = b_0 + b_1 \ln c + b_2 \ln t$ où c est la concentration d'exposition, t la durée d'exposition et b_0 , b_1 et b_2 sont des coefficients de régression. Pour chaque substance étudiée, les valeurs de b_0 , b_1 et b_2 ont été déterminées ainsi que celle de l'exponentielle n de la relation $c^n \times t = k$ ($n = b_1 / b_2$). Cette étude a permis la caractérisation de la relation concentration-temps-réponse et le calcul de la valeur de l'exposant « n » pour la mortalité du dioxyde d'azote chez différentes espèces animales. **Cette valeur est de 3,5 (CI95%= 2,7-4,3)** (Il est à noter que cette valeur de « n » a été utilisée par l'US EPA afin d'ajuster l'AEGL du dioxyde d'azote au temps). Ces résultats impliquent que la durée a une influence moins importante que la concentration d'exposition sur cet effet toxique. Par conséquent, une extrapolation, à partir de la relation $c \times t = k$, des effets long terme à partir de données issues d'une exposition de plus courte durée aboutirait à une surestimation du risque par rapport au cas de l'utilisation de la relation $c^{3,5} \times t = k$. Ces conclusions sont confortées par la littérature dans laquelle émerge l'hypothèse selon laquelle les effets d'irritation respiratoire sont davantage majorés par la concentration que par la durée d'exposition (Shusterman *et al.*, 2006 ; Wise *et al.*, 2006 ; Wise *et al.*, 2005 ; Wise *et al.*, 2004).

Dans le cadre de ce travail, la valeur de référence sélectionnée est L'AQG court terme de 200 µg/m³. Cette valeur a été construite pour protéger d'effets d'hyperréactivité bronchique chez l'asthmatique et pour une durée de 1 heure (OMS, 2006). L'étude sur laquelle ten Berge *et al.* se sont basés pour déterminer la valeur de n de 3,5 est une étude de 1970 (Hine *et al.*, 1970, cités dans INERIS, 2004) durant laquelle 5 espèces animales (rats, souris, cobaye, lapins et chiens) ont été exposées à des concentrations de 40 à 250 ppm et pour des durées d'exposition de 5 à 1440 minutes. Les auteurs ont observé des lésions laryngées et pulmonaires avec une hyperémie, une exsudation et des foyers de nécrose des cellules épithéliales. La valeur de 3,5 pourrait donc être employée dans la relation $c^{3,5} \times t = k$ afin de caractériser la relation concentration-temps-réponse de cette substance. Ainsi, l'extrapolation de l'AQG_{ajusté8h} à partir de l'AQG_{1h} se fera de la façon suivante :

$$(AQG_{1h})^{3,5} \times 1 = (AQG_{ajusté8h})^{3,5} \times 8$$

$$\text{Soit } (AQG_{1h})^{3,5} \times 1 = (AQG_{\text{ajusté8h}})^{3,5} \times 8$$

$$\text{Soit } 3,5 \times \log(AQG_{1h}) + \log 1 = 3,5 \times \log(AQG_{\text{ajusté8h}}) + \log 8$$

$$\text{Soit } \log(AQG_{\text{ajusté8h}}) = \frac{3,5 \times \log(AQG_{1h}) - \log 8 + \log 1}{3,5}$$

$$AQG_{\text{ajusté8h}} = 110 \mu\text{g}/\text{m}^3$$

Références

-Miller FJ, Schlosser PM, Janszen DB. Haber's rule: a special case in a family of curves relating concentration and duration of exposure to a fixed level of response for a given endpoint. *Toxicology*. 2000 Aug 14; 149(1):21-34.

-INERIS: Unité d'expertise des substances chimiques. Seuils de toxicité aiguë - Dioxyde d'azote. 2004.

-[Shusterman D.](#), [Matovinovic E.](#), [Salmon A.](#) Does Haber's law apply to human sensory irritation? *Inhal. Toxicol.* 2006 Jun; 18(7):457-71.

-Ten Berge W. F., Zwart A. and Appelman L. M. Concentration-time mortality response relationship of irritant and systemically acting vapours and gases. *Journal of Hazardous Materials*.1986; 13: 301-309.

-[Wise P.M.](#), [Canty T.M.](#), [Wysocki C.J.](#) Temporal integration in nasal lateralization of ethanol. *Chem. Senses*. 2006 Mar; 31(3):227-35.

-[Wise P.M.](#), [Canty T.M.](#), [Wysocki C.J.](#) Temporal integration of nasal irritation from ammonia at threshold and supra-threshold levels. *Toxicol. Sci.* 2005 Sep; 87(1):223-31.

-[Wise P.M.](#), [Radil T.](#), [Wysocki C.J.](#) Temporal integration in nasal lateralization and nasal detection of carbon dioxide. *Chem. Senses*. 2004 Feb; 29(2):137-42.

Notes



))) **afsset** .)))

agence française de sécurité sanitaire de l'environnement et du travail

253, avenue du Général Leclerc
94701 Maisons-Alfort Cedex
Tél. +33 1 56 29 19 30
afsset@afsset.fr
www.afsset.fr

ISBN 978-2-11-098515-6

