



INSTITUT NATIONAL DE L'ENVIRONNEMENT INDUSTRIEL ET DES RISQUES

Distribution de l'exposition de la population urbaine aux PM₁₀ et PM_{2.5}

Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air

O. BLANCHARD

Unité Evaluation des Risques Sanitaires – Direction des Risques Chroniques

Loi sur l'Air – Convention 18/99

Novembre 2001

Distribution de l'exposition de la population urbaine aux PM₁₀ et PM_{2.5}

Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air

NOVEMBRE 2001

personnes ayant participé à l'étude

E.NERRIERE - D.ZMIROU – M.B.PERSONNAZ - H.GUEGAN - M.JOYEUX

M.MARLIERE - A.FREZIER - R.DUJARDIN - N.GONZALEZ - O.BLANCHARD

Ce document comporte 29 pages (hors couverture et annexes).

	Rédaction	Vérification	Approbation
NOM	O.BLANCHARD	M.NOMINE	A.CICOLELLA
Qualité	Direction des Risques Chroniques	Direction des Risques Chroniques	Direction des Risques Chroniques
Visa			

TABLE DES MATIERES

1	RÉSUMÉ	3
2	INTRODUCTION	4
3	MATÉRIELS ET MÉTHODE	6
	3.1 Populations étudiées	6
	3.2 Mesure de l'exposition personnelle.....	6
	3.3 Protocole de validation et étude pilote à Grenoble	11
4	RÉSULTATS	14
	4.1 Population étudiée	14
	4.2 Résultats gravimétriques.....	15
	4.3 Résultats de la mesure de la réflectance	16
	4.4 Composition en éléments minéraux des particules.....	17
	4.5 Composition en HAP des particules	21
	4.6 Résultats des concentrations du benzène	22
	4.7 Résultats des concentrations de NO ₂	22
	4.8 Résultats des tests de génotoxicité.....	23
5	DISCUSSION	24
	5.1 Estimation de l'exposition des populations urbaines	24
	5.2 Caractérisation du risque de cancer	26
6	REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES	27
7	LISTE DES ANNEXES	29

1 RESUME

Les résultats présentés dans ce rapport correspondent aux travaux menés à Grenoble dans le cadre d'une étude pilote. Ils s'inscrivent au sein d'un projet plus ambitieux (projet GENOTOX'ER), dans lequel seront également étudiés les sites de Paris, Rouen et Strasbourg. Ces agglomérations font partie du programme pilote de l'ADEME sur les nouveaux polluants à surveiller dans le cadre de la mise en œuvre de la Directive cadre de l'UE de 1996.

Le projet a pour objet de décrire l'exposition de populations urbaines françaises aux particules atmosphériques et au benzène, dans le but de procéder à une évaluation du risque du cancer. Plusieurs études épidémiologiques récentes suggèrent que le risque de cancer soit accru pour les personnes résidant dans des zones géographiques affectées par la pollution atmosphérique, notamment du fait des particules inhalées. Il se propose de caractériser l'exposition de personnes volontaires à certains métaux et composés organiques cancérigènes présents dans l'air sous forme particulaire (PM_{2,5} ou PM₁₀), ou gazeuse (benzène), selon les caractères des activités et lieux de vie des personnes. Une analyse de la génotoxicité des particules atmosphériques prélevées sera effectuée en fonction des caractéristiques des lieux de leur collecte et de leur composition chimique.

L'étude menée à Grenoble, a porté sur des enfants de six à douze ans non exposés au tabagisme passif au domicile, ainsi que sur des adultes volontaires non-fumeurs non exposés professionnellement, à raison d'un effectif de 30 dans chaque groupe. Trois zones ont été déterminées : (i) l'hyper-centre, exposé au trafic automobile ; (ii) une zone représentative du fond urbain ; (iii) une zone influencée par des émissions industrielles.

Les données qui sont présentées permettent uniquement d'attester de la faisabilité du projet. Il est bien entendu prématuré d'interpréter ces résultats partiels. On notera simplement que les concentrations de PM_{2,5} et PM₁₀ sont plus fortes pour les volontaires enfants que pour les adultes, excepté en secteur industriel. En outre, les résultats pour certains volontaires ne confirment pas le classement en secteur (type d'environnement), qui avait été fait *a priori* en fonction des adresses des domiciles et des lieux de travail. Le classement final par secteur devra tenir compte de l'analyse détaillée des Budgets Espace Temps. Les concentrations de BaP sont de l'ordre de grandeur des valeurs limites recommandées par le Conseil Supérieur d'Hygiène Publique de France. Enfin, pour les métaux et le benzène, ils suggèrent des valeurs plus élevées en zone industrielle.

Cependant, une fois l'ensemble des informations collectées, plusieurs pistes pourront être avancées pour une plus large estimation de l'exposition des populations urbaines et pour une meilleure caractérisation du risque de cancer.

2 INTRODUCTION

Plusieurs travaux épidémiologiques suggèrent un risque accru de cancer après une exposition chronique à la pollution atmosphérique urbaine. Dans la cohorte Ashmog des adventistes non-fumeurs de Californie, l'incidence du cancer du poumon au bout de 15 ans de suivi était plus élevée parmi les personnes ayant subi des expositions au long cours aux particules PM₁₀ dans les deux sexes, mais aussi à l'ozone chez l'homme [Beeson et al 1998]. Bien que les associations ne soient pas significatives sur le plan statistique, un résultat semblable était observé dans la cohorte de la « Six cities study » après 17 ans, les particules fines manifestant les relations les plus fortes avec la mortalité par cancer [Dockery et al 1993]. Les très récentes analyses des données complémentaires de cette cohorte et de celle de l'ACS, suivies pendant près de 10 ans de plus, confirment et renforcent ces résultats (le risque de cancer du poumon devient significatif dans les deux populations [Laden et al, 2001 ; Pope et al 2001]). A Trieste, une étude cas-témoins met en évidence des excès de risque pour certains types histologiques de cancer (carcinome à petites et à grandes cellules) parmi les habitants du centre ville et des secteurs industriels, où les concentrations ambiantes en particules et en autres indicateurs de la qualité de l'air sont plus élevées [Barbone et al 1995]. Une autre étude cas-témoins a été récemment publiée par une équipe suédoise qui a pu reconstituer, par modélisation, l'exposition cumulée des personnes, selon les lieux de vie de sujets atteints de cancers des poumons et de témoins, en utilisant les immissions de NO₂ comme indicateur des émissions associées au trafic ; ce travail montre un odds ratio de 1,4 (IC95 % 1,0-2,0), pour des expositions estimées pour la période de vie précédant de 20 ans la survenue du cancer. C'est une nouvelle pièce en faveur du rôle cancérigène de l'air urbain pollué par les sources automobiles (aucune association n'a été trouvée pour le dioxyde de soufre, choisi comme traceur des sources industrielles et du chauffage) [Nyberg et al 2000].

Au total, les excès de risque de cancer pourraient être voisins de 20 à 50 % en milieu exposé à la pollution atmosphérique urbaine après ajustement sur le tabagisme [Hemminki et al 1994]. De l'ordre de 75 % de cet excès de risque pourrait être attribué aux HAP, au benzène et à certains autres composés organiques volatils, et au chrome, selon une estimation portant sur l'air urbain des Etats Unis en 1990 [Woodruff et al 2000].

Les toxiques cancérigènes dans l'air urbain et industriel sont variés. Parmi les composés organiques volatils en jeu (benzène, 1-3 butadiène, formaldéhyde ou acétaldéhyde...), seul sera pris en compte dans ce projet le benzène, en raison de limites relatives aux outils du mesurage de l'exposition personnelle. La phase particulaire est riche en composés mutagènes et cancérigènes [Barale et al 1991, Törnqvist et al 1994, Velloso et al 1994, De Martinis et al 1999]. Les émissions de particules fines par les moteurs de type diesel pourraient, parmi d'autres sources, jouer un rôle dans cet excès de risque en population générale, sur la base des évaluations toxicologiques et épidémiologiques en milieu professionnel [CNRS 1998, Bhatia et al 1998, HEI 1995], mais les composés organiques liés au chauffage urbain et, surtout, aux activités industrielles sont également en cause [Möller et al 1994 ; OMS-Euro 2000].

Depuis une dizaine d'années se sont développés des outils de métrologie des expositions personnelles aux particules, dans le cadre de travaux européens ou nationaux (EXPOLIS, VESTA, MACBETH...). Certaines de ces recherches ont permis de développer des approches visant à établir le lien entre expositions personnelles et immissions mesurées par les réseaux de surveillance de la qualité de l'air, par modélisation statistique, visant à optimiser l'usage des données de surveillance de la qualité de l'air pour estimer l'exposition de populations urbaines [Boudet et al 2001]. Cette voie de recherche est fortement encouragée par le panel d'experts du NRC qui recommande que des études de modélisation des expositions individuelles et populationnelles soient conduites en vue d'estimer les expositions personnelles de larges populations sans avoir à mettre en œuvre de coûteuses enquêtes métrologiques individuelles [NRC 1999]. De surcroît, d'après ce même rapport, il est essentiel que soient caractérisés les attributs spécifiques déterminant la toxicité des particules dans les études d'exposition. La métrologie personnelle du benzène s'est aussi développée. Des capteurs passifs désormais disponibles et, utilisés par exemple dans le cadre du programme européen Macbeth, ont montré une bonne sensibilité pour des niveaux de concentrations retrouvés en site urbain [Gonzalez-Flesca et al 1999].

Cette recherche comportera quatre dimensions :

- 1- caractérisation de la distribution des expositions personnelles de populations urbaines à certains métaux et composés organiques cancérigènes présents dans l'air sous forme particulaire (attachés aux particules $PM_{2,5}$ ou PM_{10}), ou gazeuse (benzène) selon les caractères des lieux de vie (sites industriels, présence de sources mobiles proches, situations de " fond " urbain...).
- 2- étude de la corrélation entre les expositions personnelles aux particules et les valeurs d'immission données par les réseaux de capteurs fixes de surveillance de la qualité de l'air, afin d'analyser, dans des situations diverses, les conditions de l'utilisation des données de surveillance pour estimer l'exposition des populations.
- 3- analyse de la génotoxicité des particules atmosphériques prélevées lors des études des expositions personnelles, en fonction des caractéristiques des lieux de leur collecte et de leur composition chimique.
- 4- caractérisation du risque lié aux cancérigènes présents en phase particulaire, ou lié au benzène, pour :
 - a- les populations urbaines ayant fait l'objet des enquêtes d'exposition personnelle ;
 - b- un plus large ensemble de populations urbaines françaises dont l'exposition aux polluants cancérigènes aura été estimée par extrapolation ou modélisation statistique à partir des données de surveillance de la qualité de l'air.

Cette caractérisation du risque à l'échelle des populations urbaines françaises permettra de situer les ordres de grandeur du risque carcinogène lié à l'exposition chronique de la population aux niveaux actuels, devenus relativement modestes, de la pollution atmosphérique.

3 MATERIELS ET METHODE

3.1 POPULATIONS ETUDIEES

Les résultats présentés dans ce rapport correspondent aux travaux menés à Grenoble dans le cadre d'une étude pilote. Ces travaux s'inscrivent dans le cadre d'un projet plus ambitieux (projet GENOTOX'ER), dans lequel seront également étudiés les sites de Paris, Rouen et Strasbourg. Ces agglomérations font partie du programme pilote de l'ADEME sur les nouveaux polluants à surveiller dans le cadre de la mise en œuvre de la Directive cadre de l'UE de 1996.

L'étude a porté sur des enfants de six à douze ans non exposés au tabagisme passif au domicile, ainsi que sur des adultes volontaires non-fumeurs non exposés professionnellement, à raison d'un effectif de 30 dans chaque groupe. Trois zones ont été déterminées : (i) l'hyper-centre, exposé au trafic automobile ; (ii) une zone représentative du fond urbain ; (iii) une zone influencée par des émissions industrielles. Dix enfants et dix adultes ont été recrutés par zone¹, avec le souci de minimiser la variance des expositions au sein de chaque strate (zone au sein de l'agglomération), tout en la maximisant entre strates². Le recrutement des 60 sujets s'est fait sur la base du volontariat, en stratifiant au sein de l'agglomération grenobloise des zones types.

La réalisation d'une étude à la fois sur des adultes et des enfants est justifiée aussi par le développement actuel des recherches sur les risques particuliers encourus par les enfants [Buffler et al 1999]. Les données actuelles sont insuffisantes pour fonder des approches d'évaluation du risque différentes dans ces deux segments de la population, et des travaux sont attendus sur les différences des conditions d'exposition, de susceptibilité et de toxicité des agents chimiques cancérigènes. Disposer de données comparatives sur les expositions permettra d'appliquer les outils d'évaluation du risque adaptés susceptibles d'être proposés dans la littérature au cours des années prochaines.

3.2 MESURE DE L'EXPOSITION PERSONNELLE

3.2.1 Echantillonnage des particules, du benzène et des gaz traceurs.

Pour l'échantillonnage des particules et des gaz traceurs nous avons utilisé l'appareillage multipolluants (ChemPass) développé par le département des sciences de l'environnement de Harvard [Chang et al 1999].

¹ Calcul de nombre de sujets nécessaire basé sur un contraste entre zone d'hyper-centre et de fond, de 10 µg/m³, un écart-type de 8 µg/m³, une puissance de 80 %, risque alpha = 5 % : n par groupe (effectifs égaux) = 10.

² Cela revient en pratique, à privilégier les sujets se déplaçant peu au-delà de leur zone de résidence, y compris pour leur activité professionnelle.

L'échantillonneur ChemPass est composé d'une pompe portable BGI (modèle 400), son débit est fixé à 5,2 l/mn (le débit des pompes a été contrôlé au moyen d'un débitmètre à bulle Buck, A.P), ce qui lui permet de répartir le flux entre les différents éléments de l'échantillonneur, positionnés sur un élutriateur (figure 1):

- Deux impacteurs pour l'échantillonnage des PM_{2.5} (1,8 l/mn) et des PM₁₀ (1,8 l/mn), équipées des filtres Téflon (Gelman , diamètre 37mm, porosité 2μ).
- deux mini-échantillonneurs PM_{2.5} pour l'échantillonnage de la fraction (0,8 l/mn) et des sulfates et nitrates (0,8 l/mn),
- deux échantillonneurs passifs pour la mesure des gaz traceurs O₃ et SO₂, NO₂ (badge OGAWA).

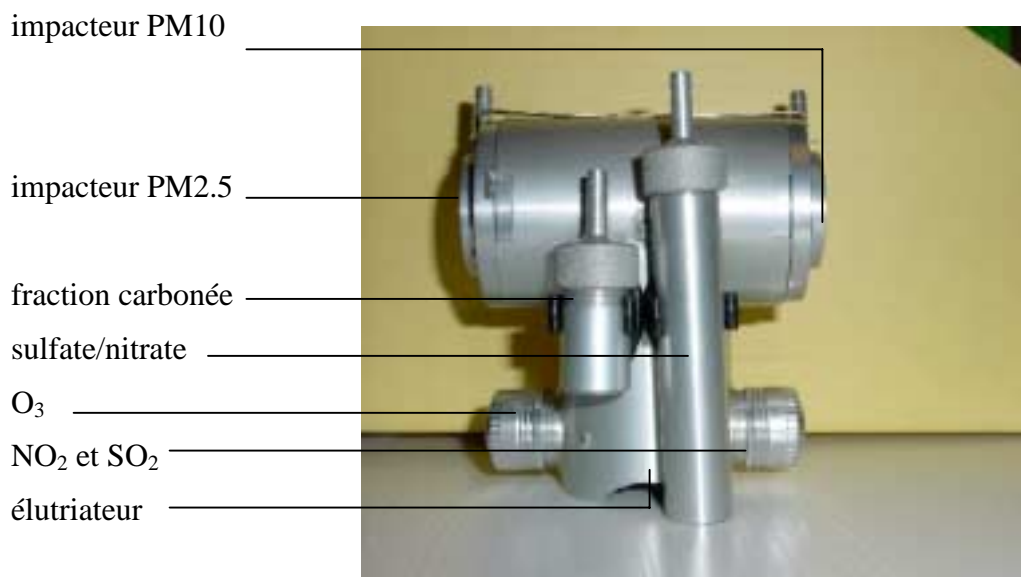


Figure 1 : échantillonneur ChemPass

Dans le cadre de l'étude pilote, l'échantillonneur ChemPass a été utilisé dans une version simplifiée (PM₁₀, PM_{2.5} et NO₂). Le dispositif a été complété par la mesure du benzène. Le benzène a été prélevé par diffusion passive au moyen d'un tube Radiello Perkin Elmer (poids approximatif de 10 g ; Bates et all, 1997). Il s'agit d'un tube fermé à une extrémité et chargé d'environ 100 mg d'adsorbant contenu dans une cartouche.

Le port des capteurs s'est effectué pendant 48 heures d'affilée, temps donnant une sensibilité suffisante des mesures aux concentrations habituellement observées. Les capteurs sont déposés et retirés au domicile par un enquêteur, sur rendez-vous. Lors de cette visite au domicile, l'enquêteur remplit un questionnaire sur le cadre de vie et explique comment remplir le document retraçant le BET (Budget Espace Temps). Les parents (pour les enfants) ou les volontaires adultes remplissent le BET à résolution temporelle de 15 minutes, au moyen d'un questionnaire standardisé déjà utilisé dans des études internationales (EXPOLIS) ou nationales (VESTA) [Jantunen et al 1998]. La répétition de cette description du BET individuel en différentes saisons (été/hiver) permettra de prendre en compte la variabilité saisonnière des profils d'activité. La résolution temporelle fine quart horaire du BET peut paraître superflue, l'objectif final étant l'évaluation du risque lié à une exposition chronique. Elle est cependant utile pour deux raisons. D'une part, elle facilitera la différenciation des environnements de vie des différents sous groupes de populations, dont la littérature indique que les BET ne sont pas très contrastés ; d'autre part, elle permettra, sans surcoût élevé, de collecter des données qui permettront par ailleurs d'analyser de manière plus approfondie certains déterminants de l'exposition dans les locaux.

3.2.2 Analyse gravimétrique et composition chimique des particules

L'analyse gravimétrique a été réalisée sur une microbalance Mettler type MT5 sensible au microgramme. Les filtres vierges et échantillonnés ont été pesés après déionisation (type Multistat EI-RN) pour s'affranchir des forces électrostatiques. Les pesées des filtres ont été réalisées à l'INERIS, suivies d'une mesure de l'indice des fumées noires, bon indicateur des suies de combustion [Kinney et al 2000, Roemer et al 2001].

Les teneurs en éléments minéraux, notamment en métaux cancérigènes, ont été analysées par la technique physique PIXE (Particle Induced X-ray Emission) [Guégan et al. 2000]. Le laboratoire ARCANE-CENBG maîtrise cette technique utilisée actuellement dans le cadre d'un projet financé par Primequal.

Les teneurs en Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP) ont été déterminées par l'INERIS (méthode de référence du NIOSH) : extraction aux ultra-sons par 30ml d'acétonitrile de qualité HPLC pendant ½ heure. Concentration de 15ml de l'extrait jusqu'à un volume d'environ 1ml ; analyse par HPLC détection fluorimétrique (chaîne DIONEX prévue pour le dosage de traces avec un programme prévoyant 9 changements de longueur d'onde) ; concentration de 15ml de l'extrait en présence de 100µl de DMSO et reprise à 1ml de DMSO. Une partie de l'extrait a ensuite été adressé à l'INSERM U420, chargée des tests de génotoxicité.

3.2.3 Etude de la génotoxicité des particules atmosphériques

Les filtres à particules prélevées seront analysés par l'INSERM à Nancy (équipe EMBRE, Michel Joyeux), en vue de caractériser leur potentiel génotoxique par le test d'altération primaire de l'ADN (test des comètes), avec blocage enzymatique, technique analytique très sensible.

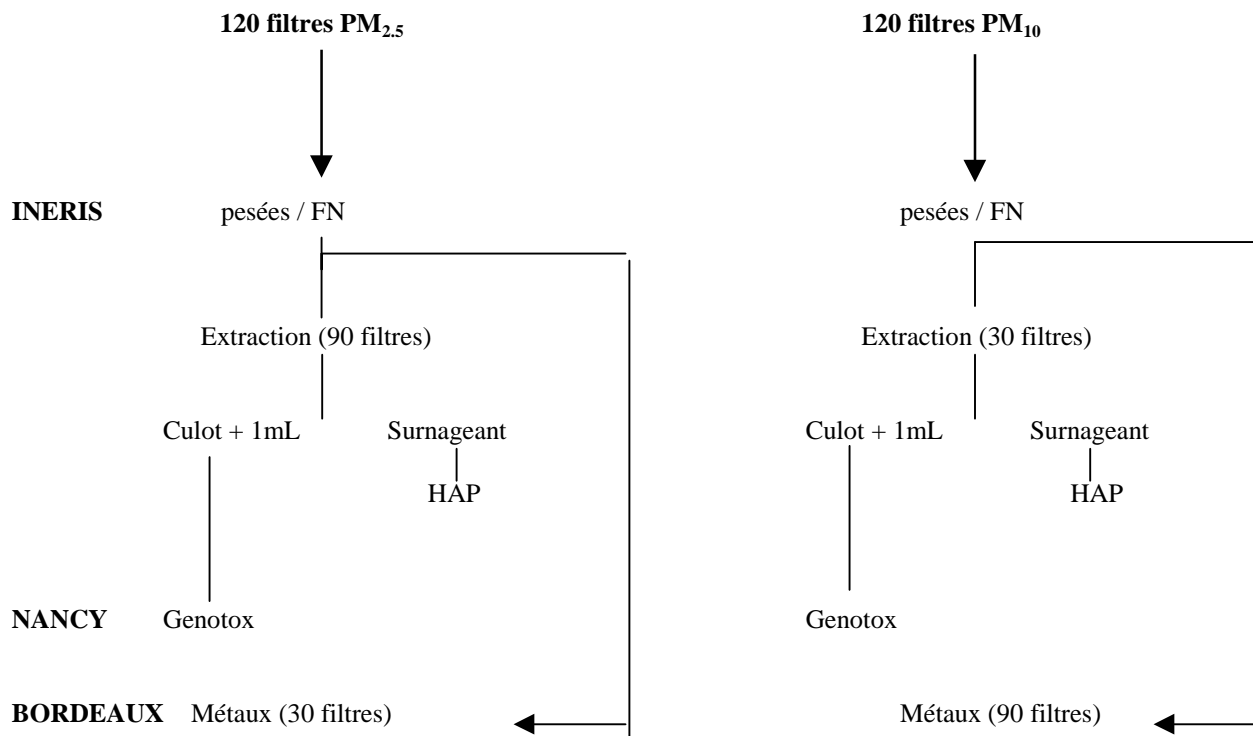
3.2.4 Séquence analytique à suivre pour les filtres échantillonnés et nombre d'échantillons

Dès le début de l'étude pilote, il est apparu que l'analyse des filtres par la méthode PIXE entraînait une perte par volatilisation des HAP lors de la mise sous vide nécessairement opérée. C'est pourquoi il a été décidé de faire suivre deux voies analytiques distinctes aux filtres prélevés, respectivement, les filtres de particules $PM_{2.5}$ et PM_{10} , tout en ménageant une part de comparaison des teneurs en métaux et HAP de ces 2 fractions granulométriques sur des filtres appariés (même sujet), selon la séquence suivante :

- pesée et analyse des fumées noires à l'INERIS
- analyse des éléments minéraux par PIXE sur une partie des filtres
- extraction des composés organiques des autres filtres :
- analyse des HAP sur une moitié de l'extrait
- étude de la génotoxicité sur l'autre moitié.

Pour Grenoble, les mesures ont porté sur 30 enfants et 30 adultes volontaires. Leur exposition a été explorée au cours de deux saisons (une dite «hiver» de janvier à mars, l'autre «été» de mai à juillet). Le dispositif de prélèvement des particules a permis d'échantillonner, pour chaque sujet et pour chaque saison, un filtre de $PM_{2.5}$ et un filtre de PM_{10} , un badge NO_2 et un tube pour la mesure du benzène, soit un total de 120 filtres $PM_{2.5}$ et autant de PM_{10} , qui ont été répartis de la manière suivante³ :

³ Alors que la répartition entre filtres destinés aux analyses minérales et organiques a été de 50/10 (et inversement, selon qu'il s'agit de $PM_{2.5}$ ou de PM_{10}) pour la première phase de l'étude pilote, elle sera de 45/15 (et inversement) à partir de la seconde phase et pour les autres villes (70/20 à Paris), afin de faciliter l'étude des corrélations.



Ainsi 120 filtres PM_{2,5} et autant de PM₁₀ suivront leur circuit complet mais distinct, les premiers vers les HAP et le test de genotoxicité, les seconds vers les métaux. En dérivant 30 filtres (10 à 15 enfants/10 à 15 adultes, choisis de telle sorte qu'ils présentent des masses de particules déposées contrastées) de chaque fraction granulométrique vers le circuit complémentaire, on s'assure ainsi de pouvoir analyser la correspondance entre teneurs en HAP et métaux des filtres appariés, avec l'espoir de pouvoir extrapoler les résultats obtenus sur la série complète.

Tous les badges à diffusion passive NO₂ et benzène ont été analysés.

3.3 PROTOCOLE DE VALIDATION ET ETUDE PILOTE A GRENOBLE

3.3.1 Répétabilité de la mesure des pompes portatives en condition de terrain (Grenoble : Laboratoire de Santé Publique)

Ce travail a consisté à faire une série de mesures afin d'étudier la répétabilité des mesures des particules fines en condition de terrain. Il a eu lieu en avril et mai entre les deux campagnes de mesures chez les volontaires à Grenoble. Pour cela, une dizaine de personnes ont porté un sac à dos contenant 2 pompes identiques, les 2 dispositifs fonctionnant en parallèle pendant 48 heures en continu. Les duplicas ainsi obtenus (à la fois de PM_{2.5} et de PM₁₀) ont été soumis à l'analyse gravimétrique. Les résultats qui suivent ne portent que sur 4 couples, d'autres séries de tests sont en cours.

	PM2.5 (µg/m3)	Coefficient de Variation*	PM10 (µg/m3)	Coefficient de Variation*
1er couple	50.22	0.38	61.82	5.06
	49.95		57.56	
2e couple	12.57	11.78	15.44	4.55
	10.64		16.47	
3e couple	22.31	5.65	24.86	0.56
	20.60		24.66	
4e couple	16.23	3.43	23.45	13.58
	17.04		19.34	
	CV moyen (%)	5.31	CV moyen (%)	5.94

* CV = coefficient de variation (%) = $\sqrt{2} \cdot [(C1-C2)/(C1+C2)] \cdot 100$

Sur ces premières données, la répétabilité des mesures est très correcte, avec un coefficient de variation comparable (de l'ordre de 5 %) pour les deux fractions granulométriques.

3.3.2 Comparaison des pompes portatives aux appareils de mesure utilisés par les réseaux de surveillance en poste fixe

Les pompes ont été mises en parallèle avec les appareils TEOM en poste fixe de surveillance de la qualité de l'air par l'ASCOPARG, à Grenoble, sur la station du Rondeau, pendant 48 h en continu, à 5 reprises en avril et mai 2001. Ce site est considéré comme un site de proximité du trafic automobile (bordure de rocade).

		PM2.5 (µg/m3)	Coefficient de Variation*	PM10 (µg/m3)	Coefficient de Variation*
14/05 (10h35) - 16/05 (10h35)	Chempass 3400	32.77	29.49	33.46	1.88
	Station fixe	21.46		32.58	
09/05 (15h15) - 11/05 (15h20)	Chempass 3400	33.32	15.62	38.32	5.91
	Station fixe	26.69		41.66	
02/05 (13h20) - 04/05 (12h15)	Chempass 3400	23.97	29.53	24.90	6.01
	Station fixe	15.69		22.87	
25/04 (10h00) - 27/04 (10h00)	Chempass 3400	24.17	28.89	24.94	2.22
	Station fixe	15.97		24.17	
23/04 (10h15) - 25/04 (09h45)	Chempass 3400	24.81	11.26	Perdu	
	Station fixe	21.15		29.93	
		CV moyen (%)	22.96	CV moyen	1.05

* CV = coefficient de variation (%) = $\sqrt{2} \cdot [(C1-C2)/(C1+C2)] \cdot 100$

Cette étude comparative montre une excellente concordance des mesures pour les PM10, mais une masse des PM2.5 systématiquement plus élevée pour le dispositif portable que pour l'appareil fixe TEOM. Ce point devra être contrôlé par une nouvelle série de mesures qui se déroulera en 2002 (programme du LCSQA).

L'objectif des travaux proposés sera de comparer les mesures issues des dispositifs portables et des préleveurs de stations fixes. Les intercomparaisons porteront sur l'analyse gravimétrique pour les fractions PM10 et PM2.5 et les concentrations en HAP, métaux lourds. Les mesures seront réalisées sur une seule ville mais sur deux sites différents. Les sites seront retenus en fonction du choix de la campagne GENOTOX'ER mais en favorisant un site de fond et un site trafic ou industriel, de façon à balayer différents niveaux de concentration. Les échantillonneurs portatifs retenus pour les essais seront ceux utilisés pour l'étude GENOTOX'ER.

3.3.3 Tests de la variabilité des teneurs en HAP en fonction de la température de conservation des filtres téflon (INERIS et Labo Santé Publique)

Ces tests, réalisés au cours du printemps 2001 à Grenoble, avaient pour objectif de déterminer s'il était nécessaire de conserver les échantillons à -20°C ou si la conservation à $+4^{\circ}\text{C}$ permettait de conserver les HAP. Ils ont été réalisés sur 4 séries de dupliquas obtenus en condition de terrain. Les résultats ne mettent pas en évidence de différences significatives entre les échantillons (Annexe A). Cependant, il a été convenu par précaution, de stocker les filtres prélevés à -20°C et d'assurer une température inférieure à 4°C pendant les transports d'échantillons.

3.3.4 Tests de la résistance des cellules utilisées lors des tests génotoxiques aux solvants d'extraction des HAP (INSERM U420)

Les essais de tests de comètes réalisés sur des échantillons obtenus en conditions réelles extraits par l'acétonitrile ont entraîné une mortalité des cellules testées. La reprise de l'extrait par DMSO, tel qu'appliqué actuellement dans le protocole, permet de réduire le caractère clastogène de l'acétonitrile.

4 RESULTATS

Les résultats présentés ci-après ont été obtenus à partir des mesures réalisées à Grenoble au cours de la campagne hivernale.

4.1 POPULATION ETUDIEE

	HYPERCENTRE		RESIDENTIEL		INDUSTRIEL		ENSEMBLE	
	Adulte	Enfant	Adulte	Enfant	Adulte	Enfant	Adulte	Enfant
N	10	9	10	8	10	9	30	26
SEXE								
F	12 (63.2 %)		11 (61.1 %)		10 (52.6 %)		33 (57.9 %)	
H	7 (36.8 %)		7 (38.9 %)		9 (47.4 %)		23 (40.4 %)	
sexe ratio	0.58		0.63		0.90		0.69	
AGE								
moyenne (e.t)	48.2 (8.5)	9.8 (2.0)	42.7 (13.6)	10.1 (2.5)	46.5 (10.9)	12.4 (1.6)	45.8 (11.1)	10.4 (3.1)

tableau 1 : Description de la population étudiée

4.2 RESULTATS GRAVIMETRIQUES

Les résultats présentés dans le tableau 2 portent sur 58 filtres PM_{2.5} et 58 filtres PM₁₀. Ils semblent montrer des concentrations de PM_{2.5} et PM₁₀ plus fortes chez les volontaires enfants que celles des adultes, excepté en secteur industriel. On notera que les résultats obtenus pour certains volontaires ne confirment pas le classement en secteur (type d'environnement), qui avait été fait *a priori* en fonction des adresses des domiciles et des lieux de travail. Le classement final par secteur devra tenir compte de l'analyse détaillé des Budgets Espace Temps.

concentrations exprimées en µg/m ³		HYPER-CENTRE			RESIDENTIEL			INDUSTRIEL			ENSEMBLE
		Enfant n=10	Adulte n=10	Tot n=20	Enfant n=10	Adulte n=10	Tot n=20	Enfant n=8	Adulte n=10	Tot n=18	N=58
PM_{2.5}	Moyenne	28.8	22.7	25.8	36.5	27.3	31.9	33.9	41.8	37.9	31.8
	Ecart type	9.5	6.7	8.1	17.4	9.9	13.7	10.4	21.0	15.7	14.5
	Minimum	10.5	13.7	10.5	13.1	16.3	13.1	18.1	11.7	11.7	10.5
	Maximum	45.1	34.6	45.1	70.7	45.3	70.7	48.1	82.2	82.2	82.2
PM₁₀	Moyenne	37.4	23.5	30.5	43.7	27.4	35.6	39.1	51.3	45.2	37.1
	Ecart type	13.3	5.4	9.4	19.1	6.5	12.8	10.7	24.6	17.7	17.3
	Minimum	14.9	16.3	14.9	17.5	19.0	17.5	21.4	17.0	17.0	14.9
	Maximum	64.9	32.1	64.9	86.6	38.8	86.6	55.3	87.6	87.6	87.6
Ratio Pm_{2.5}/PM₁₀ moyen		0.78	0.96	0.9	0.83	0.98	0.9	0.87	0.81	0.8	0.9

tableau 2 : Concentrations de particules selon les différents secteurs et par strates d'âge

4.3 RESULTATS DE LA MESURE DE LA REFLECTANCE

Les mesures de réflectance en lumière verte ont été effectuées à l'issue de la pesée dans la chambre de pesée de l'INERIS. Tous les filtres PM_{2.5} et tous les filtres PM₁₀ sont passés au réflectomètre. Les mesures sont réalisées sous une température moyenne de 20 °C et sous une humidité relative de 50 %. La réflectance d'un filtre vierge est de 100 %, celle d'un filtre empoussiéré n'est plus que de X %.

Le tableau 3 présente les pourcentages de réflectance obtenus à partir de 48 filtres PM_{2.5} et PM₁₀ déjà échantillonnés et pesés. Les pourcentages de réflectance obtenus en secteur résidentiel et hypercentre semblent être moins élevés qu'en secteur industriel, ce qui pourrait indiquer que les particules de ce dernier secteur contiennent en part relative sur l'ensemble du filtre moins de suies de combustion qu'en centre urbain ; il ne s'agit que d'une hypothèse de travail. L'activité industrielle principale de la zone étudiée, au sud de Grenoble, est la chimie.

		HYPER-CENTRE			RESIDENTIEL			INDUSTRIEL			ENSEMBLE
		Erfant n=10	Adulte n=10	Tot n=20	Erfant n=10	Adulte n=10	Tot n=20	Erfant n=8	Adulte n=10	Tot n=18	N=58
% reflectance PM25	Moyenne	75	73	74	78	66	72	88	69	79	75
	Ecart type	9	16	13	15	19	17	9	15	12	15
	Minimum	54	55	54	57	28	28	74	46	46	28
	Maximum	85	98	98	100	95	100	100	87	100	100
% reflectance PM10	Moyenne	67	65	66	74	67	71	89	65	77	71
	Ecart type	6	12	9	14	24	19	16	22	19	18
	Minimum	55	47	47	48	25	25	46	38	38	25
	Maximum	75	84	84	92	98	98	100	100	100	100

tableau 3 : Pourcentages de réflectance selon les différents secteurs et par strates d'âge

4.4 COMPOSITION EN ELEMENTS MINERAUX DES PARTICULES

Les tableaux 4 et 5 présentent les concentrations (en ng/m³) des éléments minéraux captés sur les fractions PM₁₀ et PM_{2.5}, selon la zone d'étude. Les effectifs sont faibles (surtout pour les PM_{2.5} qui, selon le schéma de répartition des filtres indiqué précédemment, sont surtout destinés aux analyses organiques et toxicologiques), mais ils suggèrent des valeurs plus élevées en zone industrielle (cf figure 2 portant sur les PM_{2.5}). En raison de l'énergie du rayon incident utilisé par l'analyse PIXE, le rayonnement réémis par l'atome de Cd est parasité par d'autres longueurs d'onde ce qui ne permet pas au détecteur de repérer cet élément de manière efficace. Compte tenu du type de membrane employée, le bruit de fond généré par l'échantillon est en effet très élevé dans la zone d'énergie où apparaissent les raies X du cadmium. Ainsi, les teneurs auxquelles est présent cet élément dans les environnements étudiés sont inférieures à la limite de détection de la méthode, mise en œuvre avec ces paramètres expérimentaux.

Tableau 4 : Concentrations (en ng/m³) des éléments minéraux composant les PM 10 selon la zone d'étude

	[C] en µg/m ³	Al	Si	P	S	Cl	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Br	Sr	Zr	Cd*	Pb	
Industriel (n=15)																							
Moyenne	44	922	2944	194	1448	417	420	2021	62	11	5	16	392	9	22	110	1	9	6	14			16
Ecart-type	19	593	2075	96	814	182	184	1254	70	6	3	9	224	6	31	84	2	10	10	36			18
% relatif	44	64	70	50	56	44	44	62	113	57	63	55	57	68	142	77	212	121	175	258			108
Proximité (n=13)																							
Moyenne	31	481	1274	110	1278	265	349	1183	27	2	5	9	234	4	26	124	2	4	3				23
Ecart-type	9	471	892	61	605	126	127	855	28	2	5	5	82	3	24	110	2	4	7				24
% relatif	28	98	70	56	47	48	36	72	107	122	96	49	35	73	90	88	132	89	246				106
Fond (n=15)																							
Moyenne	38	793	2185	195	1187	428	527	1789	34	3	6	11	332	4	20	146		3	7				31
Ecart-type	17	603	1681	103	798	279	341	1594	27	2	6	6	177	2	15	158		4	10				38
% relatif	45	76	77	53	67	65	65	89	78	67	102	57	53	41	75	108		151	153				122

* valeurs pour Cd inférieures au seuil de détection

Tableau 5 : Concentrations (en ng/m³) des éléments minéraux composant les PM2.5 selon la zone d'étude

	[C] en µg/m ³	Al	Si	P	S	Cl	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Br	Sr	Zr	Cd*	Pb
Industriel (n=4)																						
Moyenne	69	1218	3818	617	2640	762	692	2540	66	19	11	24	559	20	36	191	2	22		92		46
Ecart-type	33	762	2315	701	1573	448	303	2011	45	13	6	11	269	16	34	123	3	15		85		39
% relatif	48	63	61	114	60	59	44	79	68	67	52	45	48	77	93	64	200	71		92		85
Proximité (n=4)																						
Moyenne	27	139	565	31	1667	268	433	1152	10	3	2	10	138	2	20	131				9		31
Ecart-type	13	98	175	62	1332	191	238	1743	6	2	2	5	42	2	6	78				18		32
% relatif	49	71	31	200	80	71	55	151	57	72	120	53	30	120	31	60				200		103
Fond (n=2)																						
Moyenne	31	409	1157	150	2319	251	339	1051	13		3	11	199	3	13	100		7				
Ecart-type	14	280	730	213	1592	54	182	1055	9		0	2	46	4	2	29		10				
% relatif	46	69	63	141	69	21	54	100	67		2	14	23	141	15	29		141				

* valeurs pour Cd inférieures au seuil de détection

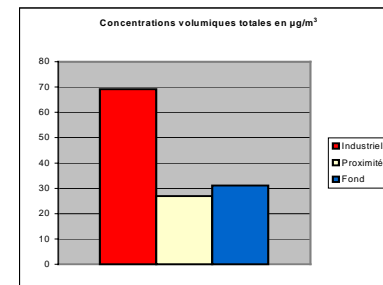
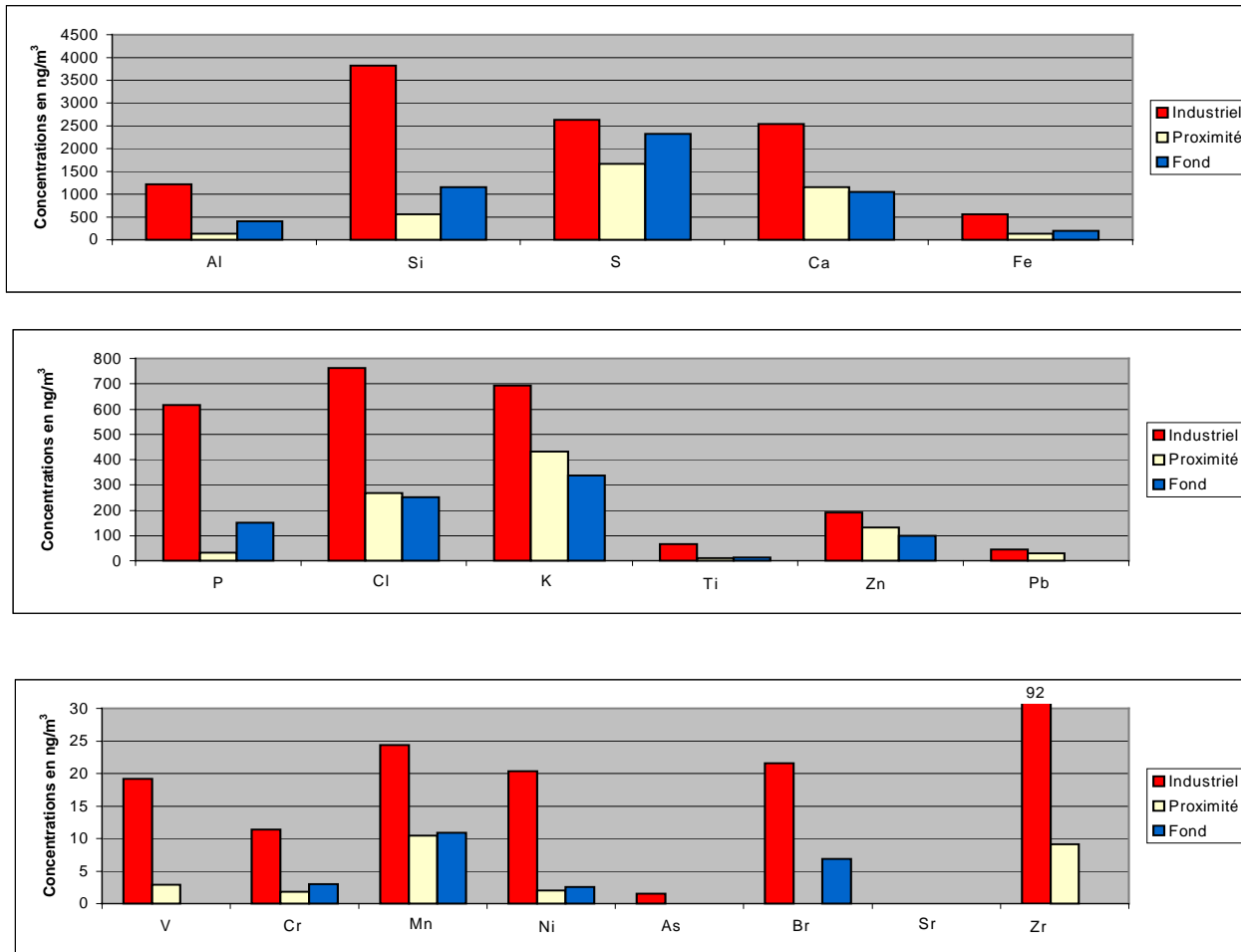


Figure 2 : Représentation graphique des concentrations massiques moyennes (en ng/m³) des éléments minéraux des PM2.5

4.5 COMPOSITION EN HAP DES PARTICULES

Les HAP ont été analysés principalement sur les filtres des particules PM2.5, comme indiqué plus haut. Quinze HAP ont été analysés⁴, dont les seuils de détection analytiques varient de 0,2 à 4 ng (estimée en masse de HAP déposée sur les filtres). Compte tenu du nombre important de données disponibles, le tableau 6 se limite à la présentation des résultats pour le B(a)P et pour la somme des 15 HAP mesurés (la totalité des données est disponible pour les 15 HAP annexe B), pour les filtres PM2.5 (n= 46 pour la période hivernale) et pour les PM10 (n=9). Il est bien entendu prématuré d’interpréter ces résultats partiels, pour ce qui concerne les contrastes entre zones et catégories de sujets. On notera simplement que les concentrations de BaP sont de l’ordre de grandeur des valeurs limites recommandées par le Conseil Supérieur d’Hygiène Publique de France.

		HYPER-CENTRE			RESIDENTIEL			INDUSTRIEL			Σ
		Enfant n=8	Adulte n=8	Total n=16	Enfant n=9	Adulte n=8	Total n=17	Enfant n=6	Adulte n=7	Total n=13	N=46
B(a)P	Moy	0.49	0.53	0.51	0.56	0.76	0.66	0.20	0.31	0.25	0.47
	σ	0.43	0.24	0.34	0.47	0.78	0.62	0.12	0.17	0.14	0.37
	Min	0.13	0.05	0.05	0.18	0.12	0.12	0.05	0.14	0.25	0.05
	Max	1.46	0.86	1.46	1.36	2.27	2.27	0.31	0.53	3.00	3.00
Total HAP	Moy	5.58	5.33	5.46	6.21	7.88	7.05	3.47	3.90	3.69	5.40
	σ	5.58	2.47	4.03	2.94	6.52	4.73	1.71	1.92	1.82	3.53
	Min	2.91	1.22	1.22	2.74	2.22	2.22	0.88	1.69	4.80	1.22
	Max	11.84	7.51	11.84	11.70	20.94	20.94	5.23	6.88	39.00	39.00

tableau 6 : Concentration des HAP selon les différents secteurs et par strate d’âge
(concentrations exprimées en ng/m³)

⁴ Naphtalène (seuil de détection <2 ng) ; Acénaphène (<1) ; Fluorène (<1) ; Phénanthrène (<1) ; Anthracène (<0,2) ; Fluoranthène (<2) ; Pyrène (<0,5) ; B(a)A (<0,5) ; Chrysène (<0,5) ; B(b)F (<1 ng) ; B(k)F (<0,2) ; B(a)P (<0,5) ; D(a,h)A (<0,5) ; B(g,h,i)P (<1) ; In (1,2,3,c,d)P (<4).

4.6 RESULTATS DES ANALYSES DE BENZENE

Les analyses qualitatives et quantitatives ont été réalisées en CG-FID ou CG-SM sur colonne Chrompack type CPSIL 5-CB (50 m ; 0,32 mm ID ; 1,2 µm).

Ces résultats portent sur 56 volontaires et sur une exposition de 48 heures ; ils suggèrent des valeurs élevées en site industriel.

concentrations exprimées en µg/m ³		HYPER-CENTRE			RESIDENTIEL			INDUSTRIEL			ENSEMBLE
		Enfant n=10	Adulte n=10	Tot n=20	Enfant n=10	Adulte n=10	Tot n=20	Enfant n=6	Adulte n=10	Tot n=16	N=56
benzène	Moyenne	10.0	6.0	8.0	8.0	7.0	7.5	8.0	11.0	9.5	8.3
	Ecart type	10.0	3.0	6.5	4.0	3.0	3.5	3.0	4.0	3.5	5.2
	Minimum	3.3	3.6	3.3	2.9	3.7	2.9	4.1	4.8	4.1	2.9
	Maximum	36.3	13.6	36.3	13.9	12.6	13.9	11.1	20.2	11.1	36.3

tableau 7 : Concentration de benzène selon les différents secteurs et par strates d'âge

4.7 RESULTATS DES ANALYSES DE NO₂

Ces résultats portent sur 57 volontaires.

concentrations exprimées en µg/m ³		HYPER-CENTRE			RESIDENTIEL			INDUSTRIEL			ENSEMBLE
		Enfant n=10	Adulte n=9	Tot n=19	Enfant n=10	Adulte n=10	Tot n=20	Enfant n=8	Adulte n=10	Tot n=18	N=57
NO₂	Moyenne	24.0	33.0	28.5	25.0	30.0	27.5	19.0	26.0	22.5	26.2
	Ecart type	11.0	15.0	13.0	7.0	11.0	9.0	8.0	11.0	9.5	11.1
	Minimum	11.0	21.0	11.0	15.0	12.0	12.0	6.0	13.0	6.0	6
	Maximum	45.0	72.0	72.0	37.0	44.0	44.0	25.0	52.0	52.0	72

tableau 8 : Concentration de NO₂ selon les différents secteurs et par strates d'âge

4.8 RESULTATS DES TESTS DE GENOTOXICITE

Les résultats présentés sont encore incomplets, l'ensemble des échantillons n'ayant pas encore été exploité. Les tests sont réalisés sur cellules Hela S3, exposées pendant 24 heures aux extraits réalisés à partir des filtres de particules (dont ici 9 filtres PM10 - n°1 à 9 et 32 filtres PM2.5 – n° 10 à 41, plus un témoin par série de filtres analysés). La figure ci-dessous présente le pourcentage de migration de l'ADN (fluorescence) migrant hors du noyau au cours de la phase d'électrophorèse des essais comètes.

Chaque point correspond à la moyenne de 100 lectures, le point 42 correspond à la moyenne des différentes séries témoins (600 lectures). Les modifications méthodologiques apportées en vue d'augmenter la sensibilité du test ont pu être testées au cours de cette phase de faisabilité du projet. Une majoration du niveau de dose testé est envisagé afin d'amplifier les tendances déjà observées.

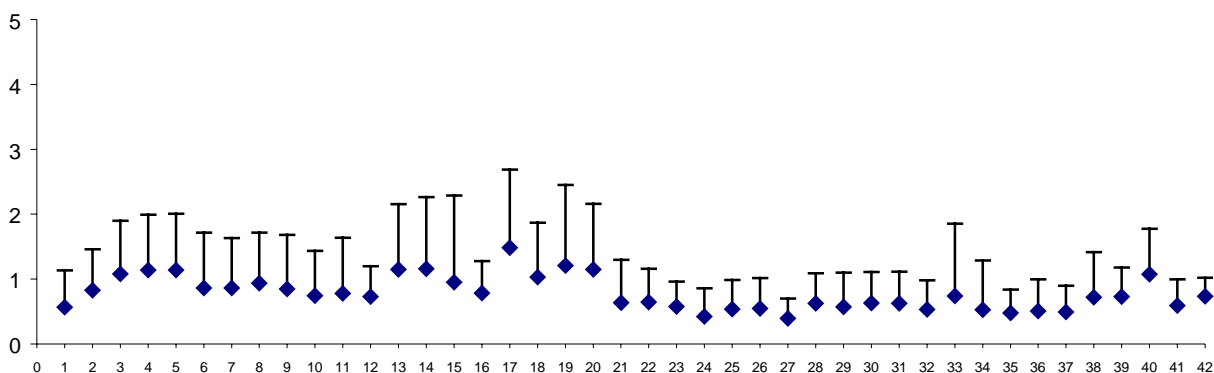


Figure 3 : Pourcentage de migration de l'ADN en présence des extraits organiques réalisés sur les filtres

5 DISCUSSION

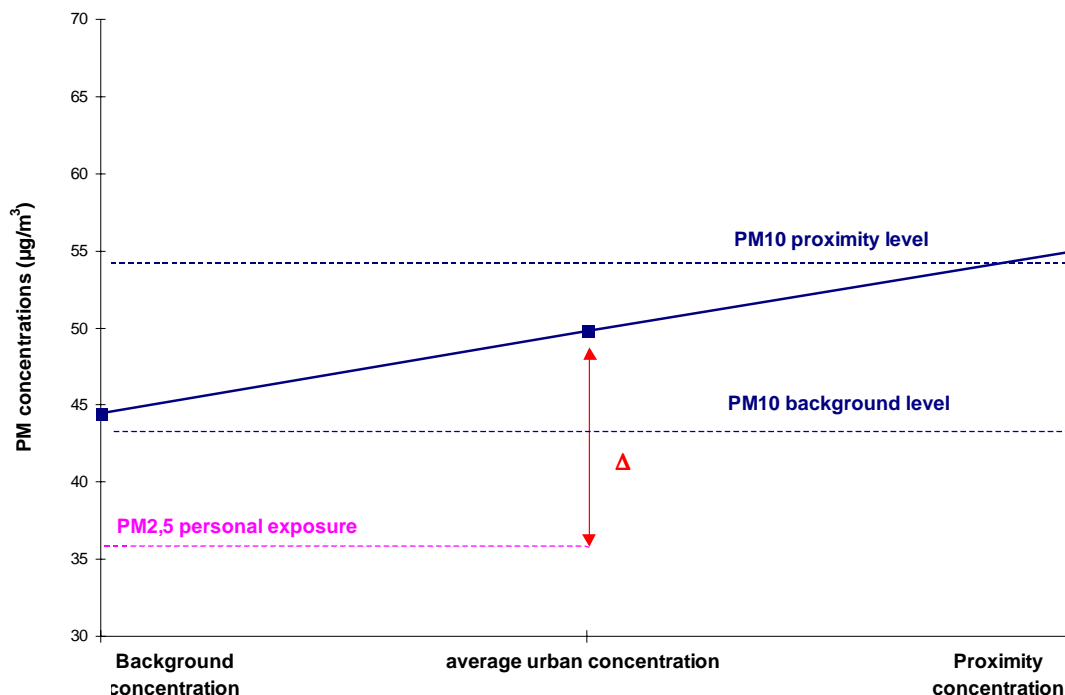
Les données qui ont été présentées permettent uniquement d'attester de la faisabilité du projet. Toute interprétation des résultats de cette phase pilote serait bien sûr hasardeuse. Cependant, une fois les données complètes rassemblés, plusieurs pistes pourront être avancées pour une plus large estimation de l'exposition des populations urbaines et pour une meilleure caractérisation du risque de cancer.

5.1 ESTIMATION DE L'EXPOSITION DES POPULATIONS URBAINES

La lourdeur des explorations de l'exposition personnelle ne permet pas de réaliser de telles études à l'échelle de vastes populations. Il paraît cependant possible d'estimer l'exposition de populations urbaines, dans leur diversité, en valorisant les données collectées dans le cadre de la surveillance de la qualité de l'air, selon une voie déjà explorée dans le cadre de l'étude EXPOLIS [Boudet et al 2001]. Il s'agit de comparer, pour chaque sujet, les valeurs d'immission des PM₁₀ fournies par les divers capteurs fixes, d'une part, et l'exposition personnelle, d'autre part, pour les mêmes jours de mesure. Pour s'affranchir de la grande dispersion des expositions individuelles, l'analyse consiste à estimer la valeur d'un facteur de translation Δ_i (en $\mu\text{g}/\text{m}^3$), qui assure la correspondance exacte entre l'exposition individuelle et la moyenne des immissions du réseau (capteurs de fond et capteurs de proximité). Chaque sujet doit être caractérisé au préalable, grâce aux informations recueillies sur son budget espace temps, comme étant mieux représenté par un capteur de fond ou de proximité, considérant respectivement ses lieux de domicile et de travail (ou d'école pour les enfants). Les critères utilisés habituellement par les réseaux pour cette classification sont les suivants : toute personne habitant et/ou travaillant dans une bande inférieure à 50 m d'une voirie ayant une intensité de trafic supérieure à 10 000 veh./j, est considérée comme vivant en zone de proximité. Dans tout autre cas, la personne réside et/ou travaille en zone de fond. Différents critères de fond ou de proximité seront explorés.

En transformant ainsi la moyenne des valeurs d'immission mesurées par des capteurs de fond et de proximité, on peut approcher les valeurs d'exposition mesurées par les capteurs personnels. Ceci représente la correction à appliquer, pour le polluant considéré, aux valeurs d'immission des capteurs fixes (figure 4, issue de [Boudet et al 2001]). A partir de telles données individuelles fines, l'exposition de différents sous-groupes de population peut ainsi être décrite, en distinguant de grandes catégories de personnes sur la base de leurs principaux lieux de vie (domicile, travail/école) et de leur budget espace temps. C'est cette approche collective au niveau de groupes de sujets aux typologies d'expositions contrastées, qui permettra d'utiliser au mieux les résultats de ce travail dans le but de l'évaluation du risque au sein de la population urbaine.

Figure 4 : Détermination de la relation entre immissions et exposition personnelle pour un sujet (exemple issu de l'étude Expolis [Boudet et al 2000])



La possibilité de disposer de résultats d'exposition personnelle à la fois aux particules PM_{10} et aux particules $PM_{2.5}$ au moyen des nouveaux capteurs de Harvard représente un avantage par rapport à cette première approche dans la mesure où cela permet d'établir directement des corrélations entre particules de même granulométrie, les dispositifs de surveillance ne mesurant habituellement que les PM_{10} . Appliquée au cas du NO_2 , sur la base des données recueillies pour les enfants participant à l'étude Vesta, cette approche ne s'est pas confirmée pertinente [Gauvin et al soumis], ce qui suggère que son caractère prédictif puisse dépendre du polluant considéré. Ceci justifie l'intérêt de tester cette approche dans des situations urbaines contrastées afin de dégager des systèmes suffisamment robustes de modélisation n'exigeant pas de disposer de données individuelles détaillées d'emploi du temps dans l'espace. Des travaux de même inspiration ont été conduits ailleurs sur des hydrocarbures aromatiques polycycliques, en confrontant des données d'exposition personnelle et des données de concentrations dans différents microenvironnements [Sisovic et al 1996].

La construction de systèmes de pondération adaptés à différents profils urbains et à différents sous-ensembles de populations permettra de tenter d'extrapoler ces résultats pour un grand nombre d'agglomérations urbaines en France pour lesquelles les données d'immission mesurées par les réseaux de surveillance de la qualité de l'air pourront ainsi être traduites en termes d'exposition de la population aux particules fines. En multipliant les lieux d'étude, il pourra s'avérer utile de recourir aux techniques de SIG (Systèmes d'Information Géographique), qui peuvent grandement faciliter l'affectation des personnes aux différents types de capteurs, selon les caractères de leur environnement professionnel et domiciliaire. L'exposition aux polluants cancérogènes organiques ou inorganiques pourra ainsi être estimée sur une plus large échelle à partir des teneurs mesurées dans les particules prélevées dans les études d'exposition personnelle.

Disposant de données individuelles sur les caractères des lieux de vie des participants à l'étude, il sera également possible, dans un travail spécifique, d'analyser plus finement le rôle respectif de sources d'émission intérieures dans la composition chimique des particules.

5.2 CARACTERISATION DU RISQUE DE CANCER

L'ensemble des informations collectées dans ce travail aux multiples dimensions sera alors intégrées pour servir à la caractérisation du risque de cancer. L'évaluation qualitative et quantitative du risque sera faite d'une part directement pour les populations ayant fait l'objet des études personnelles d'exposition (sous l'hypothèse d'une situation représentative d'une longue période), et d'autre part par extrapolation à l'échelle de plus vastes populations urbaines en France, en estimant les données d'exposition par modélisation statistique à partir des résultats de la surveillance environnementale (sous l'hypothèse d'une bonne représentativité des populations étudiées dans le projet). L'exposition ainsi caractérisée, le risque et l'impact pourront être estimés en introduisant, pour les différentes substances identifiées, les valeurs de risque unitaire publiées dans les bases de données spécialisées (en particulier la base IRIS de l'US-EPA). Une évaluation du risque réalisée aux Etats-Unis sur la base d'une modélisation des émissions industrielles et du trafic urbain, a mis en évidence le poids des HAP, du benzène et du chrome dans le risque de cancer (risque médian de $1,8 \cdot 10^{-4}$) [Woodruff et al 2000]. Ce travail permettra la comparaison du risque ainsi estimé selon le type d'environnement urbain, dans 4 grandes agglomérations urbaines. Les principales incertitudes attachées à ces exercices d'estimation seront discutées.

6 REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

Barale R, Giromini L, Ghelardini G et al. Correlations between 15 Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAH) and the mutagenicity of the total PAH fraction in ambient air particles in La Spezia (Italy). *Mutat Res*, 1991, 249 : 227-41.

Barbone F, Bovenzi M, Cavallieri F, Stanta G. Air pollution and lung cancer in Trieste, Italy. *Am J Epidemiol*, 1995, 141 : 1161-9.

Bhatia R, Lopipero P, Smith AH. Diesel exhaust exposure and lung cancer. *Epidemiology*, 1998, 9 : 84-91.

Beeson WL, Abbey DE, Knutsen SF. Long term concentrations of ambient air pollutants and incident lung cancer in California adults : results from the AHSMOG study. *Environ Health Perspect*, 1998 ; 106 : 813-23.

Boudet C, Zmirou D, Vestri V. Can one use air concentration data to estimate personal and population exposures to particles ? An approach within the Expolis study. *Sc Tot Environ*, 2001 (à paraître).

Boudet C, Zmirou D, Poizeau D, Vestri V. Fraction of PM_{2.5} personal exposure attributable to urban traffic : a modeling approach. *Inhal. Toxicol*, 2000, 12 (Sup.1) : 41-53.

Buffler PA, Kyle AD. Carcinogen risk assessment guidelines and children. *Environ Health Perspect*, 1999, 107 : 286-8.

Chang IT, Sarnat J, Wolfson JM, Rojas-Bracho L, Suh HH, Koutrakis P. Development of a personal multi-pollutant exposure sampler for particulate matter and criteria gases. *Pollution atmosphérique, n° spécial 40^{ème} anniversaire de l'APPA*, décembre 1999, 31-9.

CNRS. Expertise collective Diesel et Santé, 1998.

De Martinis B, Kado NY, De Carvalho LRF et al. Genotoxicity of fractionated organic material in airborne particles from Sao Paulo, Brazil. *Mutation Res*, 1999, 446 : 83-94.

Dockery DW, Pope CA, Xu X et al. An association between air pollution and mortality in six US cities. *New Engl. J Med*, 1993, 329 (24) : 1753-9.

Gauvin S, Zmirou D, Le Moullec Y et al. Surveillance de la qualité de l'air et exposition de la population aux polluants atmosphériques : discussion critique à partir d'une étude sur l'exposition d'enfants au NO₂ et aux particules fines. Soumis à la Rev Epidémiol Santé Pub, 2001.

Gonzalez-Flesca N, Cicoella A, Bates M, Bastin E. Pilot study of personal indoor and outdoor exposure to benzene, formaldehyde and acetaldehyde. *Env. Sci. Pol Res*, 1999, 6 (2) : 95-102.

- Guégan H, Fleury A, Dementhon JB et al.** Analyse multi-élémentaire par sonde PIXE des particules fines. Recherche de la contribution respective de différentes sources. Colloque Primequal, Toulouse, 29/11-1/12/2000.
- Hemminki K, Pershagen G.** Cancer risk of air pollution : epidemiological evidence. *Environ Health Perspec*, 1994, 102 (supp 4) : 187-92.
- Jantunen M, Hänninen O, Katsouyanni K et al.** Air pollution exposure in European cities : the 'Expolis' study. *J Expos Anal Environ Epidemiol*, 8(4) : 495-518.
- Jedrychowski W, Becher H, Wahrendorf J, Basa-Clerpalek Z.** A case-control study of lung cancer with special reference on the effect of air pollution in Poland. *Int J Epidemiol Communit Health*, 1990, 44 : 114-20.
- Kinney PL, Aggarwal M, Northridge ME, Janssen N, Sheppard P.** Airborne concentrations of PM_{2.5} and diesel exhaust particles on Harlem sidewalks : a community-based pilot study. *Environ Health Perspect*, 2000, 108, 213-8.
- Laden F, Schwartz J, Speizer FE, Dockery D.** Air pollution and mortality: a continued follow-up in the Harvard six cities study. ISEE 2001 abstracts, Garmisch-Partenkirchen, RFA, 2-5 sept. 2001
- National Research Council.** Research priorities for airborne particulate matter. II. Evaluating research progress and updating the portfolio. 1999, National Acad. Science, Washington DC.
- Nyberg F, Gustavsson P, Jarup L et al.** Urban air pollution and lung cancer in Stockholm. *Epidemiology*, 2000, 11 : 487-95.
- OMS-Euro.** Air quality guidelines for Europe. Second édition. Organisation Mondiale de la Santé, bureau Européen, Copenhague, Danemark, 2000.
- Pope CA, Burnett R, Ito K, Krewski D, Thurston GD.** Mortality effects of long-term exposure to air pollution: analysis of extended follow-up of the ACS cohort. ISEE 2001 abstracts, Garmisch-Partenkirchen, RFA, 2-5 sept. 2001
- Roemer WH, vanWijnen JH.** Differences among black smoke, PM10 and PM1.0 levels at urban measurement sites. *Environ Health Perspect*, 2001, 109 : 151-154.
- Sisovic A, Fugas M, Sega K.** Assessment of human inhalation exposure to Polycyclic Aromatic Hydrocarbons. *J Expos Anal Environ Epidemiol*, 1996, 6, 439-47.
- Törnqvist, M, Ehrenberg L.** *Environ Health Perspect*, 1994, 102 (supp 4) : 173-81.
- Velloso R, Vannucchi C, Bianchi F et al.** Mutagenic activity and chemical analysis of airborne particulates collected in Pisa (Italy). *Bull Environ Contam Toxicol*, 1994, 52 : 465-73.
- Woodruff TJ, Caldwell J, Cogliano VJ, Axelrad D.** Estimating cancer risk from outdoor concentrations of hazardous air pollutants in 1990. *Environ Res*, 2000, section A, 83 : 194-206.

7 LISTE DES ANNEXES

Repère	Désignation précise	Nb/N° pages
A	Comparaison du stockage à 4°C et -20°C	1
B	Analyses HAP	2

ANNEXE A

Comparaison du stockage à 4°C et -20°C

Ref client	Conservation à 4°C			Conservation à -20°C		
	507	515	521	500	509	522
Ref chromato	MMaEC 01/102	MMaEC 01/97	MMaEC 01/91	MMaEC 01/96	MMaEC 01/98	MMaEC 01/92
Naphtalène	10.0	8.9	10.5	8.5	9.0	7.0
Acénaphène	0.3	0.7	0.3	2.5	0.1	0.2
Fluorène	0.9	0.8	1.0	0.4	0.6	0.5
Phénanthrène	9.9	7.1	7.4	4.9	7.6	6.7
Anthracène	0.3	0.4	0.3	0.3	0.2	0.2
Fluoranthène	2.9	2.2	3.8	1.6	3.8	2.2
Pyrène	1.6	1.6	2.4	1.2	2.2	1.0
B(a)A	1.0	0.8	1.3	1.0	0.8	0.5
Chrysène	1.4	1.2	1.7	0.9	1.4	0.7
B(b)F	4.8	3.6	3.8	3.9	3.2	1.9
B(k)F	1.9	1.6	1.4	<0.1	1.2	0.8
B(a)P	4.2	3.8	2.4	3.5	2.3	1.9
D(a,h)A	1.4	1.6	0.6	<0.1	0.9	0.8
B(g,h,i)P	7.8	5.1	5.7	6.7	4.0	2.7
In (1,2,3,c,d)P	5.6	6.5	4.5	<0.8	4.9	2.7

Remarque : les résultats sont exprimés en ng sur la membrane.

Conclusion : Pas de différences significatives entre les échantillons conservés à 4°C ou à -20°C.

Description du mode opératoire :

Extraction aux ultra-sons par 30ml d'acétonitrile de qualité HPLC pendant ½ heure.

Concentration des extraits et reprise à 1ml d'acétonitrile.

Analyse HPLC sur la chaîne DIONEX prévue pour le dosage de traces avec une détection fluorimétrique (programme prévoyant 9 changements de longueur d'onde).

ANNEXE B

Analyses HAP

concentrations exprimées en ng/m3		HYPERCENTRE n=4	RESIDENTIEL n=3	INDUSTRIEL n=2	N=9
Naphtalène	Moyenne	1,56	1,66	1,45	1,56
	Ecart type	0,47	0,59	0,87	0,64
	Minimum	1,10	1,21	0,84	0,84
	Maximum	2,21	2,33	2,06	2,33
Acénaphène	Moyenne	0,12	0,12	0,16	0,14
	Ecart type	0,05	0,06	0,00	0,04
	Minimum	0,06	0,05	0,05	0,05
	Maximum	0,15	0,16	0,05	0,16
Fluorène	Moyenne	0,20	0,18	0,15	0,17
	Ecart type	0,02	0,00	0,01	0,01
	Minimum	0,17	0,17	0,14	0,14
	Maximum	0,22	0,18	0,16	0,22
Phénanthrène	Moyenne	0,74	0,68	0,66	0,69
	Ecart type	0,15	0,10	0,03	0,09
	Minimum	0,60	0,60	0,65	0,60
	Maximum	0,88	0,78	0,68	0,88
Anthracène	Moyenne	0,01	0,01	0,01	0,01
	Ecart type	0,00	0,00	0,00	0,00
	Minimum	0,01	0,01	0,01	0,01
	Maximum	0,01	0,01	0,01	0,01
Fluoranthène	Moyenne	0,11	0,23	0,18	0,18
	Ecart type	0,00	0,21	0,11	0,10
	Minimum	0,11	0,11	0,11	0,11
	Maximum	0,11	0,47	0,26	0,47
Pyrène	Moyenne	0,12	0,21	0,12	0,15
	Ecart type	0,08	0,22	0,06	0,12
	Minimum	0,03	0,07	0,08	0,17
	Maximum	0,21	0,46	0,17	0,46
B(a)A	Moyenne	0,13	0,28	0,17	0,19
	Ecart type	0,06	0,27	0,09	0,14
	Minimum	0,08	0,11	0,10	0,08
	Maximum	0,19	0,59	0,23	0,59
Chrysène	Moyenne	0,18	0,41	0,22	0,27
	Ecart type	0,11	0,46	0,10	0,22
	Minimum	0,09	0,09	0,15	0,09
	Maximum	0,30	0,73	0,29	0,73
B(b)F	Moyenne	0,51	0,76	0,64	0,64
	Ecart type	0,32	0,73	0,17	0,41
	Minimum	0,20	0,32	0,53	0,20
	Maximum	0,88	1,61	0,76	1,61
B(k)F	Moyenne	0,20	0,31	0,28	0,26
	Ecart type	0,12	0,29	0,10	0,17
	Minimum	0,07	0,13	0,21	0,07
	Maximum	0,32	0,65	0,36	0,65
B(a)P	Moyenne	0,42	0,70	0,80	0,64
	Ecart type	0,27	0,68	0,55	0,50
	Minimum	0,13	0,26	0,41	0,13
	Maximum	0,68	1,49	1,20	1,49
D(a,h)A	Moyenne	0,13	0,26	0,29	0,23
	Ecart type	0,12	0,26	0,29	0,22
	Minimum	0,03	0,10	0,09	0,03
	Maximum	0,25	0,56	0,50	0,56
B(g,h,i)P	Moyenne	0,92	1,51	2,04	1,49
	Ecart type	0,64	1,28	1,89	1,27
	Minimum	0,32	0,71	0,70	0,32
	Maximum	1,72	2,99	3,38	3,38
In (1,2,3,c,d)P	Moyenne	0,60	1,10	1,25	0,98
	Ecart type	0,43	0,91	0,87	0,74
	Minimum	0,23	0,54	0,63	0,23
	Maximum	1,04	2,15	1,87	2,15
Total (HAP) PM10	Moyenne	5,96	8,27	8,34	7,52
	Ecart type	2,67	4,86	5,10	4,21
	Minimum	3,23	4,85	4,74	3,23
	Maximum	8,88	13,83	11,95	13,83

concentrations exprimées en ng/m3		HYPER-CENTRE			RESIDENTIEL			INDUSTRIEL			ENSEMBLE
		Enfant n=8	Adulte n=8	Tot n=16	Enfant n=9	Adulte n=8	Tot n=17	Enfant n=6	Adulte n=7	Tot n=13	N=46
Naphthalène	Moyenne	1,22	1,07	1,15	1,58	1,46	1,52	1,60	0,77	1,19	1,28
	Ecart type	0,68	0,57	0,62	0,91	0,94	0,92	0,79	0,28	0,53	0,69
	Minimum	0,60	0,49	0,49	1,53	0,48	0,48	0,46	0,46	0,46	0,46
	Maximum	2,78	2,02	2,78	1,53	2,89	2,89	2,55	1,20	2,55	2,89
Acénaphthène	Moyenne	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09
	Ecart type	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
	Minimum	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09
	Maximum	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09
Fluorène	Moyenne	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09	0,11	0,09	0,10	0,09
	Ecart type	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,04	0,00	0,02	0,01
	Minimum	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09
	Maximum	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09	0,20	0,09	0,20	0,20
Phénanthrène	Moyenne	1,16	0,84	1,00	0,97	0,90	0,93	0,88	1,17	1,02	0,98
	Ecart type	0,22	0,38	0,30	0,30	0,40	0,35	0,31	0,61	0,46	0,37
	Minimum	0,87	0,35	0,35	0,59	0,39	0,39	0,44	0,37	0,37	0,35
	Maximum	1,57	1,50	1,57	1,40	1,44	1,40	1,38	1,91	1,91	1,91
Anthracène	Moyenne	0,02	0,08	0,05	0,02	0,02	0,02	0,02	0,02	0,02	0,03
	Ecart type	0,00	0,04	0,02	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,01
	Minimum	0,02	0,02	0,02	0,02	0,02	0,02	0,02	0,02	0,02	0,02
	Maximum	0,02	0,15	0,15	0,02	0,02	0,02	0,02	0,02	0,02	0,02
Fluoranthène	Moyenne	0,30	0,24	0,27	0,28	0,33	0,31	0,27	0,25	0,26	0,28
	Ecart type	0,18	0,10	0,14	15,07	0,15	7,61	0,13	0,12	0,13	2,62
	Minimum	0,18	0,18	0,18	0,18	0,18	0,18	0,18	0,18	0,18	0,18
	Maximum	0,67	0,42	0,67	0,57	0,49	0,49	0,48	0,42	0,48	0,67
Pyrène	Moyenne	0,13	0,13	0,13	0,12	0,16	0,14	0,06	0,10	0,08	0,12
	Ecart type	0,06	0,06	0,06	0,07	0,21	0,14	0,03	0,10	0,06	0,09
	Minimum	0,05	0,05	0,05	0,05	0,04	0,04	0,05	0,04	0,04	0,04
	Maximum	0,20	0,20	0,20	0,26	0,60	0,26	0,11	0,30	0,30	0,30
B(a)A	Moyenne	0,15	0,15	0,15	0,14	0,14	0,14	0,05	0,11	0,08	0,12
	Ecart type	0,16	0,06	0,11	0,15	0,15	0,15	0,00	0,14	0,07	0,11
	Minimum	0,05	0,05	0,05	0,05	0,04	0,04	0,05	0,04	0,04	0,04
	Maximum	0,52	0,27	0,52	0,48	0,39	0,48	0,05	0,42	0,42	0,52
Chrysène	Moyenne	0,20	0,21	0,20	0,19	0,21	0,20	0,09	0,12	0,10	0,17
	Ecart type	0,18	0,12	0,15	0,19	0,15	0,17	0,08	0,10	0,09	0,14
	Minimum	0,05	0,05	0,05	0,05	0,04	0,04	0,05	0,04	0,04	0,04
	Maximum	0,56	0,44	0,56	0,62	0,42	0,62	0,24	0,34	0,34	0,62
B(b)F	Moyenne	0,60	0,59	0,59	0,59	0,65	0,62	0,24	0,34	0,29	0,50
	Ecart type	0,51	0,29	0,40	0,44	0,46	0,45	0,15	0,19	0,17	0,34
	Minimum	0,22	0,05	0,05	0,17	0,09	0,09	0,09	0,11	0,09	0,05
	Maximum	1,75	0,97	1,75	1,54	1,25	1,54	0,50	0,62	0,62	1,75
B(k)F	Moyenne	0,24	0,24	0,24	0,24	0,29	0,27	0,11	0,16	0,13	0,21
	Ecart type	0,21	0,13	0,17	0,19	0,20	0,20	0,07	0,08	0,08	0,15
	Minimum	0,07	0,02	0,02	0,09	0,05	0,05	0,02	0,07	0,10	0,02
	Maximum	0,72	0,44	0,72	0,68	0,56	0,68	0,22	0,30	1,70	1,70
B(a)P	Moyenne	0,49	0,53	0,51	0,56	0,76	0,66	0,20	0,31	0,25	0,47
	Ecart type	0,43	0,24	0,34	0,47	0,78	0,62	0,12	0,17	0,14	0,37
	Minimum	0,13	0,05	0,05	0,18	0,12	0,12	0,05	0,14	0,25	0,05
	Maximum	1,46	0,86	1,46	1,36	2,27	2,27	0,31	0,53	3,00	3,00
D(a,h)A	Moyenne	0,12	0,14	0,13	0,17	0,21	0,19	0,05	0,08	0,06	0,13
	Ecart type	0,11	0,07	0,09	0,17	0,16	0,16	0,00	0,04	0,02	0,09
	Minimum	0,05	0,05	0,05	0,05	0,04	0,04	0,05	0,04	0,25	0,04
	Maximum	0,36	0,24	0,36	0,46	0,37	0,46	0,05	0,14	0,80	0,80
B(g,h,i)P	Moyenne	0,76	0,79	0,78	1,07	1,94	1,51	0,28	0,56	0,42	0,90
	Ecart type	0,39	0,38	0,38	0,94	3,40	2,17	0,15	0,41	0,28	0,95
	Minimum	0,33	0,09	0,09	0,31	0,25	0,25	0,09	0,09	0,50	0,09
	Maximum	1,36	1,31	1,36	2,99	9,58	9,58	0,40	1,25	7,10	9,58
In (1,2,3,c,d)P	Moyenne	0,67	0,75	0,71	0,76	1,11	0,93	0,37	0,44	0,40	0,68
	Ecart type	0,63	0,37	0,50	0,74	0,89	0,81	0,00	0,23	0,11	0,48
	Minimum	0,36	0,36	0,36	0,37	0,35	0,35	0,37	0,35	2,00	0,35
	Maximum	2,10	1,33	2,10	2,20	2,62	2,62	0,37	0,95	5,40	5,40
Total (HAP) PM2.5	Moyenne	5,58	5,33	5,46	6,21	7,88	7,05	3,47	3,90	3,69	5,40
	Ecart type	5,58	2,47	4,03	2,94	6,52	4,73	1,71	1,92	1,82	3,53
	Minimum	2,91	1,22	1,22	2,74	2,22	2,22	0,88	1,69	4,80	1,22
	Maximum	11,84	7,51	11,84	11,70	20,94	20,94	5,23	6,88	39,00	39,00

Fin du Complément non destiné au client