

ARTICLES

Variabilité spatio-temporelle des ratios $PM_{2,5}/PM_{10}$ à Grenoble et conséquences sur les études d'évaluation de l'exposition

Spatio-temporal variability in Grenoble $PM_{2,5}/PM_{10}$ ratios and consequences on exposure assessment studies

Céline BOUDET*, Jacques DÉCHENAU***, Denis ZMIROU*

Résumé

Plusieurs études montrent la plus grande pertinence des $PM_{2,5}$ que des PM_{10} pour estimer les risques liés à l'exposition aux particules dans les études épidémiologiques ou d'évaluation du risque. Cependant, en Europe, la plupart des données épidémiologiques actuelles sont basées sur les valeurs de fumées noires (FN) ou de PM_{10} fournies par les réseaux de surveillance de la qualité de l'air. À Grenoble, un échantillonneur GRIMM a permis d'approcher le profil granulométrique des particules dans l'air ambiant. Des mesures ont été faites en sites à fort et à faible intensités de trafic (variabilité spatiale), ainsi qu'en été et en hiver (variabilité temporelle). La variabilité temporelle des ratios $PM_{2,5}/PM_{10}$ est faible malgré les différentes conditions météorologiques et le poids variable des sources d'émissions observées en été et en hiver : le ratio varie respectivement de 0,31 à 0,42 sur le site de proximité et de 0,41 à 0,33 sur le site de fond. La variabilité spatiale de ces ratios est peu importante (en hiver : 0,33 sur site de fond, 0,42 sur site de proximité ; en été : 0,41 sur site de fond, 0,31 sur site de proximité). Une forte corrélation horaire est observée entre $PM_{2,5}$ et PM_{10} sur un même site, en été comme en hiver ($R > 0,80$).

Abstract

More and more evidence leads to the conclusion that $PM_{2,5}$ is the most relevant indicator to be used in particulate health studies. However, in Europe, most epidemiological data are based on black smoke or PM_{10} values that are provided by air monitoring networks. Temporal and spatial variability in $PM_{2,5}/PM_{10}$ ratios was described in the framework of a European air pollution exposure study (EXPOLIS) in order to evaluate its possible consequences on exposure assessment within epidemiological or risk assessment studies. In Grenoble, a GRIMM (G1105) device was used, allowing to determine the granulometric profile of particles mass or number. Measurements were made in high and low traffic density sites (spatial variability) and in summer and winter (temporal variability). A low time variability was observed in the $PM_{2,5}/PM_{10}$ ratios between summer and winter (from 0.31 to 0.42 on the proximity site ; from 0.41 to 0.33 on the background site) in spite of the different meteorological conditions or emission sources. Spatial variability between sites within Grenoble is also low (from 0.42 in proximity site to 0.33 in urban background site, in winter ; from 0.31 in proximity site to 0.41 in urban background site, in summer). There is a high within-site correlation between PM_{10} and $PM_{2,5}$, in summer and in winter ($R > 0.80$, hourly levels). On average, $PM_{2,5}/PM_{10}$ ratios within town are quite homogeneous. However, the standard deviations are quite high for some of the measurements. Variability in the ratios between towns would also need to be investigated.

* Laboratoire de Santé Publique, Université Joseph Fourier (Grenoble I).

** Association pour la Prévention de la Pollution Atmosphérique (APPA), Comité Dauphiné-Savoie.

Introduction

De plus en plus d'études arrivent à la conclusion que les particules d'un diamètre aérodynamique inférieur à $2,5 \mu\text{m}$ ($\text{PM}_{2,5}$) sont de meilleurs indicateurs de risque que les traditionnelles PM_{10} dans les études sur la santé et la pollution atmosphérique particulaire [1-5]. Cependant, en Europe, la plupart des études épidémiologiques continuent à se baser sur les mesures de fumées noires ou de PM_{10} fournies par les réseaux de surveillance de la qualité de l'air, afin de satisfaire aux normes européennes [6-8]. La validité des valeurs de PM_{10} en tant qu'index d'exposition dans les études épidémiologiques ou d'évaluation des risques peut être remise en cause car elles mesurent imparfaitement l'exposition aux particules les plus nocives et ne prennent pas en compte l'éventuelle variabilité spatio-temporelle des ratios $\text{PM}_{2,5}/\text{PM}_{10}$.

L'objectif de cette étude est de décrire la variabilité spatiale et temporelle des ratios $\text{PM}_{2,5}/\text{PM}_{10}$ dans l'agglomération grenobloise, sur différents sites urbains et au cours de différentes saisons. De plus, des données détaillées de corrélation site par site entre $\text{PM}_{2,5}$ et PM_{10} viennent illustrer cette étude (profils horaires). En effet, il semble important de considérer les distributions diurnes des particules en terme d'évaluation de l'exposition d'une population.

Méthode

Définition des sites de prélèvement

Le réseau de surveillance de la qualité de l'air grenoblois (ASCOPARG) possède deux sites urbains permanents de prélèvement de PM_{10} . Ces sites sont considérés représentatifs de deux classes d'exposition selon les critères généraux suivants* :

1. site de proximité : situé à moins de 50 m d'une voirie avec une intensité de trafic $> 10\,000$ véhicules/j, ratio $\text{NO}/\text{NO}_2 \geq 1$;
2. site de fond urbain : situé à plus de 50 m d'une voirie, $> 10\,000$ véhicules/j, ratio $\text{NO}/\text{NO}_2 < 1$.

Le site de proximité grenoblois (site A) est défini spécifiquement par un ratio NO/NO_2 proche de ou supérieur à 1 toute l'année, et se situe sur une voirie avec une intensité de trafic de plus de 60 000 véhicules/j en moyenne.

Le prélèvement d'air est effectué à une hauteur de 3 m au-dessus du trottoir. Le site de fond urbain permanent (site B) est défini spécifiquement par un ratio $\text{NO}/\text{NO}_2 < 1$ toute l'année et se situe à plus de 50 m de toute voirie importante (au cœur d'une zone résidentielle). La route la plus proche a une intensité de trafic $< 5\,000$ véhicules/j. Le prélèvement d'air se fait à 10 m du sol.

Un site de fond temporaire (site C) a été mis en place au cours d'une étude spécifique. Il correspond aux mêmes critères de distance à la voirie et d'intensité du trafic que le site B. Les appareils sont à 6 m du sol et, de manière générale, les résultats ont tendance à montrer de plus forts niveaux de pollution particulaire que ceux observés sur le site B. Pour la période de fonctionnement du site C, des résultats sont disponibles sur six sites mobiles de fond. Par la suite, ces six sites de prélèvement seront considérés comme un seul site (site D, résultats homogènes). Tous les sites se situent dans un quartier à forte densité de population.

Définition des périodes de prélèvement

La variabilité du ratio $\text{PM}_{2,5}/\text{PM}_{10}$ a été mesurée sur les sites décrits précédemment à plusieurs périodes au cours des années 1996, 1997 et 1998.

Des mesures spécifiques au seul site de proximité ont eu lieu

- du 28-06-1996 au 03-07-1996 pour la période estivale (1)
- et du 11-12-1996 au 13-12-1996 pour la période hivernale (2).

La période d'étude sur les sites C et D s'est étalée du 27-1-1997 au 10-4-1997 (3).

Des mesures supplémentaires ont été faites du 15-05-1997 au 18-05-1997 en parallèle sur le site de fond B et sur celui de proximité (A) (4).

Une autre campagne de mesure s'est déroulée pour la période estivale du 23-06-1998 au 07-07-1998 sur le site B (5) et du 09-07-1998 au 23-07-1998 sur le site A (6).

Enfin, des données sont disponibles sur les sites A et B du 23-11-1998 au 07-12-1998 (7).

Le calendrier des périodes de mesure est résumé dans la figure 1, p. 101.

Matériel

Un échantillonneur GRIMM (G1105) a été utilisé pour mesurer les immissions de $\text{PM}_{2,5}$ et de PM_{10} . Il permet de déterminer le profil granulométrique des particules en masse ou en nombre (un calcul simple permet de convertir les résultats en masse, par approximation), en utilisant une méthode de diffusion de la lumière par les particules. Une diode laser émet un rayonnement de longueur d'onde donnée dans une cellule de mesure. L'air échantillonné traverse ce faisceau laser et la lumière est diffusée selon la surface et la taille des particules contenues dans cet échantillon. Les signaux sont détectés par un capteur dans un angle de 60 à 120 degrés. Un analyseur de pic classe alors les signaux et les trie en fonction du diamètre des particules (0,75-1 ; 1-2 ; 2-3,5 ; 3,5-5 ; 5-7,5 ; 7,5-10 ; 10-15 ; $> 15 \mu\text{m}$). Le débit d'aspiration est de 1,2 l/min. Les particules se déposent sur un filtre placé derrière la cellule, ce dernier pouvant être

* tels que définis au moment des prélèvements.

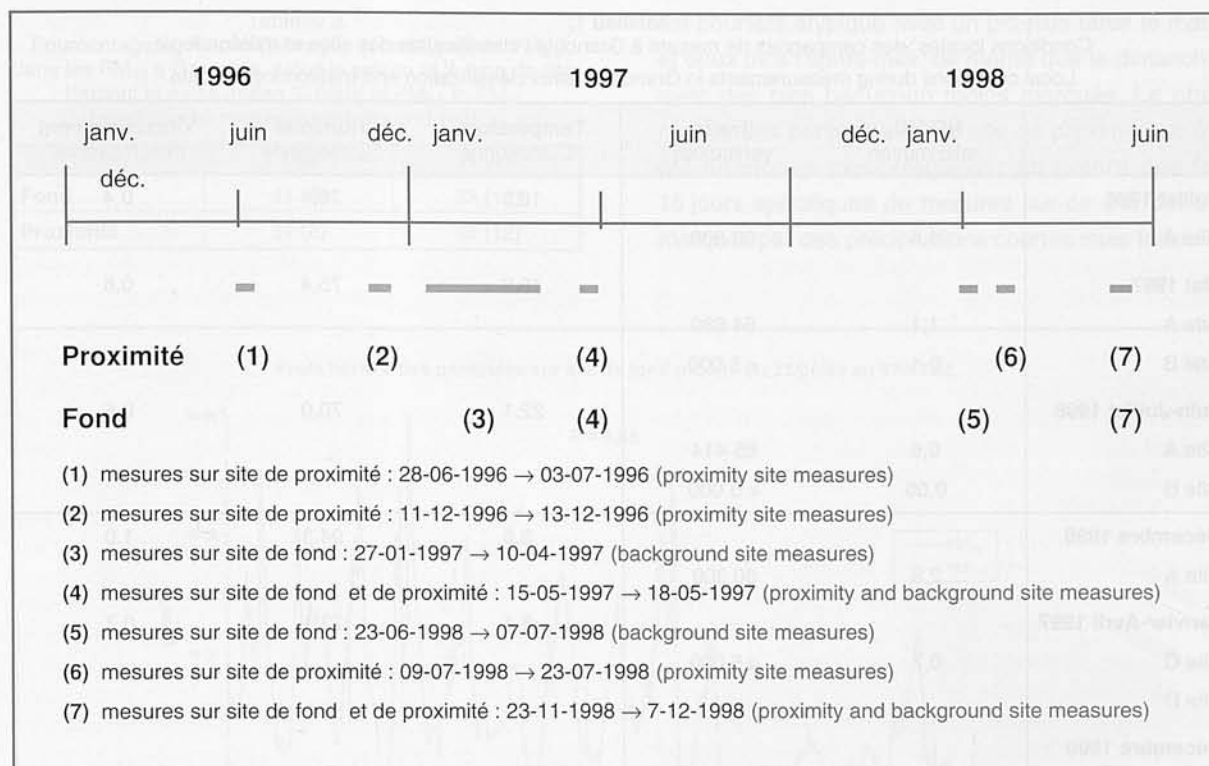


Figure 1.
Calendrier des périodes de prélèvement GRIMM.
GRIMM measurement periods calendar.

pesé à la fin de l'expérience. Le temps d'intégration des données est d'une minute.

Résultats

Le tableau 1, p. 102, résume, pour les différents sites étudiés, les données sur le ratio NO/NO_2 et l'intensité du trafic fournies par l'ASCOPARG [au vu de la caractérisation des sites comme étant de proximité (A) ou de fond (B à D)] ainsi que les données météorologiques sur les périodes de mesure.

Le calcul des moyennes est basé, selon les cas, sur des résultats horaires (données météorologiques) ou journaliers (trafic).

Les données météorologiques sont les mêmes pour chaque site : elles proviennent de la station Météo-France de Saint-Martin-d'Hères. Seuls les critères de définition des sites leurs sont spécifiques. Typiquement, sur l'agglomération grenobloise, les vents faibles et modérés ($< 3 \text{ m/s}$) sont orientés sud-nord et les rares vents forts ($> 5 \text{ m/s}$) sont de secteur nord. Globalement, la proportion de vents calmes ($< 1 \text{ m/s}$) diminue au cours de l'hiver.

Le tableau 2, p. 102, présente les concentrations moyennes en $\text{PM}_{2,5}$ et en PM_{10} pour les périodes d'été et d'hiver et pour les sites de proximité et de fond, respectivement. Pour chaque série de mesure, le ratio $\text{PM}_{2,5}/\text{PM}_{10}$ est calculé.

Le site de proximité grenoblois a des concentrations en PM_{10} sensiblement plus élevées en hiver ($42,2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ en moyenne) qu'en été ($21,0 \mu\text{g}/\text{m}^3$). Les concentrations en $\text{PM}_{2,5}$ sont aussi plus élevées en hiver qu'en été sur ce même site ($16,1$ et $7,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ en moyenne, respectivement). Les sites de fond montrent la même tendance (PM_{10} hiver : $21,5$, PM_{10} été : $12,0$; $\text{PM}_{2,5}$ hiver : $7,0$, $\text{PM}_{2,5}$ été : $5,1$). Si l'on considère le site A, le ratio varie en moyenne de $0,42$ (écart-type : $0,12$) à $0,31$ (écart-type : $0,06$) entre l'hiver et l'été. Si l'on considère les sites B, C et D, le ratio varie de $0,33$ (écart-type : $0,12$) à $0,41$ (écart-type : $0,06$) de l'hiver à l'été. Ces moyennes, résumées dans le tableau 2 p. 102, sont pondérées par le nombre de jours de mesure correspondant (celui-ci étant très variable entre les différentes phases).

Le tableau 3, p. 103, synthétise les résultats précédents en présentant aussi une estimation du pourcentage de la masse des $\text{PM}_{2,5}$ dans les PM_{10} (moyenne et écart-type), selon la saison et le type de site.

Les figures 2 et 3 (p. 103), présentent les profils horaires des particules pour l'une des périodes estivales, sur chaque type de site. Cela illustre la très forte corrélation horaire entre $\text{PM}_{2,5}$ et PM_{10} sur un même site (R de Pearson $> 0,80$). En regardant en détail le profil horaire du site de fond, des pics « matin » (9 h) et des pics « soir » (vers 18 h) apparaissent aux heures reflétant la source locale de trafic. Le mercredi

Tableau 1.

Conditions locales des campagnes de mesure à Grenoble : classification des sites et météorologie.
Local conditions during measurements in Grenoble : sites classification and meteorological data.

	NO/NO ₂ ratio moyen	Trafic véhicules/j	Température °C, moyenne	Humidité %, moyenne	Vitesse du vent m/s, moyenne
Juillet 1996			18,3	70,1	0,4
Site A	1,4	69 600			
Mai 1997			18,9	75,4	0,6
Site A	1,1	64 680			
Site B	0,1	< 5 000			
Juin-Juillet 1998			22,1	70,0	0,6
Site A	0,6	65 414			
Site B	0,05	< 5 000			
Décembre 1996			3,6	94,3	1,0
Site A	2,8	80 309			
Janvier-Avril 1997			8,1	72,1	0,7
Site C	0,7	< 5 000			
Site D					
Décembre 1998					
Site A	2,0	70 257	0,8	85,5	0,4
Site B	0,7	< 5 000			

Tableau 2.

Concentrations en PM_{2,5} et PM₁₀ à Grenoble et ratio PM_{2,5}/PM₁₀ selon le site de mesure et la saison.
PM_{2,5} and PM₁₀ ambient air concentrations in Grenoble and PM_{2,5}/PM₁₀ ratios, depending on the measurement site and season.

	Site de mesure		PM ₁₀ µg/m ³	PM _{2,5} µg/m ³	Ratio
Périodes estivales	Proximité	Fond			
28-6 → 03-7-1996	✓		35,6	12,2	0,34
15-5 → 18-5-1997	✓		41,5	17,7	0,43
09-7 → 23-7-1998	✓		8,0	2,1	0,26
15-5 → 18-5-1997		✓	17,3	9,1	0,53
23-6 → 07-7-1998		✓	10,6	4,0	0,38
Moyenne pondérée*	✓		21,0 (15,1)	7,5 (6,4)	0,31 (0,06)
(écart-type)		✓	12,0 (2,8)	5,1 (2,1)	0,41 (0,06)
Périodes hivernales					
11-12 → 13-12-1996	✓		22,8	18,0	0,79
23-11 → 7-12-1998	✓		46,1	15,7	0,34
21-1 → 10-4-1997		✓	24,0	6,3	0,26
21-1 → 10-4-1997		✓	19,3	6,4	0,33
23-11 → 7-12-1998		✓	19,4	13,3	0,69
Moyenne pondérée*	✓		42,2 (8,9)	16,1 (0,9)	0,42 (0,12)
(écart-type)		✓	21,5 (2,3)	7,0 (2,0)	0,33 (0,12)

* Moyenne pondérée par le nombre de jours de mesure correspondant.

Tableau 3.

Pourcentage en masse [% moyen (écart-type)] de $PM_{2,5}$ dans les PM_{10} à Grenoble, selon la saison et le type de site.

Percent in mass [mean % (std)] of $PM_{2,5}$ in PM_{10} , depending on measurement site and season.

	Été	Hiver
Fond	41 (6)	33 (12)
Proximité	31 (6)	42 (12)

est pourtant atypique avec un pic plus tardif le matin et deux pics l'après-midi, de même que le dimanche, avec des pics beaucoup moins marqués. Le profil horaire des particules sur le site de proximité en été est beaucoup plus irrégulier ; on notera que les 15 jours spécifiques de mesures sur ce site ont été marqués par des précipitations courtes mais fortes.

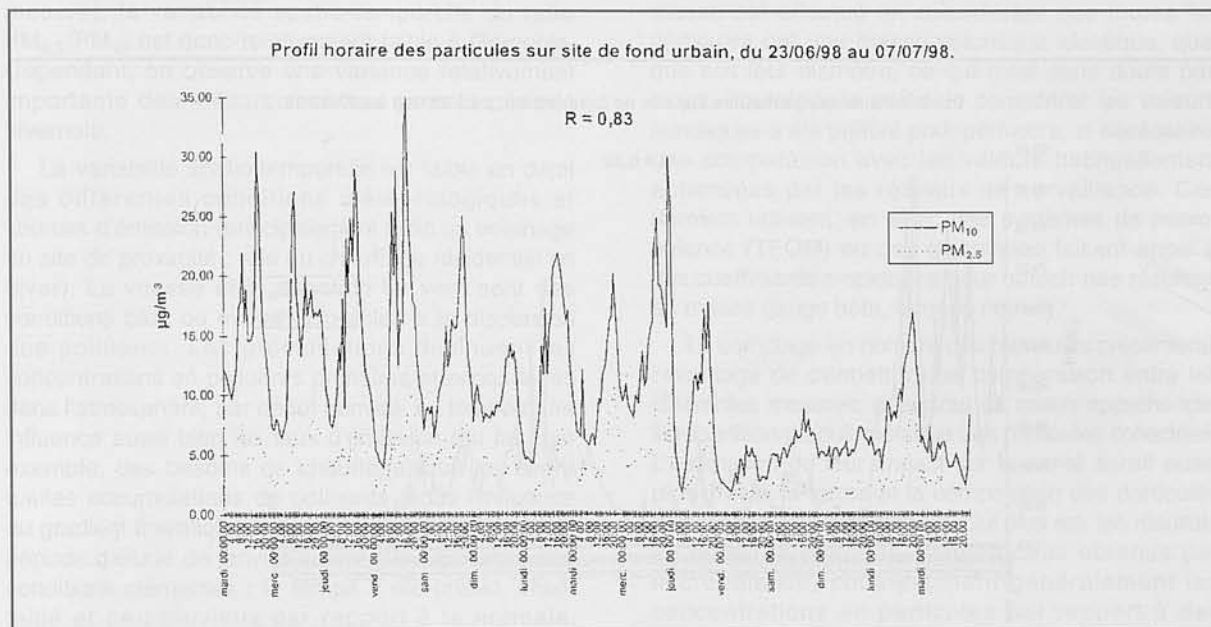


Figure 2.

Profil horaire des particules sur site de fond urbain, du 23-06-1998 au 07-07-1998.

Hourly profile of particles on the urban background site, from the 23-06-1998 to the 07-07-1998.

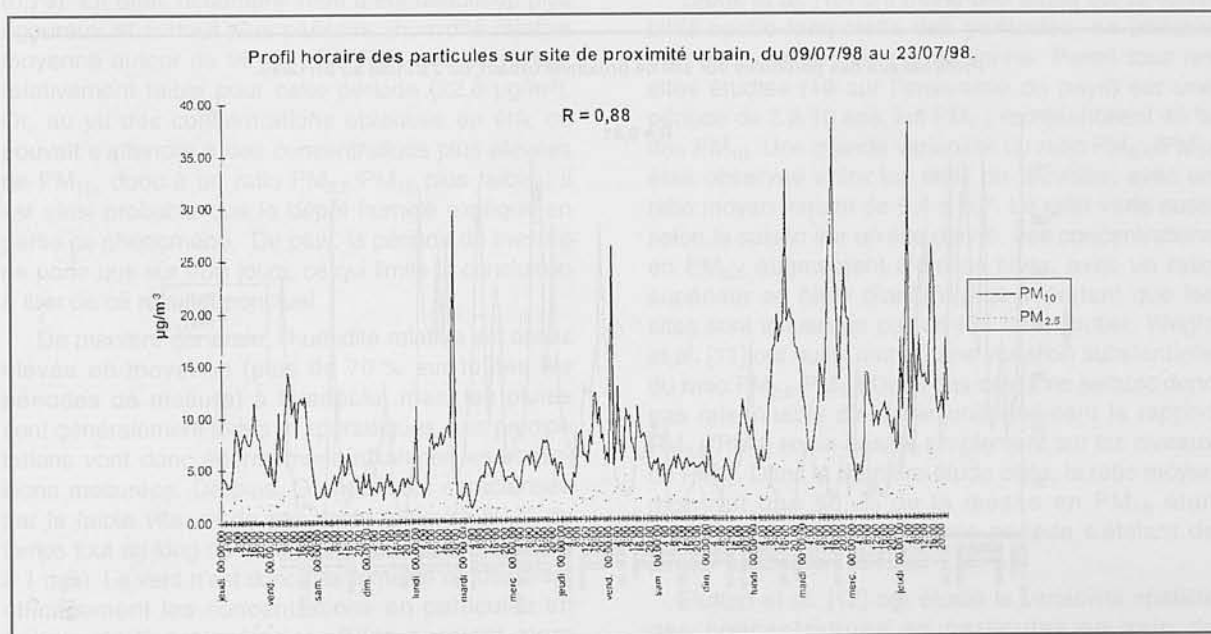


Figure 3.

Profil horaire des particules sur site de proximité urbain, du 09-07-1998 au 23-07-1998.

Hourly profile of particles on the urban proximity site, from the 09-07-1998 to the 23-07-1998.

Les figures 4 et 5 présentent ces mêmes profils horaires pour la période hivernale. Là encore, une très forte corrélation est observée sur un même site entre $PM_{2,5}$ et PM_{10} ($R > 0,8$). Les mesures ayant eu lieu exactement en parallèle sur le site de proximité et le site de fond pour cette période, il est constaté que la corrélation entre les PM_{10} en fond et les PM_{10} en proximité est relativement élevée ($R = 0,6$). Cette corrélation intersite est plus importante pour les $PM_{2,5}$ ($R = 0,7$).

Discussion

Les résultats principaux de ces campagnes de mesure des particules atmosphériques sont donc les suivants : il existe une variabilité temporelle relativement faible du ratio $PM_{2,5}/PM_{10}$, s'étalant en moyenne de 0,31 en été à 0,42 en hiver, pour le site de proximité, et de 0,41 en été à 0,33 en hiver pour le site de fond. On constate également l'absence d'une réelle variabilité spatiale, au cours d'une même saison, entre les

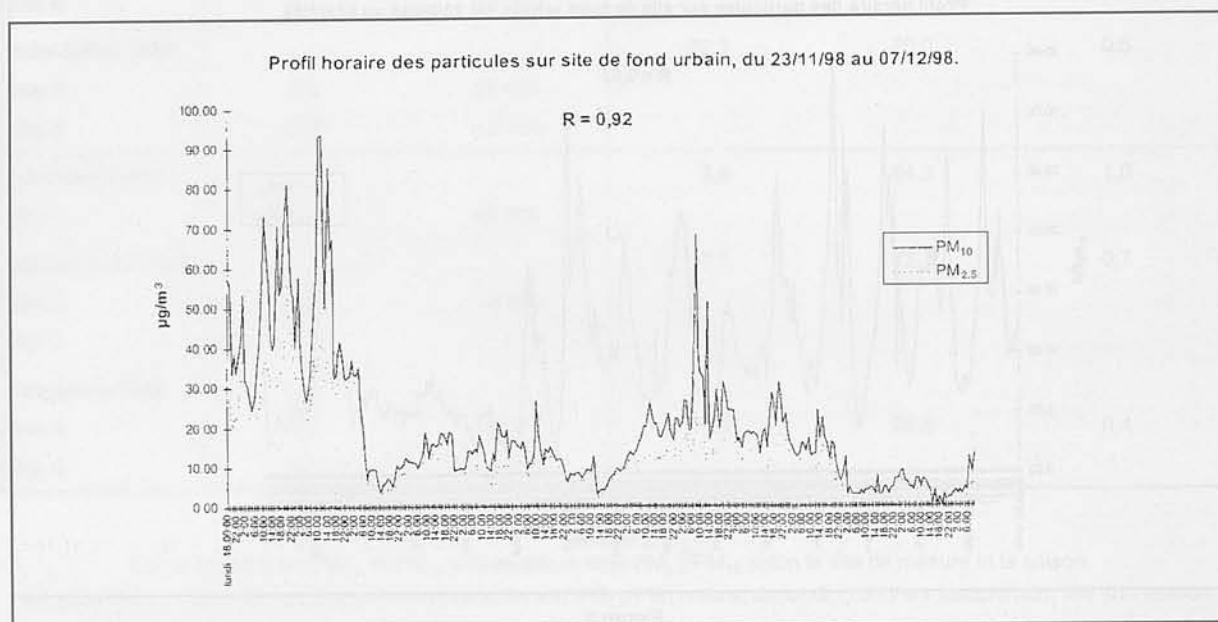


Figure 4.

Profil horaire des particules sur site de fond urbain, du 23-11-1998 au 07-12-1998.

Hourly profile of particles on the urban background site, from the 23-11-1998 to the 07-12-1998.

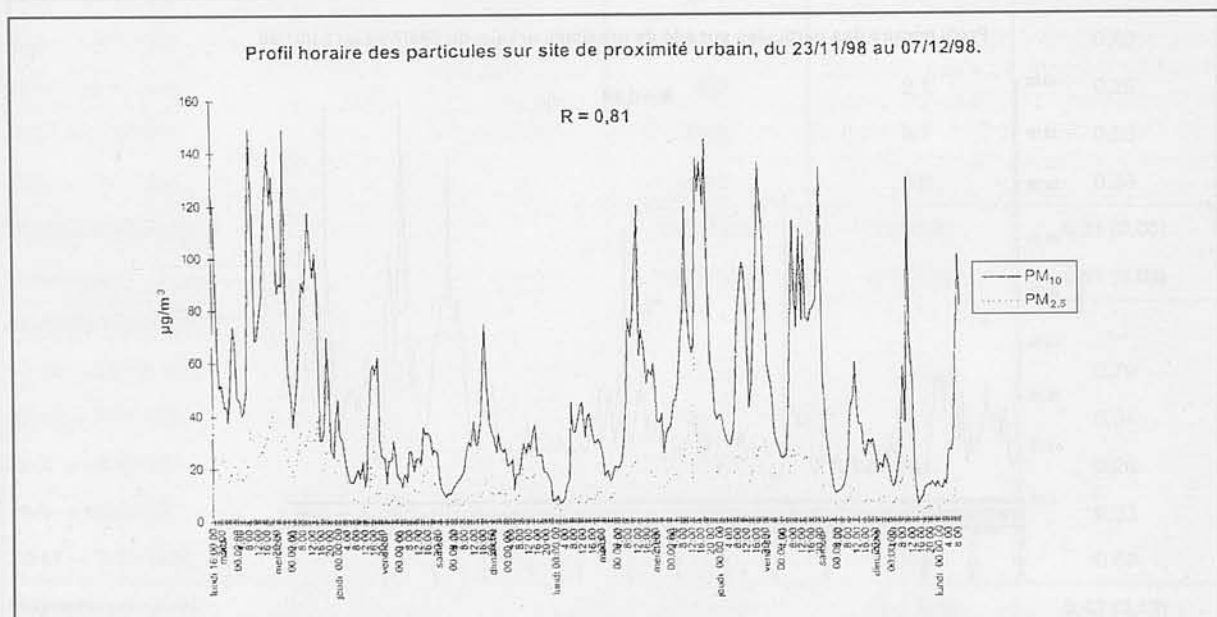


Figure 5.

Profil horaire des particules sur site de proximité urbain, du 23-11-1998 au 07-12-1998.

Hourly profile of particles on the urban proximity site, from the 23-11-1998 to the 07-12-1998.

deux types de site. La différence du pourcentage de masse des $PM_{2,5}$ dans les PM_{10} est de l'ordre de 10 % en été entre un site de fond (41 %) et un site de proximité (31 %) ; elle est du même ordre en hiver (proximité : 42 % ; fond : 33 %). La corrélation temporelle entre les valeurs journalières de $PM_{2,5}$ et PM_{10} sur un même site est importante ($> 0,80$) quelle que soit la saison considérée. La corrélation intersite est aussi importante pour les PM_{10} (0,6) et les $PM_{2,5}$ (0,7).

En moyenne (pondérée sur le nombre de jours de mesure), la variabilité spatio-temporelle du ratio $PM_{2,5}/PM_{10}$ est donc relativement faible à Grenoble. Cependant, on observe une variance relativement importante des mesures, surtout pour la période hivernale.

La variabilité spatio-temporelle est faible en dépit des différentes conditions météorologiques et sources d'émission (principalement trafic au voisinage du site de proximité ; rôle du chauffage résidentiel en hiver). La vitesse et la direction du vent sont des conditions plus ou moins favorables à la dispersion des polluants. Les précipitations diminuent les concentrations en polluants primaires et secondaires dans l'atmosphère, par dépôt humide. La température influence aussi bien les taux d'émission (du fait, par exemple, des besoins de chauffage) que les éventuelles accumulations de polluants (sous l'influence du gradient thermique vertical). À titre d'illustration, la période d'étude de janvier à avril 1997 a montré des conditions clémentes : le temps a été chaud, ensoleillé et peu pluvieux par rapport à la normale. Pendant cette période, la météo tend donc à réduire les immissions particulières moyennes, ce qui peut expliquer, en partie, la différence entre les ratios obtenus sur ces mesures (autour de 0,3) et le ratio $PM_{2,5}/PM_{10}$ obtenu sur la période de décembre 1996 (0,79). En effet, décembre 1996 a été beaucoup plus rigoureux et surtout plus pluvieux (humidité relative moyenne autour de 90 %) ; les PM_{10} ont un niveau relativement faible pour cette période (22,8 $\mu g/m^3$). Or, au vu des concentrations obtenues en été, on pouvait s'attendre à des concentrations plus élevées de PM_{10} , donc à un ratio $PM_{2,5}/PM_{10}$ plus faible ; il est ainsi probable que le dépôt humide explique en partie ce phénomène. De plus, la période de mesure ne porte que sur trois jours, ce qui limite la conclusion à tirer de ce résultat ponctuel.

De manière générale, l'humidité relative est assez élevée en moyenne (plus de 70 % sur toutes les périodes de mesure) à Grenoble, mais les pluies sont généralement fortes et sporadiques. Les précipitations vont donc énormément influencer les immissions mesurées. De plus, Grenoble est caractérisée par la faible vitesse de ses vents (plus de 50 % du temps tout au long de l'année, les vents sont inférieurs à 1 m/s). Le vent n'est donc pas à même de disperser efficacement les concentrations en particules en dehors de l'agglomération. Elles auraient alors tendance à se concentrer autour des principales sources, notamment les grandes voiries. Cela expliquerait la relative hétérogénéité des résultats de

PM_{10} d'une part et de $PM_{2,5}$ d'autre part, entre le site de proximité (60 000 véhicules/j en moyenne) et le site de fond, moins exposé directement aux émissions automobiles ($< 5 000$ véhicules/j). Cependant, en proportion, la différence entre $PM_{2,5}$ et PM_{10} est la même sur site de fond et sur site de proximité : le ratio $PM_{2,5}/PM_{10}$ est donc comparable sur les deux types de site.

Le matériel utilisé pour effectuer les différentes mesures réalisées mérite d'être discuté. Le calcul en masse est effectué en considérant que toutes les particules ont une masse volumique identique, quel que soit leur diamètre, ce qui n'est sans doute pas exact. Toutefois, le choix de considérer les valeurs massiques a été préféré pour permettre, si nécessaire, une comparaison avec les valeurs habituellement annoncées par les réseaux de surveillance. Ces derniers utilisent, en effet, des systèmes de microbalance (TEOM) ou des techniques faisant appel à des coefficients empiriques pour obtenir des résultats en masse (jauge bêta, fumées noires).

Le comptage en nombre des particules présenterait l'avantage de permettre une comparaison entre les différentes mesures, et surtout de mieux appréhender la répartition granulométrique des particules collectées. L'estimation de leur impact sur la santé serait aussi plus précise, la forme et la composition des particules étant liées à leur diamètre [3]. Qui plus est, les résultats de mesures optiques, comme ceux obtenus par microbalance, sous-estiment généralement les concentrations en particules par rapport à des mesures gravimétriques. Allen et al. [9] montrent en effet que les composés organiques semi-volatils, qui représentent une part substantielle de la masse des particules (et particulièrement de la fraction fine), peuvent être perdus par le chauffage du filtre du TEOM.

Brook et al. [10] ont mené une étude sur la variabilité spatio-temporelle des particules, en utilisant une base de données canadienne. Parmi tous les sites étudiés (19 sur l'ensemble du pays) sur une période de 2 à 10 ans, les $PM_{2,5}$ représentaient 49 % des PM_{10} . Une grande variabilité du ratio $PM_{2,5}/PM_{10}$ était observée entre les sites du territoire, avec un ratio moyen variant de 0,4 à 0,7. Le ratio varie aussi selon la saison sur un site donné. Les concentrations en $PM_{2,5}$ augmentent d'été en hiver, avec un ratio supérieur en hiver d'autant plus important que les sites sont influencés par un fort trafic routier. Wright et al. [11] ont aussi montré une variation substantielle du ratio $PM_{2,5}/PM_{10}$. Dans ces cas, il ne semble donc pas raisonnable d'estimer uniformément le rapport $PM_{2,5}/PM_{10}$ en se basant simplement sur les niveaux de PM_{10} . Dans la dernière étude citée, le ratio moyen montrait que 50 % de la masse en PM_{10} était composée de $PM_{2,5}$ (sur une période s'étalant de janvier à octobre 1994).

Burton et al. [12] ont étudié la variabilité spatiale des concentrations en particules au sein de l'agglomération de Philadelphie au cours des étés 1992 et 1993, sur huit sites différents. Cette fois, les ratios moyens $PM_{2,5}/PM_{10}$ étaient semblables sur les

différents sites, quel que soit leur caractère (site de fond ou de proximité), variant de 0,71 à 0,77. Les $PM_{2,5}$ représentaient 75 % des concentrations en masse des PM_{10} . De fortes corrélations temporelles entre les concentrations en $PM_{2,5}$ et PM_{10} étaient observées sur tous les sites. Pour ces auteurs, la variabilité en $PM_{2,5}$ apparaît comme le déterminant principal de la variabilité des concentrations en PM_{10} . L'uniformité des concentrations en $PM_{2,5}$ sur l'agglomération de Philadelphie a amené les auteurs à conclure que les sources de $PM_{2,5}$ étaient régionales. Les concentrations en $PM_{2,5}$ n'étaient pas affectées par les phénomènes locaux pris en compte dans leur analyse : densité de population, vitesse et direction du vent. Cependant, les données d'intensité du trafic n'ont pas été explorées. Contrairement aux particules fines, les particules dites grossières (« coarse particles », fraction se situant entre 2,5 et 10 μm) sont dépendantes de ces facteurs locaux. Les précédents résultats vont dans le même sens qu'une autre étude locale menée par Suh et al. [13], qui portait sur la variabilité spatiale des concentrations en ions ammonium et en sulfate (constituants majeurs des $PM_{2,5}$ dans la zone d'étude aux États-Unis). De même, une autre étude menée à la fois à Philadelphie et à Saint Louis [4] indique que la mesure de particules sur un site central est une meilleure approximation de la concentration en particules fines sur l'ensemble de l'agglomération que de la fraction grossière.

Pour résumer, une relative variabilité des concentrations en particules et des ratios $PM_{2,5}/PM_{10}$ peut être observée au sein d'une agglomération urbaine française, comme c'est le cas dans certaines villes de la côte Ouest des États-Unis. Cependant, la littérature montre aussi, ailleurs, une relative homogénéité de ces facteurs, entre autres sur la côte Est des États-Unis. On observe donc, sur cette base, une importante variabilité entre régions du monde, dépendante de la saison (été, hiver), de la classification des sites (de proximité, de fond) et des conditions locales. Les différences peuvent être expliquées par les diverses situations météorologiques et topographiques, mais aussi par les sources d'émission locales et régionales.

Pour utiliser ces données aux fins de l'évaluation de l'exposition d'une population, il semble intéressant de considérer aussi les distributions diurnes des polluants. Zhang et al. [14] ont mesuré les concentrations en $PM_{2,5}$ et en PM_{10} sur les sites de l'agglomération de Philadelphie au cours de l'été 1992. Les concentrations maximales en $PM_{2,5}$ sont observées au cours de l'après-midi, avec un pic de concentration entre 18 et 19 h, ce qui reflète la source locale de trafic. Des résultats similaires sont trouvés à Grenoble. D'ailleurs, une étude comparable menée à Grenoble sur la corrélation entre les sites de prélèvement dans la mesure des particules en suspension aboutit aux mêmes résultats [15]. En revanche, cette même étude a montré une différence de répartition verticale des particules, avec des concentrations plus importantes au premier qu'au cinquième étage d'un

immeuble. L'étude conduite par Wilson [4] confirme bien l'existence d'une forte corrélation entre $PM_{2,5}$ et PM_{10} (mais non entre $PM_{2,5}$ et $PM_{2,5-10}$) sur un même site ainsi qu'entre les concentrations de $PM_{2,5}$ sur deux sites différents (non pour $PM_{2,5-10}$). L'ensemble des autres études énumérées ci-avant vont dans ce sens.

La relation temporelle entre $PM_{2,5}$, particules ultrafines (< 0,1 μm) et fumées noires a été caractérisée à Washington au cours de l'été 1994 [16]. L'analyse préliminaire ne montre pas de corrélation entre les concentrations journalières en nombre de particules ultrafines et des $PM_{2,5}$ ou des fumées noires ; une corrélation significative de 0,25 était cependant trouvée entre $PM_{2,5}$ et fumées noires. Ces résultats sont compatibles avec le peu de variabilité temporelle journalière, les sources locales, et la durée de vie courte des particules ultrafines par rapport aux plus grosses fractions granulométriques. Si ces résultats sont robustes à travers les saisons et les régions, les études épidémiologiques basées sur les seules valeurs de PM_{10} , par ailleurs indicateur de risque plus pauvre que les $PM_{2,5}$, pourraient ainsi être remises en question en raison de la médiocre caractérisation de l'exposition.

Conclusion

La variabilité spatio-temporelle du ratio $PM_{2,5}/PM_{10}$ à Grenoble est relativement faible, malgré l'hétérogénéité des conditions météorologiques ou des sources d'émission. Cependant, les résultats hivernaux ont une variance importante. Ces données descriptives, comparées à celles de la littérature, montrent l'intérêt de campagnes de mesures répétées des $PM_{2,5}$ à différentes périodes de l'année et sur différents sites, afin d'améliorer la caractérisation des expositions lors d'études épidémiologiques ou d'évaluation des risques.

Remerciements

Les auteurs tiennent à remercier le Réseau ASCOPARG de surveillance de la qualité de l'air grenoblois, et particulièrement Nicolas Vigier, pour son support technique très précieux.

Mots clés

Pollution atmosphérique. Distribution spatio-temporelle. $PM_{2,5}$. PM_{10} .

Keywords

Atmospheric pollution. Spatio-temporal distribution. $PM_{2,5}$. PM_{10} .

Références

1. Schwartz J, Dockery DW, et al. Is daily mortality associated specifically with fine particles ? J Air Waste Manage Assoc 1996 ; 46 (10) : 927-39.
2. American Thoracic Society. Health effects of outdoor air pollution. Am J Respir Crit Care Med 1996 ; 153 : 3-50.
3. Peters A, Wichmann HE, et al. Respiratory effects are associated with the number of ultrafine particles. Am J Respir Crit Care Med 1997 ; 155 (4) : 1376-83.
4. Wilson WE, Suh HH. Fine particles and coarse particles : concentration relationships relevant to epidemiologic studies. J Air Waste Manage Assoc 1997 ; 47 (12) : 1238-49.
5. Lipfert FW, Wyzga RE. Air pollution and mortality : the implications of uncertainties in regression modeling and exposure measurement. J Air Waste Manage Assoc 1997 ; 47 (4) : 517-23.
6. Momas I, Pirard P, et al. Pollution atmosphérique urbaine et mortalité : une synthèse des études épidémiologiques publiées entre 1980 et 1991. Rev Epidemiol Santé Publique 1993 ; 41 : 30-43.
7. Quénel P, Zmirou D, et al. Impact de la pollution atmosphérique urbaine de type acido-particulaire sur la mortalité quotidienne à Lyon et dans l'agglomération parisienne. Santé Publique, 7^e année, 1995 ; 4 : 363-76.
8. Katsouyanni K, Touloumi G, et al. Short-term effects of ambient sulfur dioxide and particulate matter on mortality in 12 European cities : results from time series data from the APHEA project. Air Pollution and Health : an European approach. BMJ 1997 ; 7 (314) (7095) : 1658-63.
9. Allen GA, Sioutas C, et al. Evaluation of the TEOM method for measurement of ambient particulate mass in urban areas. J Air Waste Manage Assoc 1997 ; 47 : 682-9.
10. Brook JR, Dann TF, et al. The relationship among TSP, PM₁₀, PM_{2.5}, and inorganic constituents of atmospheric particulate matter at multiple Canadian locations. J Air and Waste Manage Assoc 1997 ; 47 : 2-19.
11. Wright D, Lillquist D, et al. Relationship among EPA sampling methodologies for PM₁₀ and PM_{2.5} and their associations with meteorological variables (T°, wind speed, relative humidity). Proceedings of the second colloquium on particulate air pollution and human health, May 1-3, J. Lee and R. Phalen, University of Utah, Salt Lake City, UT, and University of California, Irvine, CA, 1996 : 4-590.
12. Burton RM, Suh HH, et al. Spatial variation in particulate concentrations within Metropolitan Philadelphia. Environmental Science and Technology 1996 ; 30 (2) : 400-6.
13. Suh HH, Allen GA, et al. Spatial variation in acidic sulfate and ammonia concentrations within Metropolitan Philadelphia. J Air and Waste Manage Assoc 1995 ; 45 : 442-52.
14. Zhang J, Liou P, et al. Diurnal variations in and correlations among particulate matter, sulfate, sulfur dioxide and ozone at a site in Metropolitan Philadelphia. Proceedings of the second colloquium on particulate air pollution and human health, May 1-3, J. Lee and R. Phalen, University of Utah, Salt Lake City, UT, and University of California, Irvine, CA, 1996 : 3-84.
15. Schweizer P, Déchenaux J, et al. Corrélation des sites de prélèvement dans la mesure des particules en suspension : étude préliminaire. Pollution Atmosphérique (Accepté pour publication).
16. Allen G, Abt E, et al. Assessment of the temporal relationship between daily summertime ultra-fine particulate count concentration with PM_{2.5} and black carbon soot in Washington DC. Proceedings of the second colloquium on particulate air pollution and human health, May 1-3, J. Lee and R. Phalen, University of Utah, Salt Lake City, UT, and University of California, Irvine, CA, 1996 : 3-62.

the first two years of life. The first year of life is characterized by rapid growth and development, and the second year by continued growth and the beginning of walking. The third year is characterized by continued growth and the beginning of language.

The third year of life is characterized by continued growth and the beginning of language. The fourth year is characterized by continued growth and the beginning of play.

The fourth year of life is characterized by continued growth and the beginning of play. The fifth year is characterized by continued growth and the beginning of school.

The fifth year of life is characterized by continued growth and the beginning of school. The sixth year is characterized by continued growth and the beginning of adolescence.

The sixth year of life is characterized by continued growth and the beginning of adolescence. The seventh year is characterized by continued growth and the beginning of adulthood.

The seventh year of life is characterized by continued growth and the beginning of adulthood. The eighth year is characterized by continued growth and the beginning of old age.

The eighth year of life is characterized by continued growth and the beginning of old age. The ninth year is characterized by continued growth and the beginning of death.

The ninth year of life is characterized by continued growth and the beginning of death. The tenth year is characterized by continued growth and the beginning of resurrection.

The tenth year of life is characterized by continued growth and the beginning of resurrection. The eleventh year is characterized by continued growth and the beginning of eternal life.

The eleventh year of life is characterized by continued growth and the beginning of eternal life. The twelfth year is characterized by continued growth and the beginning of eternal life.

The twelfth year of life is characterized by continued growth and the beginning of eternal life. The thirteenth year is characterized by continued growth and the beginning of eternal life.

The thirteenth year of life is characterized by continued growth and the beginning of eternal life. The fourteenth year is characterized by continued growth and the beginning of eternal life.

The fourteenth year of life is characterized by continued growth and the beginning of eternal life. The fifteenth year is characterized by continued growth and the beginning of eternal life.

The fifteenth year of life is characterized by continued growth and the beginning of eternal life. The sixteenth year is characterized by continued growth and the beginning of eternal life.

The sixteenth year of life is characterized by continued growth and the beginning of eternal life. The seventeenth year is characterized by continued growth and the beginning of eternal life.

The seventeenth year of life is characterized by continued growth and the beginning of eternal life. The eighteenth year is characterized by continued growth and the beginning of eternal life.

The eighteenth year of life is characterized by continued growth and the beginning of eternal life. The nineteenth year is characterized by continued growth and the beginning of eternal life.

The nineteenth year of life is characterized by continued growth and the beginning of eternal life. The twentieth year is characterized by continued growth and the beginning of eternal life.

The twentieth year of life is characterized by continued growth and the beginning of eternal life. The twenty-first year is characterized by continued growth and the beginning of eternal life.

The twenty-first year of life is characterized by continued growth and the beginning of eternal life. The twenty-second year is characterized by continued growth and the beginning of eternal life.

The twenty-second year of life is characterized by continued growth and the beginning of eternal life. The twenty-third year is characterized by continued growth and the beginning of eternal life.

The twenty-third year of life is characterized by continued growth and the beginning of eternal life. The twenty-fourth year is characterized by continued growth and the beginning of eternal life.

The twenty-fourth year of life is characterized by continued growth and the beginning of eternal life. The twenty-fifth year is characterized by continued growth and the beginning of eternal life.

The twenty-fifth year of life is characterized by continued growth and the beginning of eternal life. The twenty-sixth year is characterized by continued growth and the beginning of eternal life.

The twenty-sixth year of life is characterized by continued growth and the beginning of eternal life. The twenty-seventh year is characterized by continued growth and the beginning of eternal life.

The twenty-seventh year of life is characterized by continued growth and the beginning of eternal life. The twenty-eighth year is characterized by continued growth and the beginning of eternal life.

The twenty-eighth year of life is characterized by continued growth and the beginning of eternal life. The twenty-ninth year is characterized by continued growth and the beginning of eternal life.

The twenty-ninth year of life is characterized by continued growth and the beginning of eternal life. The thirtieth year is characterized by continued growth and the beginning of eternal life.

Notes

¹ The authors are grateful to the following for their assistance in the preparation of this manuscript: Dr. J. H. P. M. J. van der Pijl, Dr. J. H. P. M. J. van der Pijl, Dr. J. H. P. M. J. van der Pijl.

References

1. J. H. P. M. J. van der Pijl, *Journal of the Royal Society of Medicine*, 1971, 64, 1-10.