



Les journées techniques RSEIN / OQAI

" Les particules dans l'air intérieur "

Les 22 et 23 novembre 2010 Université Lille 1



Edito

L'importance de la problématique de l'air intérieur au cours des années 2000, a vu une forte implication du monde scientifique et, de ce fait, a ouvert des perspectives extrêmement innovantes. Cela a été marqué par un changement profond dans la perception et les attentes sociétales vis-à-vis des risques liés à la qualité de l'air intérieur. La prise en compte de ces risques est une des missions majeures de l'ensemble des intervenants de ces deux journées qui se sont tenues à Lille.

Parmi les multiples thématiques de l'air intérieur, la présence ubiquitaire des particules en fait un enjeu de premier ordre. L'évaluation de l'impact sur la santé des particules de l'air intérieur passe nécessairement par l'identification des sources, la détermination de la taille et de la composition des particules. Au cours de ces journées, les conférenciers ont mis en commun leur expertise et leurs travaux de recherche les plus récents.

Les données de la campagne logement concernant les particules (PM_{10} et $PM_{2,5}$) ont montré que la pollution particulaire à l'intérieur d'un logement pouvait être très importante, du même ordre de grandeur que la pollution extérieure dans une zone industrielle. Mais la composition des particules est encore mal connue et ne permet pas, en l'état actuel des connaissances, de faire le lien avec des effets sur la santé. Les résultats montrent également le rôle important des activités domestiques sur des pics de pollution particulaire à l'intérieur des logements.

Deux présentations sur les systèmes de filtration apportent des informations quant aux risques potentiels d'un mauvais entretien des systèmes et l'importance du choix de l'efficacité du filtre sur la qualité particulaire de l'air intérieur.

Plusieurs présentations ont également abordé la thématique de la contamination microbiologique et de la pollution pollinique. Les travaux présentés montrent notamment qu'il est difficile de quantifier et de qualifier précisément la pollution biologique du fait de la présence concomitante d'organismes viables/non viables et cultivables/non cultivables.

Les expositions des Franciliens dans les transports ont été étudiées lors de plusieurs campagnes de mesure réalisées au sein de voitures sur des trajets domicile/travail ou dans des gares RER. Les concentrations maximales, lors des trajets en voiture, sont retrouvées lorsque le trafic est le plus dense ou lors du passage dans des tunnels. Les gares RER en profondeur sont peu impactées par le trafic routier de surface et la

pollution particulaire provient principalement des systèmes de freinage ou de la remise en suspension des particules lors du passage des rames.

Afin d'apporter des recommandations visant à réduire l'impact des particules de l'air intérieur, il est important de connaître les sources d'émission. Les travaux présentés au cours de ces journées permettent de mieux connaître la pollution due aux systèmes de chauffage d'appoint ainsi que les sources majeures de pollution particulaire et la distribution des particules dans un logement. Un exemple de caractérisation des particules dans l'air intérieur d'une école a également été présenté.

L'amélioration des outils numériques et métrologiques permet aujourd'hui de pouvoir simuler les processus complexes de transport des petites particules, d'étudier les réactions secondaires en présence de particules ou encore d'étudier les composés adsorbés sur celles-ci. Un projet de plusieurs années a démarré en vue de connaître l'exposition et les effets sur la santé des enfants liés aux composés organiques semi-volatils, dont une part importante est adsorbée sur les poussières. Les premiers travaux engagés concernent notamment la métrologie à mettre en œuvre afin de connaître précisément les concentrations de chaque phase.

Alors que les effets sur la santé des particules ne sont plus à démontrer, la part des effets spécifiquement dus aux particules de l'air intérieur reste à qualifier et à quantifier. Ce manque de données n'a d'ailleurs pas permis au groupe d'experts de l'Anses de fixer une valeur guide de l'air intérieur pour les particules PM_{10} et $PM_{2,5}$. L'Anses recommande aujourd'hui de s'appuyer sur les valeurs guide établies pour l'air extérieur. Enfin, une communication nous a alertés sur l'importance de maîtriser tous les paramètres d'un purificateur d'air (efficacité de filtration, étanchéité, aéraulique) afin d'assurer une qualité d'air adaptée au besoin.

Ce numéro spécial du Bulletin RSEIN présente une sélection d'articles issus des conférences de ces journées. Certaines de ces présentations sont d'ailleurs disponibles sur le site des journées RSEIN/OQAI : www.rsein2010.fr

Merci encore à tous les intervenants d'avoir partagé leurs connaissances et au public très nombreux pour sa participation à ces journées.

Juliette Larbre
INERIS

Session : État des connaissances

Suivi du comportement d'un aérosol microbien formé d'un consortium bactérien – fongique au niveau de l'étage de filtration d'une centrale de traitement de l'air – Application au bâtiment tertiaire

A. FORTHOMME^{1*}, L. LE COQ¹, Y. ANDRES¹, A. JOUBERT¹, D. BEMER², P. DUQUENNE², X. SIMON²

¹Ecole des Mines de Nantes, GEPEA, UMR 6144, 4 rue Alfred Kastler, BP 20722, 44307 Nantes cedex 03 France.

²Institut National de Recherche et de Sécurité, Rue du Morvan – CS 60027, 54519 Vandoeuvre les Nancy Cedex.

Contexte

On assiste depuis plusieurs années à une évolution des modes de vie qui conduit la population à passer un temps de plus en plus long à l'intérieur des locaux. Ainsi, les habitants des pays industrialisés occupent plus de 80 % de leur temps dans des espaces clos (logements, bureaux, transports, écoles,...) (Squinazi, 2002). Dans l'objectif de diminuer les consommations d'énergie, une réglementation nouvelle concernera les bâtiments neufs dès 2012. Les mutations dans le domaine de la construction seront profondes et porteront entre autres sur l'isolation de l'enveloppe, les systèmes de chauffage, de ventilation et de climatisation. Or un meilleur confinement des espaces clos pourra entraîner des risques de pollutions accrus à l'intérieur des bâtiments. Il convient donc d'assurer une qualité de l'air acceptable pour la santé des occupants. Actuellement, la tendance générale dans les structures du tertiaire consiste déjà à utiliser des dispositifs complexes, les Centrales de Traitement de l'Air (CTA), pour assurer un renouvellement de l'air dans le bâtiment en générant des flux d'air à l'intérieur des locaux. Cependant, malgré plusieurs étages de filtration, l'air généré par la CTA contient différents polluants. Ces polluants gazeux, particulaires et microbiens dépendent de l'origine de l'air (extérieur, recyclage) et de la stratégie de conception et de fonctionnement de la CTA. Les aérosols microbiens, bioaérosols, forment une catégorie de particules aéroportées. L'intérêt porté à leur égard a considérablement augmenté ces dernières années. Il est désormais démontré que des expositions trop importantes ou trop longues à des agents biologiques dans les espaces intérieurs occupés et résidentiels peuvent être associées à des problèmes de santé d'une grande variabilité : maladies contagieuses, effets toxiques aigus, allergies, cancers (Douwes *et al.*, 2003). Les filtres utilisés dans les CTA permettent la capture des bioaérosols mais, selon les conditions climatiques et les conditions de

fonctionnement de la CTA, ces derniers peuvent également les coloniser (Kelkar *et al.*, 2005). Les risques associés sont le réentraînement des microorganismes dans l'air traité, le colmatage accéléré des filtres ou encore leur perte d'efficacité (Bonnevie Perrier *et al.*, 2008).

Objectifs

Le travail de recherche réalisé en partenariat entre l'École des Mines de Nantes et l'INRS (Institut National de Recherche et de Sécurité) consistera à étudier les conditions de développement microbien sur des filtres de CTA de bâtiment du tertiaire, ainsi que le risque de dégradation de la qualité microbiologique de l'air en aval de ces filtres. Pour cela, des médias fibreux de différentes natures seront contaminés via un pilote expérimental reproduisant les conditions aérauliques de filtration dans une CTA. Les filtres contenant les microorganismes seront ensuite placés en milieu clos sous des conditions de température et d'humidité fixées afin d'observer le développement microbien à des temps variables représentatifs d'arrêt de ventilation de CTA.

Matériel et méthodes

Dans un 1^{er} temps, un consortium microbien constitué de bactéries *E.coli* et de spores de champignons *Poxalicum* sera constitué selon un protocole adapté qui a été établi pour ces travaux. Une étude de la survie du consortium maintenu dans de l'eau ultra pure à +4 °C a démontré sa stabilité dans de telles conditions et cela pendant au minimum 10 jours. Le consortium sera ensuite nébulisé dans le dispositif expérimental de filtration développé pour l'étude et présenté sur la figure 1 ci après.

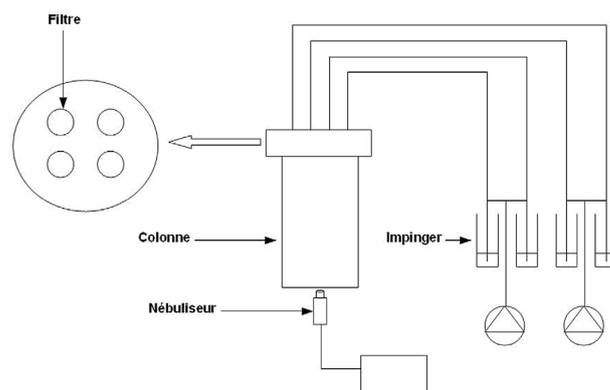


Figure 1. Schéma représentant le pilote expérimental

Trois filtres seront installés en parallèle en haut de la colonne et le 4^{ème} emplacement restera vide. Deux pompes placées en aval du système assureront une vitesse de filtration verticale constante de 0,2 m.s⁻¹ à travers chaque filtre. Un nébuliseur médical, sera utilisé pour générer dans la colonne le consortium microbien. Une partie des particules sera alors retenue sur les filtres, les autres seront capturées dans le liquide de collecte (NaCl, 9 %) contenu dans des

impingers où l'air sera aspiré à $14 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$. Les microorganismes retenus sur les filtres seront extraits à l'aide d'un protocole d'extraction (Bonnevie-Perrier, 2008, Université de Nantes). Ils seront placés dans une solution (MgSO_4 , $0,01 \text{ M}$) sous agitation ($300 \text{ tr}\cdot\text{min}^{-1}$ pendant 1 h) avant d'être irradiés aux ultrasons pendant 1 min . Les bactéries et champignons cultivables seront alors quantifiés par culture sur milieu gélosé, milieu TTC et rose bengale (UFC (Unité Formant Colonie)/ml). Un comptage sera également réalisé sur les microorganismes capturés dans chaque impinger. Le taux d'ergostérol, considéré comme marqueur le plus sensible de la biomasse fongique (Seitz *et al.*, 1977) et supposé évaluer la globalité des champignons, sera également mesuré.

Deux types de filtres F7 de nature différente (fibres synthétiques et fibres de verre), couramment utilisés dans les CTA, seront étudiés. Les filtres seront préalablement traités par une solution nutritive (N, K, P) simulant l'apport que représentent les gaz et les particules retenues sur les filtres des CTA en conditions réelles de fonctionnement. Plusieurs informations sont attendues suite à ces expérimentations. Dans un premier temps les mesures de cultivabilité microbienne (UFC) et du taux d'ergostérol contenus dans les impingers permettront d'étudier la survie et le relargage des microorganismes après passage au travers des médias fibreux étudiés. Le témoin sans média fibreux permettra de constater l'effet de la nébulisation sur la survie des microorganismes. Dans un second temps, les résultats issus des mesures de microorganismes provenant des filtres permettront de comparer l'efficacité des médias fibreux. Ces différentes étapes sont résumées sur la figure 2.

La suite de l'expérience consistera à placer les filtres dans une enceinte à température et à humidité relative contrôlées, afin d'observer le développement des microorganismes sur plusieurs jours. Les mesures se feront en deux temps : après 48 h , simulant ainsi un arrêt de ventilation d'un week-end et après 168 h , caractéristique d'un arrêt d'une semaine en période de vacances. Après chaque temps d'attente, dans les conditions fixées, plusieurs tests seront réalisés. Tout d'abord, la mesure du relargage des microorganismes dans l'air en simulant la remise en route d'une CTA. Le filtre contaminé sera ainsi placé dans une colonne de filtration instrumentée, où sera installé en aval un filtre HEPA, considéré comme absolu, duquel seront extraits les microorganismes provenant du relargage du filtre testé. Ensuite, des tests de perméabilité ainsi que l'observation des filtres en microscopie électronique à balayage délivreront d'autres informations sur les éventuelles conséquences d'une colonisation des microorganismes sur les médias.

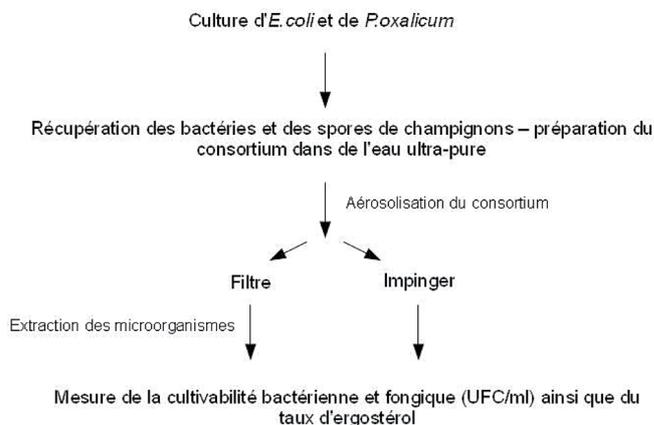


Figure 2. Schéma représentant le pilote expérimental

Conclusion

Actuellement il existe peu de données concernant le comportement des microorganismes sur les filtres de CTA. Plusieurs facteurs influencent leur développement tels que l'humidité de l'air et la présence de nutriments. Cette étude a permis de développer une méthode expérimentale dans le but de répondre à cette problématique et ainsi mieux maîtriser les risques encourus par les occupants des bâtiments ventilés par des CTA.

Références bibliographiques

- Bonnevie Perrier JC., Le Coq L., Andres Y., Le Cloirec P. (2008). Microbial Growth onto Filter Media Used in Air Treatment Devices. *International Journal of Chemical Reactor Engineering*, 6, A9.
- Bonnevie-Perrier JC. (2008). Etude du comportement des aerosols microbiens dans les filtres des réseaux de ventilation du bâtiment. Thèse de doctorat. Université de Nantes.
- Douwes J., Thorne P., Pearce N., & Heederik D. (2003). Bioaerosol health effects and exposure assessment: Progress and prospects. *Annals of Occupational Hygiene*, 47(3), 187-200.
- Kelkar U., Bal A.M., Kulkarni S. (2005). Fungal contamination of air conditioning units in operating theatres in India. *J. Hosp. Infect.* 60 (1), 81-84.
- Seitz L.M., Mohr H.E., Burroughs R., Salier D.B. (1977). Ergosterol as an indicator of fungal invasion in grains. *Cereal Chem.*, 54, 1207-1217.
- Squinazi F. (2002). La pollution de l'air à l'intérieur des bâtiments (allergènes exclus), *Revue Française d'Allergologie et d'Immunologie Clinique*, 42 (3), 248-255.

Session : Sources d'émission

Émissions de particules par les chauffages d'appoint à pétrole

Marion Carteret, Benjamin Hanoune, Jean-François Pauwels

PC2A, UMR 8522 CNRS – Lille 1, Université Lille 1 Sciences et Technologies, Bâtiments C11 /C5 59655 Villeneuve d'Ascq CEDEX

Contexte

Depuis une trentaine d'années, les poêles à pétrole font l'objet de critiques en raison de la dégradation de la qualité de l'air intérieur qu'ils engendrent lors de leur fonctionnement, notamment par l'émission de particules d'aérosols. D'après les données bibliographiques disponibles, les poêles à pétrole émettent des particules sphériques et des agrégats de chaînes carbonées dans un intervalle de taille de 0,1 à plusieurs μm , avec une large majorité ayant un diamètre d'environ 0,2 μm , sur lesquelles sont adsorbés des Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP) (Tu, 1983). Les aérosols acides (H^+) émis par les poêles à pétrole (Leaderer, 1999) peuvent affecter le système respiratoire par une diminution de la fonction pulmonaire, de l'asthme... (Sue, 1992). L'influence du type d'appareil de chauffage sur la production particulaire n'est pas clairement établie (Traynor, 1983 ; Mumford, 1992 ; Arashidani, 1996), néanmoins les auteurs s'accordent sur l'augmentation du taux de génération des particules à l'allumage du poêle et sa décroissance progressive (Trichenor, 1990 ; Zhou, 2000).

Objectif

Notre travail a pour but d'actualiser les données existantes en étudiant les émissions lors de l'utilisation de modèles récents de poêles à pétrole, fonctionnant avec des carburants répondant à des normes de qualité plus contraignantes, en mettant à profit les progrès techniques analytiques.

Matériel et méthodes

Émissions de particules de 0,3 à 10 μm de diamètre

Les mesures ont été réalisées à l'aide d'un compteur optique de particules portable AEROTRAK Model 8220 (TSI, Shoreview, U.S.A.), dans une gamme de diamètres aérodynamiques allant de 0,3 à 10,0 μm . Le compteur est situé à 3 m d'un poêle à pétrole à mèche (Tayosan 263) fonctionnant avec un carburant « de base » (PTX 2000), et à 1 m de hauteur dans une pièce d'environ 80 m^3 . L'appareil a mesuré en continu les particules quel que soit le régime de fonctionnement du poêle (avant chauffage, allumage, régime « continu », extinction, après chauffage).

Émissions de particules ultra-fines (inférieures à 0,1 μm)

Les mesures de particules ultra-fines ont été faites grâce à un SMPS (SMPS 3936, TSI, Shoreview, U.S.A.), dans une pièce d'environ 140 m^3 . La sonde de prélèvement des particules a été placée à proximité immédiate du chauffage radiant, fonctionnant avec le même carburant PTX 2000 (45 cm au-dessus du sol et à 15 cm de la grille du chauffage). Nous avons réalisé un scan en taille (15 à 700 nm) des particules présentes dans la pièce (impacteur 0,0457 cm, low flow mode 0,3 L/min). La porte et une fenêtre étaient ouvertes, afin de manipuler dans une atmosphère « respirable », c'est-à-dire pour ne pas être trop gênés par les odeurs.

Résultats

Les résultats de mesure des émissions pour les particules de 0,3 à 10 μm de diamètre sont présentés dans la Figure 1

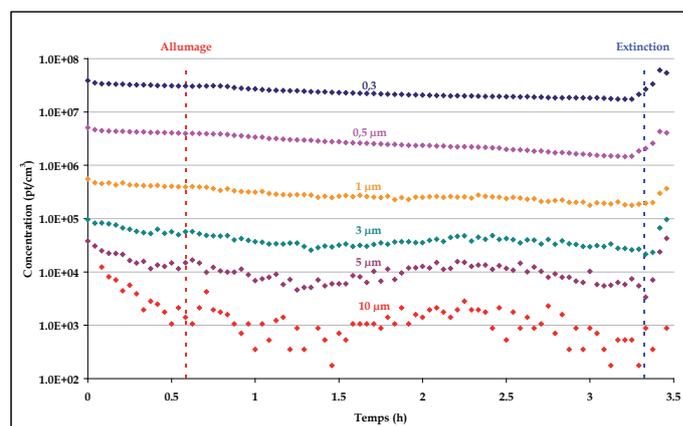


Figure 1. Emissions de particules (0,3 à 10 μm) lors du fonctionnement du poêle à mèche

De façon générale, les courbes sont décroissantes, ce qui traduit la déposition des particules mises en suspension lors de l'occupation de la pièce par l'opérateur, en particulier les plus grosses (5 à 10 μm). Il y a très peu de variations en concentration pour les particules inférieures à 1 μm .

On observe, après une heure de fonctionnement du poêle, une augmentation du nombre de particules de diamètre supérieur à 3 μm , pouvant être attribuée à une coagulation de particules plus petites, ou bien provenant directement du poêle. Ces hypothèses doivent être vérifiées dans des conditions plus contrôlées permettant de s'affranchir des mouvements d'air, avec des analyses plus poussées lors du fonctionnement du poêle, incluant également la distribution spatiale des particules

Les concentrations de particules ultrafines dans l'air sont maximales pour des diamètres aérodynamiques compris entre 15 et 30 nm (Figure 2), tandis que les concentrations massiques maximales à l'allumage et à l'extinction se situent aux alentours de 300 nm (Figure 3).

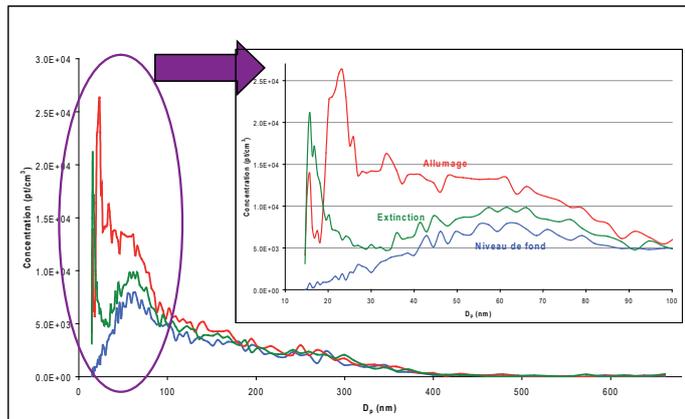


Figure 2. Nombre de particules par cm^3 en fonction de leur taille.

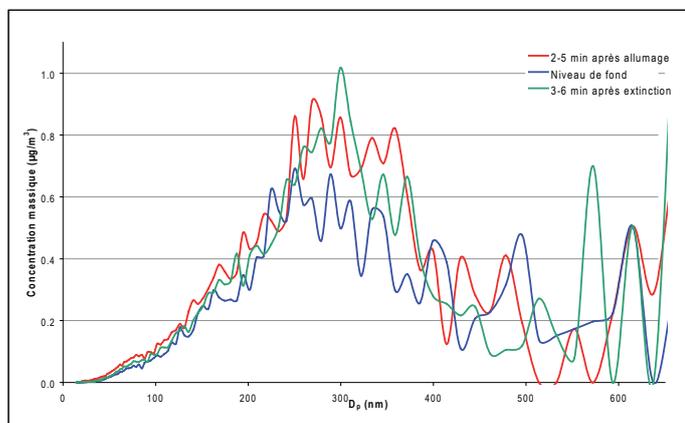


Figure 3. Concentrations massiques en fonction du diamètre des particules.

L'évolution temporelle des concentrations massiques (Figure 3) pour les particules de diamètre compris entre 15 et 700 nm montre qu'il existe une augmentation de production de particules lors de l'allumage et de l'extinction du chauffage à pétrole. Etant donné les conditions expérimentales (ventilation non contrôlée, particules assimilées à du carbone graphite...), nous ne pouvons pas comparer nos données avec les recommandations de l'OMS pour les $\text{PM}_{2,5}$ qui sont de $10 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ en moyenne annuelle et $25 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ sur 24 h (Directive 1999/30/CE). Néanmoins, nos concentrations massiques calculées sont déjà supérieures à $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ si on assimile les particules à du carbone, et toujours supérieures à $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ si on inclut du sulfate (Leaderer, 1999). Il sera nécessaire par la suite d'évaluer l'impact sur les tailles de particules mesurées de la distance entre la source et le point de prélèvement, autrement dit vérifier le phénomène de coagulation.

Relation entre la présence de suies et les facteurs d'émission des polluants gazeux d'un poêle à pétrole à mèche

Des tests en chambre environnementale (8 m^3 , taux de renouvellement d'air fixé à 6 h^{-1}) ont été réalisés avec le poêle à mèche et divers carburants. Les concentrations en oxydes d'azote sont mesurées avec un analyseur à chimiluminescence (NOx 2000, SERES), et le monoxyde

de carbone avec un analyseur à infrarouge (CO 11 M, Environnement S.A.). Les composés carbonyles sont prélevés sur cartouche DNPH (cartouche Supelco LpDNPH S10, Sigma-Aldrich) et sont analysés par HPLC-UV. La température, l'humidité relative et le CO_2 sont mesurés grâce à une sonde portable (HD37B17D, ATC Mesures). Les COV sont prélevés par canisters (6 L, 18 mL/min) et tubes Tenax (20 min, 2 L/min). Les mesures ont été réalisées en l'absence et en présence de suies sur la grille extérieure et au-dessus du brûleur du poêle.

Avec un poêle « propre » (sans suies apparentes), l'augmentation des concentrations en oxydes d'azote (Figure 4) est progressive à partir de l'allumage jusqu'à atteindre un palier d'environ 450 ppb pour NO et 250 ppb pour NO_2 . Le seuil de 8,6 ppm en CO (directive 2000/69/CE) est dépassé (Figure 5), mais ce phénomène est transitoire et le niveau maximum atteint n'engendre pas de risque sanitaire.

En présence de suies, la concentration en NO_2 atteint 400 ppb, soit le double de la valeur du seuil d'alerte en air extérieur (200 ppb environ) et le monoxyde de carbone augmente continuellement, avec une concentration de l'ordre de 50 ppm au bout de 2 heures, ce qui est suffisant pour provoquer des étourdissements et des maux de tête.

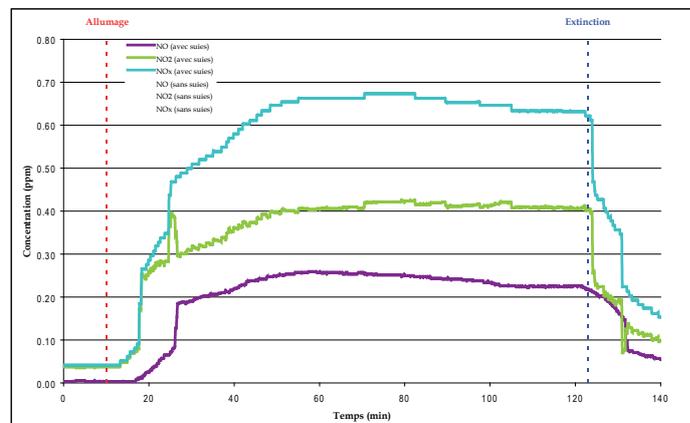


Figure 4. Emissions de NO_x avec et sans suies (Chauffage radiant, Zibro Bio, 6 h^{-1})

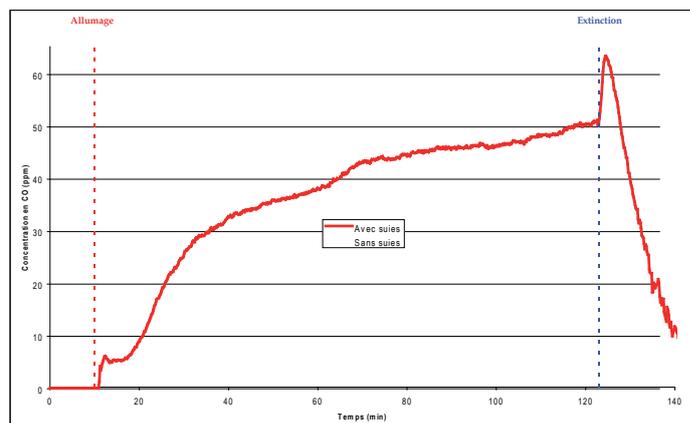


Figure 5. Emissions de monoxyde de carbone avec et sans suies (Chauffage radiant, Zibro Bio, 6 h^{-1})

Le formaldéhyde est émis en quantités plus importantes lorsque les suies sont présentes (environ 50 ppb avec suies sur 1 h, une dizaine de ppb sans suies).

Le constructeur prévient l'utilisateur de l'émission de CO et/ou de suies en cas de combustion incomplète, c'est-à-dire si la flamme est trop haute (ce qui est notre cas). Il préconise d'arrêter le fonctionnement et de contacter le revendeur ou une station technique agréée pour régler l'appareil. Ces résultats sont très importants puisqu'ils mettent en évidence un lien entre la présence de suies et la forte production de CO, dont le profil de concentration en fonction du temps est caractéristique de l'entretien du poêle.

Conclusion

On ne sait pas encore si la présence de suies est un indicateur de la présence significative d'autres composés que NO₂, CO et formaldéhyde. Des prélèvements de suies ont été effectués sur filtre quartz pour des analyses ultérieures. Nous souhaitons par la suite déterminer la nature des particules prélevées et des composants adsorbés pour compléter notre évaluation de l'exposition des utilisateurs aux polluants issus des poêles à pétrole.

De façon générale, peu d'évolution est observée entre les émissions polluantes mesurées il y a 30 ans et celles d'aujourd'hui, si ce n'est la diminution des émissions de SO₂, conséquence de la désulfuration des carburants (Traynor, 1982).

Références bibliographiques

Arashidani K., Yoshikawa M., Kawamoto T., Matsuno K., Kayama F. and Kodama Y. (1996). Indoor pollution from heating. *Ind. Health*, 34: 205-215.

Chen L.C., Qu Q. and Gordon T. (1996). Respiratory effects of kerosene space heater emissions. *Inhal. Toxicol.*, 8 : 49-64.

Kinouchi T., Nishifuji K., Tsutsui H., Hoare S.L. and Ohnishi Y. (1988). Mutagenicity and nitropyrene concentration of indoor air particulates exhausted from a kerosene heater. *Jpn. J. Cancer Res.*, 79 : 32-41.

Leaderer B.P. and Boone P.M. (1990). Total particle, sulfate, and acidic aerosol emissions from kerosene space heaters. *Environ. Sci. Technol.*, 24(6): 908-912.

Leaderer B.P., Naeher L., Jankun T., Balenger K., Holford T.R., Toth C., Sullivan J., Wolfson J.M. and Koutrakis P. (1999). Indoor, outdoor, and regional summer and winter concentrations of PM₁₀, PM_{2.5}, SO₄²⁻, H⁺, NH₄⁺, NO₃⁻, NH₃, and nitrous acid in homes with and without kerosene space heaters. *Environ. Health Perspect.*, 107(3) : 223-231.

Mumford J.L., Lewtas J., Williams K., Tucker W.G. and Traynor G.W. (1992). Mutagenicity of organic emissions from unvented kerosene heaters in a chamber study. *J. Toxicol. Environ. Health*, 36 : 151-159.

Ragland K.W., Andren A.W. and Manchester J.B. (1985). Emissions from unvented kerosene heaters. *Sci. Total Environ.*, 46 : 171-179.

Sue H.H., Spengler J.D. and Koutrakis P. (1992). Personal exposures to acid aerosols and ammonia. *Environ. Sci. Technol.*, 26(12) : 2507-2517.

Traynor G.W., Anthon D.W. and Hollowell C.D. (1982). Technique for determining pollutant emissions from a gas-fired range. *Atm. Environ.*, 16(12) : 2979-2987.

Traynor G.W., Allen J.R., Apte M.G., Girman J.R. and Hollowell C.D. (1983). Pollutant emissions from portable kerosene-fired space heaters. *Environ. Sci. Technol.*, 17 : 369-371.

Traynor G.W., Apte M.G. and Sokol H.A. (1990). Selected organic pollutant emissions from unvented kerosene space heaters. *Environ. Sci. Technol.*, 24 : 1265-1270.

Tichenor B.A., Sparks L.A., White J.B. and Jackson M.D. (1990). Evaluating sources of indoor air pollution. *J. Air Waste Manage. Assoc.*, 40 : 487-492.

Tu K.W. and Hinchliffe L.E. (1983). A study of particulate emissions from portable space heaters. *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.*, 44(11) : 857-862.

Zhou Y. and Cheng Y-S. (2000). Characterization of emissions from kerosene heaters in an unvented tent. *Aerosol Sci. Technol.*, 33 : 510-524.

Session : Sources d'émission

Impact environnemental sur la qualité de l'air du chauffage au bois en appareils indépendants – comparaison avec d'autres systèmes de chauffage

Caroline ROGAUME*, Yann ROGAUME*, Gwénaëlle TROUVE**, André ZOULALIAN*

* Nancy-Université, Laboratoire d'Etudes et de Recherche sur le MATériau Bois (LERMAB), Ecole Nationale Supérieure des Technologies et Industries du Bois (ENSTIB) 27 rue Philippe Séguin BP 1041, 88051 Epinal cedex 09, France

e.mail : caroline.rogaume@enstib.uhp-nancy.fr

** Université de Haute Alsace, Laboratoire de Gestion des Risque et Environnement (LGRE) 25 rue de Chemnitz, 68200 Mulhouse, France

Contexte

En France, le bois-énergie est la première énergie renouvelable dont près de 85 % sont utilisés dans des appareils de chauffage domestique, ce qui représente 8,5 MTep (mégatonne équivalent pétrole) depuis de nombreuses années. La hausse du prix des énergies fossiles, les engagements dans les divers protocoles internationaux et les incitations nationales (crédit d'impôt) favorisent encore ce développement, le bois étant très largement disponible sur tout le territoire, et son utilisation dans des appareils indépendants étant simple et conviviale.

Cependant, le chauffage au bois dans les appareils indépendants produit quelques émissions polluantes, comme toute combustion. Pour limiter ces émissions et rendre la combustion du bois de plus en plus propre, des normes ont été édictées [1 ; 2] et les principaux fabricants d'appareils se sont engagés avec l'ADEME et le Syndicat des Energies Renouvelables (SER) dans la labellisation « Flamme Verte » qui a pour objet de proposer des appareils de plus en plus performants tant au niveau énergétique qu'environnemental.

On remarque également que jusqu'il y a encore peu de temps, on se préoccupait davantage de la pollution émise directement dans le conduit d'évacuation des fumées que de celle générée dans l'air intérieur de la pièce où se situe l'appareil de chauffage. Ces dernières données deviennent essentielles actuellement, en particulier dans le cadre du Plan National Santé Environnement et de la volonté de définir une législation et des normes concernant la qualité de l'air intérieur et d'identifier clairement leurs impacts sanitaires. Des valeurs guides de qualité d'air intérieur sont en effet en préparation et viendront compléter celles qui existent déjà pour le monoxyde de carbone et le formaldéhyde [3 ; 4].

Objectifs

Ce travail a pour but d'établir un diagnostic des émissions polluantes sur des appareils de chauffage au bois indépendants en caractérisant la qualité de l'air intérieur. Les polluants étudiés ont été choisis en se basant sur des travaux d'investigation antérieurs [5 ; 15]. Ainsi, le monoxyde de carbone (CO), le dioxyde de carbone (CO₂), les composés organiques volatils et le méthane (COV et CH₄), les particules de différentes granulométries (PM₁₀ à PM_{0,1}) et les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) font l'objet de mesures en air intérieur.

Matériel et méthodes

Deux appareils indépendants de chauffage au bois représentatifs, un foyer fermé de puissance 9 kW et un foyer ouvert, ont été ainsi sélectionnés (commercialisés par SUPRA).

Pour compléter les résultats menés sur l'utilisation d'appareils de chauffage domestique au bois, il semblait intéressant de comparer les résultats obtenus avec ceux issus de l'utilisation d'appareils de chauffage indépendants sans conduit d'évacuation des fumées type poêle à pétrole ou poêle à gaz pour caractériser l'impact sur la qualité de l'air intérieur.

Les essais ont été réalisés dans un laboratoire d'essais représentatif d'une pièce à vivre de type salon (90 m³) dans lequel se trouverait installé un appareil de chauffage indépendant. Un renouvellement d'air est assuré par une ventilation mécanique simple flux dont le débit d'extraction est connu et pour lequel on mesure également la température de sortie de l'air. Le local dispose de deux entrées d'air frais extérieur dont les débits et températures sont mesurés. Selon les normes en vigueur [1 ; 2], l'appareil de chauffage au bois est connecté à un conduit de cheminée isolé d'une hauteur de 4 mètres et de diamètre 180 mm disposant de plusieurs ouvertures permettant les prises d'échantillon des différents analyseurs utilisés. Le tirage est régulé par un extracteur de fumées afin de maintenir une dépression constante de 12 Pa pour les essais normalisés réalisés en allure nominale.

Les émissions de particules ont été mesurées à l'aide d'un impacteur électrique basse pression (ELPI développé par DEKATI) qui permet en temps réel la mesure de la distribution de taille et de concentration de particules dispersées dans un gaz, dans une large plage comprise entre 30 nm et 10 µm par le phénomène physique de l'impaction. Les résultats sont exprimés en nombre de particules par unité de volume d'air prélevé selon la granulométrie des particules : PM₁₀, PM_{2,5}, PM₁ et PM_{0,1}.

Les analyses HAP ont été réalisées à l'aide d'un système de prélèvement à débit fixé sur lequel vient s'adapter une verrerie spécifique permettant de collecter les HAP

particulaires par piégeage sur filtre en fibres de quartz, et les HAP gazeux par adsorption sur une résine de type XAD-2 selon la norme NF X 43-329 [16].

L'analyse a porté sur 17 HAP spécifiques du protocole EPA : naphthalène, 2-méthyl naphthalène, acénaphène, fluorène, phénanthrène, anthracène, fluoranthène, pyrène, 2-méthyl fluoranthène, benzo (a) anthracène, chrysène, benzo (b) fluoranthène, benzo (k) fluoranthène, benzo (a) pyrène, dibenzo (a,h) anthracène, benzo (ghi) pérylène et indéno (1,2,3 cd) pyrène allant de C₁₀H₈ à C₂₂H₁₂.

Un analyseur de COV totaux et de méthane (HC 51 M, Environnement SA) a permis de quantifier en continu les concentrations selon une détection par ionisation de flamme.

Enfin, un système de mesure portable (AQ 5001 Pro, Quest Technologies) a permis de caractériser en continu la température d'ambiance, l'humidité relative de l'air, ainsi que la concentration en CO₂ (donnée en ppm) et la concentration en CO (en ppm) de l'air ambiant. La résolution sur les cellules de mesure de CO₂ et de CO est de 1 ppm.

Pour la combustion de bois, les essais ont été ainsi réalisés suivant les conditions prescrites par la norme [1] en utilisant un bois d'humidité sur brut fixe de 16 % sous allure nominale. Les chargements en combustible ont été réalisés suivant les recommandations de la norme et du fabricant des appareils et calculés de manière à garantir une durée d'essai supérieure à 60 minutes (durée équivalente pour les essais en poêles à pétrole et gaz). Pour tous les appareils, les résultats fournis sont des moyennes de 3 essais au minimum.

Résultats

Le tableau 1 présente l'ensemble des résultats des mesures effectuées en air intérieur pour les différents systèmes de chauffage étudiés.

Tableau 1 : récapitulatif des mesures de polluants en air intérieur pour divers systèmes de chauffage

Paramètres analysés		Sans chauffage	Foyer fermé	Foyer ouvert	Poêle à pétrole	Poêle à gaz
Paramètres de confort en air intérieur	CO (ppm)	2,0	6,7	10,6	7,6	6,8
	CO ₂ (ppm)	397	386	343	3 435	2 843
PM en nombre.Nm ⁻³	Nbre total PM10	1,69E+09	4,61E+10	7,26E+11	7,46E+10	2,02E+11
répartition en nombre % PM ₁₀	PM _{0,1}	-	64,11	74,42	94,81	84,79
	PM _{0,1-1}	-	35,81	25,57	5,16	15,19
	PM _{1-2,5}	-	0,07	0,01	0,02	0,02
	PM _{2,5-10}	-	0,01	0,00	0,01	0,00
COV	COVT (ppm)	2,25	3,79	3,73	3,10	3,78
	CH ₄ (ppm)	1,61	2,13	2,26	1,58	0,11
HAP (ng.Nm ⁻³)	Total 4 HAP CEE-NU*	0	0	0	0	-
	Total 8 HAP ICPE**	0	248	82	68	-
	Total 17 HAP EPA***	0	787	789	390	-

* Commission Économique pour l'Europe des Nations Unies ;

** Installations Classées pour la Protection de l'Environnement ;

*** Environmental Protection Agency (USA).

La comparaison de l'impact des différents appareils de chauffage sur la qualité de l'air intérieur montre que la concentration en CO est équivalente pour tous les systèmes sauf pour le foyer ouvert qui est plus élevée. La valeur guide pour le CO donnée par l'OMS est de 10 ppm pour 8 heures d'exposition (long terme) et 25 ppm pour une heure d'exposition. La valeur seuil de 10 ppm est respectée pour tous les appareils sauf dans le cas de la combustion en foyer ouvert à allure nominale où elle est alors légèrement dépassée. Cependant, la durée d'exposition est rarement supérieure à 8 heures.

Le taux de CO₂ est 10 fois plus élevé pour le poêle à pétrole et 8 fois plus pour le poêle à gaz que le taux obtenu en présence des foyers fermé et ouvert. Les mesures de CO₂ pour le foyer fermé et le foyer ouvert sont largement inférieures à la valeur guide recommandée en France pour les bâtiments du tertiaire qui est fixée à 1 000 ppm. Par contre, cette valeur est dépassée dans le cas de l'utilisation de systèmes de chauffage dépourvus de conduit d'évacuation des fumées (poêle à pétrole et poêle à gaz).

La concentration en nombre des PM_{2,5} est 16 fois plus élevée pour le foyer ouvert, 1,6 fois plus pour le poêle à pétrole et 4,4 fois plus pour le poêle à gaz que le foyer fermé. Le pourcentage de nanoparticules produites en nombre, qui présentent un risque sanitaire accru, est de 95 % pour le poêle à pétrole, 85 % pour le poêle à gaz, 75 % pour le foyer ouvert, et 64 % pour le foyer fermé.

Les concentrations en COV Totaux sont équivalentes pour tous les appareils mais on note une plus faible proportion de méthane dans le cas du poêle à gaz.

Enfin, selon le protocole d'Arrhus, il n'y a pas de HAP détectés quels que soient les appareils mais si on considère la somme des 17 HAP définis par l'EPA, les foyers fermé et ouvert émettent 2 fois plus que le poêle à pétrole. La valeur guide conseillée est de 10 µg.m⁻³ pour une exposition chronique (supérieure à 8 heures). Les résultats obtenus pour les différents appareils testés sont tous en dessous de ce seuil.

Discussion

Néanmoins, les résultats obtenus sont à nuancer car ils dépendent à la fois de la concentration de l'exposition mais surtout de la durée de l'exposition. Des valeurs inférieures au seuil ne signifient pas qu'il n'y a pas de risque, cela dépendra de combien de temps l'individu est exposé à ces concentrations. A contrario, une exposition courte à une forte concentration ne risque pas de déclencher systématiquement une réponse biologique de notre organisme.

Conclusion

En conclusion, l'utilisation du chauffage au bois de types foyer fermé/poêle (qui sont les plus représentatifs du marché) présente un impact moins important pour la qualité de l'air intérieur en termes d'émissions de particules fines que ne le sont les appareils de chauffage dépourvus de conduit d'évacuation des fumées (type poêle à gaz ou à pétrole).

Références

- [1] : NF 13229 : Foyers ouverts et inserts à combustibles solides - Exigences et méthodes d'essai. Juin 2002.
- [2] : NF EN 13240. Poêles à combustible solide - Exigences et méthodes d'essai. Septembre 2002.
- [3] : AFSSET. Valeurs guides de qualité d'air intérieur : le monoxyde de carbone, Juillet 2007 : 68 p.
- [4] : AFSSET. Valeurs guides de qualité d'air intérieur : le formaldéhyde, Juillet 2007 : 78 p.
- [5] : CITEPA. Inventaire des émissions de polluants atmosphériques en France – Séries sectorielles et analyses étendues. CITEPA / CORALIE / format SECTEN février 2008 ; 297 p.
- [6] : Olsson M, Kjällstrand J. Low emissions from wood burning in an ecolabelled residential boiler. *Atmospheric Environment* 2006 ; 40 : 1148-1158.
- [7] : Hübner C, Boos R, Prey T. In-field measurements of PCDD/F emissions from domestic heating appliances for solid fuels. *Chemosphere* 2005, 58 : 367-372.
- [8] : Kjällstrand J, Olsson M. Chimney emissions from small-scale burning of pellets and fuelwood – examples referring to different combustion appliances. *Biomass & Bioenergy* 2004, 27 : 557-561.
- [9] : Johansson L S, Leckner B, Gustavsson L, Cooper C, Tullin C, Potter A. Emissions characteristics of modern and old-type residential boilers with wood logs and wood pellets. *Atmospheric Environment* 2004, 38 : 4183-4195.
- [10] : Johansson L S, Tullin C, Leckner B, Sjövall P. Particle emissions from biomass combustion in small combustors. *Biomass & Bioenergy* 2003, 25 : 435-446.
- [11] : Hedberg E, Kristensson A, Ohlson M et al. Chemical and physical characterization of emissions from birch wood combustion in a wood stove. *Atmospheric Environment* 2002, 36 : 4823-4837.
- [12] : Gaegauf C, Wieser U, Macquat Y. Aerosols from biomass combustion. Proceedings of the International Seminar of IEA Bioenergy, Task 32, Zürich, Switzerland 2001 : 81-85.
- [13] : Mc Donald J D, Zielinska B, Fujita E M, Sagebiel J C, Chow J C, Watson J G. Fine particle and gaseous emission rates from residential wood combustion. *Environmental Science and Technology* 2000,34 : 2080-2091.
- [14] : Zhang J, Smith K R, Ma Y et al. Greenhouse gases and other airborne pollutants from household stoves in China : a data base for emission factors. *Atmospheric Environment* 2000, 34 : 4537-4549.
- [15] : Muhlbaler Dasch J. Particulate and gaseous emissions from wood-burning fireplaces. *Environmental Science and Technology* 1982, 16 (10) : 639-645.
- [16] : NF ISO 11-338 Émissions de sources fixes - Détermination des hydrocarbures aromatiques polycycliques sous forme gazeuse et particulaire - Partie 1 : échantillonnage. Septembre 2005.

Session : Sources d'émission

Mesure de l'exposition aux particules fines (PM_{2,5}) en milieu résidentiel dans cinq villes canadiennes

Marie-Ève Héroux, Cheryl Khoury, Amanda Wheeler
Santé Canada, Ottawa, Ontario, Canada

Contexte

Étant donné qu'il existe peu de données sur l'exposition des Canadiens aux divers polluants de l'air intérieur, Santé Canada a récemment effectué une série d'études d'exposition dans différents centres urbains à travers le Canada. Ces études supporteront le développement des lignes directrices de Santé Canada sur la qualité de l'air intérieur résidentiel.

Objectifs

Ces études d'exposition ont été effectuées afin d'obtenir une meilleure compréhension des sources de pollution de l'air intérieur et des niveaux auxquels les Canadiens sont exposés en milieu résidentiel. La contribution de la pollution de l'air extérieur aux niveaux mesurés à l'intérieur, ainsi que la variabilité des concentrations selon les saisons, ont également été étudiées.

Matériel & méthodes

Santé Canada a mesuré l'exposition aux particules fines (PM_{2,5}) à l'intérieur et à l'extérieur des résidences dans cinq villes canadiennes (Windsor, Toronto, Hamilton, Regina et Halifax) entre 2005 et 2009. Les détails sur les stratégies d'échantillonnage et de recrutement des participants sont présentés dans le tableau 1. Dans chaque résidence, des questionnaires uniformisés sur les caractéristiques des maisons et sur les activités des participants lors de l'échantillonnage ont été administrés. Diverses méthodes d'échantillonnage (avec prélèvement sur filtre et en continu) ont été utilisées.

Ville	Année (saisons)	Stratégie d'échantillonnage	Recrutement des participants	Nombre de résidences	Nombre d'échantillons
Windsor	2005 (hiver et été)	5 périodes de 24 heures consécutives par saison	Adultes non-fumeurs	Hiver : 48	211
				Été : 45	205
Windsor	2006 (hiver et été)	5 périodes de 24 heures consécutives par saison	Enfants asthmatiques	Hiver : 47	224
				Été : 46	210
Toronto	2006 (automne)	1 période de 6 jours consécutifs	Enfants (avec et sans asthme)	60	60
Hamilton	2007 (automne)	1 période de 48 heures	Femmes enceintes	19	19
Regina	2007 (hiver et été)	1 période de 5 jours par saison	Adultes	Non-fumeurs:	76
				Hiver : 76	76
				Été : 91	91
				Fumeurs:	19
				Hiver : 19	19
				Été : 14	14
Halifax	2009 (hiver et été)	7 périodes de 24 heures consécutives par saison	Adultes non-fumeurs	Hiver : 50	271
				Été : 50	305

Tableau 1. Détails des stratégies d'échantillonnage et de recrutement des participants.

Résultats et discussion

Au total, 1705 échantillons de PM_{2,5} ont été recueillis dans 369 résidences ayant participé aux études. La majorité de ces résidences était des maisons unifamiliales. Les fumeurs étaient exclus de toutes les études, sauf celle qui a eu lieu à Regina.

Une régression multiple effectuée avec les données de Regina a permis d'identifier certains facteurs contribuant aux concentrations intérieures de PM_{2,5}. Ceux-ci incluent le nombre de cigarettes fumées, la combustion de chandelles, les concentrations extérieures de PM_{2,5} et les sources extérieures telle que l'utilisation d'un barbecue à proximité des résidences. Les concentrations intérieures de PM_{2,5} étaient négativement associées à la présence d'un filtre de qualité supérieure dans le système de chauffage et à celle d'un ventilateur de cuisine avec une sortie vers l'extérieur.

Les concentrations moyennes mesurées à l'intérieur par lieu d'étude sont présentées dans la figure 1. Les ratios entre les concentrations intérieures et extérieures (ratio I/E) par lieu d'étude sont montrés dans la figure 2. Un ratio I/E > 1 signifie que les concentrations intérieures de PM_{2,5} sont plus importantes que celles mesurées à l'extérieur, un ratio I/E < 1 indique le contraire. Les concentrations mesurées à l'intérieur varient selon les maisons, mais sont généralement plus faibles qu'à l'extérieur. Dans le cas spécifique de l'étude à Halifax, les ratios I/E > 1 peuvent être expliqués par des concentrations extérieures de PM_{2,5} particulièrement faibles. Dans les maisons avec des sources importantes de particules (comme par exemple les maisons avec fumeurs à Regina), les ratios I/E étaient beaucoup plus élevés que 1.

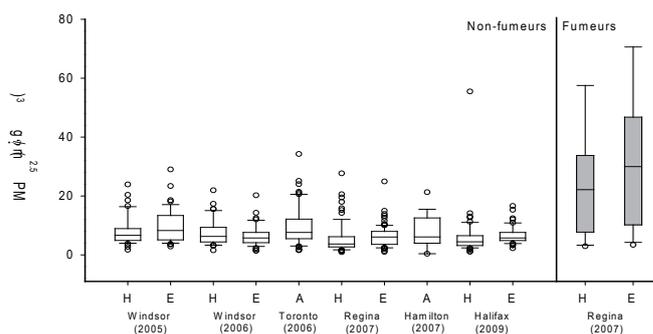


Figure 1. Distribution des concentrations moyennes dans les maisons échantillonnées.

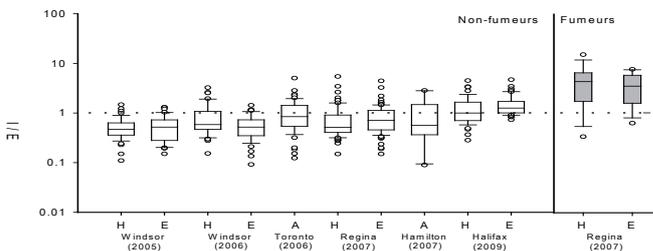


Figure 2. Ratios entre les concentrations intérieures et extérieures de PM_{2,5} (I/E).

Conclusion

Santé Canada a mesuré les $PM_{2,5}$ dans cinq villes canadiennes au cours des dernières années. De façon générale, les résultats démontrent que les concentrations de particules étaient plus élevées à l'extérieur qu'à l'intérieur, plus particulièrement dans les maisons sans sources intérieures majeures. Cependant, dans le cas de résidences avec des sources importantes de particules à l'intérieur, le contrôle de ces sources (par exemple, la fumée de cigarette, la cuisson et les appareils de combustion non ventilés ou mal entretenus) serait un moyen efficace de réduire l'exposition des résidents canadiens aux particules fines.

Remerciements

Ce projet de recherche a été financé par Santé Canada. L'équipe de recherche tient à remercier les personnes qui ont été impliquées, de près ou de loin, aux différentes études. Plus précisément, nous tenons à remercier les participants, les partenaires de recherche, les techniciens de terrain et les laboratoires qui ont analysé les échantillons.

Références

- Clark, N.A.; Allen, R.W.; Hystad, P.; Wallace, L.; Dell, S.D.; Foty, R.; Dabek-Zlotorzynska, E.; Evans, G.; Wheeler, A.J. Exploring Variation and Predictors of Residential Fine Particulate Matter Infiltration. *Int. J. Environ. Res. Public Health* 2010,7, 3211-3224.
- Héroux, M.-E.; Clark, N.; Ryswyk, K.V.; Mallick, R.; Gilbert, N.L.; Harrison, I.; Rispler, K.; Wang, D.; Anastassopoulos, A.; Guay, M.; MacNeill, M.; Wheeler, A.J. Predictors of Indoor Air Concentrations in Smoking and Non-Smoking Residences. *Int. J. Environ. Res. Public Health* 2010, 7, 3080-3099.
- Wheeler A.J.; Wallace L.A.; Kearney J.; Van Ryswyk K.; You H.; Kulka R.; Brook J.R.; Xu X. Personal, Indoor, and Outdoor Concentrations of Fine and Ultrafine Particles Using Continuous Monitors in Multiple Residences. *Aerosol Science and Technology* 2010. (accepté)

Session : Nouveaux outils, nouveaux polluants

Modélisation et simulation numérique de la dynamique des nanoparticules appliquées aux atmosphères libres et confinées

M. Devilliers, Marion.DEVILLIERS@ineris.fr, devillim@cerea.enpc.fr ; C. Seigneur, seigneur@cerea.enpc.fr ; E. Debry, Edouard.DEBRY@ineris.fr ; K. Sartelet, sartelet@cerea.enpc.fr ; B. Bessagnet, Bertrand.BESSAGNET@ineris.fr ; L.Rouïl, Laurence.ROUIL@ineris.fr

Contexte et problématique

On appelle nanoparticule une particule dont au moins une des dimensions est inférieure à 100 nanomètres.

L'utilisation accrue des nanoparticules dans l'industrie et leur importance croissante dans les mesures de la qualité de l'air posent de nouvelles questions sur les risques pour la sécurité, la santé et l'environnement, dans un contexte de connaissances scientifiques encore lacunaires. Ainsi, l'INERIS souhaite aujourd'hui disposer d'un modèle d'aérosols capable de simuler la dynamique des nanoparticules, tant en atmosphère libre que dans l'air intérieur.

Il existe déjà des modèles de particules spécifiquement développés pour la pollution à l'échelle régionale en ce sens qu'ils reposent sur le suivi de la masse des particules. Or lorsqu'on s'intéresse aux particules de diamètre aérodynamique inférieur à 10 nanomètres, le nombre de particules est plus significatif que leur masse, comparée à celle des particules fines et grossières, dont la masse est principalement comprise entre 0,1 et 2,5 microns (PM_{2,5}, particules fines) et 2,5 et 10 microns (particules grossières). Actuellement, seules les PM_{2,5} et les PM₁₀ sont réglementées en atmosphère libre.

L'objectif de ce travail est de développer un modèle de particules capable de suivre aussi bien le nombre de particules que leur masse de façon précise ainsi qu'optimale en temps de calcul.

Dynamique des nanoparticules

Une population de particules est représentée mathématiquement par une distribution de concentration numérique suivant la taille des particules (granulométrie), que l'on note : $m \rightarrow n(m,t)$ tel que $n(m,t) \times dm$ représente le nombre de particules par volume d'air dont la masse est comprise entre m et $m+dm$. Cette distribution évolue en fonction du temps selon l'équation suivante [1] :

$$\frac{\partial n}{\partial t}(m, t) = \underbrace{\theta(m \geq 2m_0) \frac{1}{2} \int_{m_0}^{m-m_0} K(u, m-u) n(u, t) n(m-u, t) du}_{\text{coagulation gain}} - \underbrace{n(m, t) \int_{m_0}^{\infty} K(m, u) n(u, t) du}_{\text{coagulation loss}} - \underbrace{\frac{\partial(I_0 n)}{\partial m}}_{\text{c/e advection}}$$

La distribution de particules subit différents processus: la formation de nouvelles particules (nucléation), la coagulation, la condensation et l'évaporation de gaz semi-volatils sur les particules. Une équation d'évolution similaire existe pour la distribution massique des particules.

Ces processus ne dépendent pas explicitement de la position dans l'espace des particules, l'équation précédente représente en ce sens la dynamique des particules en 0D. A cela s'ajoutent des processus de transport et de dépôts et d'émissions spécifiques au type de milieu étudié : air intérieur (dépôts sur les parois) ou extérieur (advection et diffusion dans l'atmosphère, dépôt sédimentaire).

Un des points importants est que, si ces processus sont aujourd'hui bien connus pour les grosses particules, il faut prendre en compte pour les nanoparticules certains phénomènes additionnels : l'effet Kelvin, les forces de Van der Waals et les forces électrostatiques pour les particules chargées [1].

La forme des particules est aussi à prendre en compte, notamment l'aspect fractal des particules de suies. Dans le cadre de cette étude, nous ne considérons que des particules sphériques.

En air intérieur, la diversité des sources rencontrées (fil chaud, abrasion, cuisson,...) induit des nanoparticules de nature très différentes [2,3]. En air extérieur, de nombreuses études mettent en relation le trafic routier et la présence de nanoparticules ([6]). La nucléation est une autre source possible de nanoparticules [7, 8], à partir d'acide sulfurique et de composés organiques; les particules générées sont de composition chimique plus complexe, d'après les données d'AirParif/LCSQA.

Résolution de la condensation/évaporation

On a choisi de s'intéresser en premier lieu à la condensation/évaporation, car c'est le processus le plus compliqué numériquement, notamment du fait de l'effet Kelvin.

L'effet Kelvin traduit le fait que la pression de vapeur saturante est plus importante au-dessus d'une surface courbe qu'au-dessus d'une surface plane.

La condensation/évaporation est un processus de transfert de masse entre la phase gazeuse et la phase particulaire. Le transfert est modélisé par une variation du volume en fonction du temps, dV/dt , formulé de la façon suivante dans le cas de particules mono-composées :

$$\frac{dV}{dt} = 2\pi D f(Kn) d_p V_m \frac{P_g - P_{sat} E_k}{RT}$$

Où l'on a : d_p le diamètre de la particule ; $f(Kn)$ une correction, fonction du nombre de Knudsen, liée au régime (continu

ou moléculaire libre) des particules ; D le coefficient de diffusion du gaz dans l'air; P_g la pression partielle du gaz se condensant ; P_{sat} la pression de vapeur saturante du gaz se condensant ; V_m le volume d'une molécule du gaz; R la constante des gaz parfaits ; T la température ; E_k l'effet Kelvin.

a-Schémas numériques

La résolution de l'équation se fait en procédant à une discrétisation du spectre de taille des aérosols en un certain nombre de « sections ». Il faut noter que les applications 3D n'autorisent qu'un nombre de sections restreint : quelques dizaines au maximum. Dans chaque section, on considère que toutes les particules ont le même diamètre, initialement le centre géométrique de la section. Ce diamètre est susceptible de croître par condensation ou de diminuer par évaporation. Pour conserver un diamètre moyen au centre de la section, il est nécessaire de redistribuer la masse et le nombre de chaque section après condensation/évaporation sur la grille des sections.

C'est ce procédé de répartition qui est l'objet de notre étude, nous avons cherché un algorithme capable de redistribuer aussi bien la masse que le nombre de particules de façon optimale ; c'est-à-dire en maintenant précision du calcul et en minimisant le temps de calcul. On distingue plusieurs schémas numériques pour la redistribution :

- le schéma Euler-masse pour la masse : la masse est redistribuée et le nombre est diagnostiqué (schéma actuel de nombreux modèles d'aérosols),
- le schéma Euler-nombre pour le nombre : le nombre est redistribué et la masse est diagnostiquée,
- le schéma Euler-hybride : utilise Euler-masse pour les particules grossières et Euler-nombre pour les nanoparticules (diamètre de coupure autour de 100 nm),
- le schéma Euler-couplé : le nombre et la masse sont redistribués simultanément mais le diamètre n'est plus au centre de la section,
- le schéma Moving-center : le diamètre de chaque section évolue librement et le nombre et la masse sont intégralement redistribués dans la section où se trouve le diamètre à la fin de la simulation, puis le nouveau diamètre de la section est diagnostiqué à partir de la masse et du nombre contenus dans la section,
- le schéma Full-moving : on ne procède à aucune redistribution, ce schéma n'est pas praticable en 3D (car en 3D on ne peut transporter que sur une grille fixe) mais il nous sert de solution de référence en 0D en utilisant un grand nombre de sections.

Pour le schéma Moving-Center, on ne procède qu'à une seule répartition contrairement aux autres modèles (excepté le modèle Full-moving) pour lesquels une répartition a lieu à chaque pas de temps de l'algorithme.

b-Protocole de simulation

La problématique est de simuler à la fois le nombre et la masse des particules. Les simulations sont effectuées à partir de deux distributions initiales, la première issue de la pollution régionale ([5]), la seconde d'un moteur diesel ([6]). La seconde distribution est plus adaptée pour l'étude des nanoparticules (plus importantes en nombre) alors que la première distribution permet de valider notre étude pour des particules plus grosses.

On travaille avec des distributions initiales de particules données en masse, équivalent au volume en supposant constante la masse volumique, et en nombre. On suppose dans cette étude que les particules sont mono-composées, et que le milieu est fermé. La pression initiale du gaz est de 10 ppb soit $1,013 \times 10^{-3}$ Pa. La pression de vapeur saturante est de 6 ppb soit $6,1 \times 10^{-4}$ Pa avec une température de 298 K.

La condensation engendre une diminution de la pression du gaz dans le milieu alors que l'évaporation augmente celle-ci. La simulation s'arrête lorsque l'équilibre est atteint, c'est-à-dire lorsque la pression du gaz est suffisamment proche (par un critère que l'on choisi) de la pression de vapeur saturante du gaz se condensant.

c-Calcul de l'erreur

Différents schémas (fondés sur la masse et/ou le nombre ainsi que des schémas hybrides) ont été codés et comparés. On a choisi une discrétisation en 12 sections, ce qui reste raisonnable pour l'adaptation au 3D. Ici le schéma Full-Moving, avec une discrétisation de 500 sections, est notre solution de référence car une discrétisation comprenant 1000 sections nous donne des résultats similaires (i.e. la solution a convergé). Les résultats pour le volume avec la deuxième distribution sont présentés dans la figure 1.

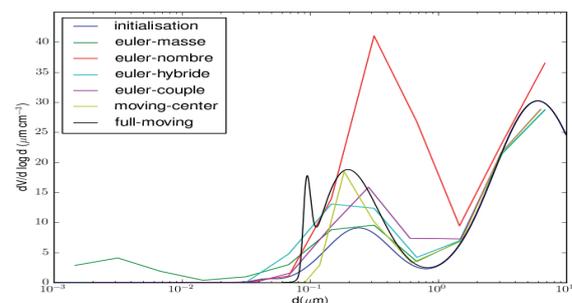


Figure 1 : Distribution en volume après condensation avec 12 sections

Comme on peut le constater, les schémas Euler-Hybride, Moving-center sont ceux qui donnent les meilleurs résultats.

Les résultats obtenus étaient similaires lors des précédents travaux alors que l'effet Kelvin n'avait pas encore été pris en compte et que l'on traitait séparément la condensation et l'évaporation. Ils avaient alors été confirmés par l'évaluation d'une erreur relative cumulée sur toutes les sections, calculée pour la masse et le nombre, en prenant toujours les résultats du schéma Full-Moving comme référence. La formulation de l'erreur est la suivante :

Où l'on a : ns , le nombre de sections ; N_i , la concentration en nombre de la section i du schéma étudié ; $Nref_i$, la

$$E_{Nb} = \left(\sum_{i=1}^{ns} |N_i - Nref_i| \right) \frac{1}{sumNref}$$

concentration en nombre de la section i du schéma de référence; et $sumNref$, la somme sur toutes les sections de la concentration en nombre obtenue avec le schéma de référence

On procède de la même manière pour calculer l'erreur en masse.

Des calculs similaires sont en cours pour des schémas ayant intégré l'effet Kelvin, ce qui permettra de finaliser l'étude de la condensation/évaporation pour les nanoparticules.

Conclusion

En conclusion, nous avons testé plusieurs schémas numériques pour la condensation/évaporation dans des conditions réalistes, les derniers calculs d'erreur pourront confirmer que le schéma Euler-Hybride permet de traiter convenablement le nombre et la masse. Les prochains travaux porteront sur la coagulation, les processus propres à des simulations 3D seront intégrés par la suite. La coagulation sera simulée avec les algorithmes usuels, la nucléation reposera sur les résultats de l'étude [7,8] et l'étude des dépôts s'appuiera sur la thèse de M. Nérisson [4].

Références

- [1] Seinfeld, J.H. and Pandis, S.N. (1998). Atmospheric chemistry and Physics; Wiley-Interscience.
- [2] Géhin *et al.* (2008). Size distribution and emission rate measurement of fine and ultrafine particle from indoor human activities. Atmospheric Environment, 42(35):8341-8352.
- [3] Cheng, Y.S., Bechtold, W.E., Yu, C.C. and Hung, I.F. (1995) Incense smoke – characterization and dynamics in indoor environments, Aerosol Sci. Technol., 23, 271–281.
- [4] P. Nérisson (2009). Modelling aerosol transfer in a ventilated room, Thèse à l'Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse (IMFT).
- [5] Zhang *et al.* (1999). Simulation of Aerosol Dynamics : a comparative review of algorithms used in air quality models, Aerosol Sci. Technol. , 31:487-514.
- [6] D.B. Kittelson *et al.* (2006). On-road and laboratory evaluation of combustion aerosols. Journal of Aerosol Science, Volume 37, Issue 8, P. 913-930.
- [7] Zhang *et al.* (2010). A Comparative study of nucleation parameterizations : 1. Examination and evaluation of the formulations , Journal of Geophysical Research, VOL. 115, D20212.
- [8] Zhang *et al.* (2010). A Comparative study of nucleation parameterizations: 2. Three-dimensional models: application and evaluation, Journal of Geophysical Research, VOL.115, D20213.

Session : Nouveaux outils, nouveaux polluants

ADOQ - Activités DOMestiques et Qualité de l'air intérieur : émissions, réactivité et produits secondaires

Jérôme NICOLLE (CSTB, INERIS, IRCELYON-UCBL-CNRS), Mélanie NICOLAS et Marianne FERNANDEZ (CSTB, Champs-sur-Marne & Grenoble), Laura CHIAPPINI et Sébastien FABLE (INERIS, Verneuil-en-Halatte), Christian GEORGE et Barbara D'ANNA (IRCELYON- UMR 5256 CNRS/ Université Claude Bernard, Lyon).

Contexte

Les Composés Organiques Volatils (COVs) émis lors d'activités domestiques (utilisation de produits ménagers) peuvent réagir avec des oxydants présents dans les environnements intérieurs par transfert depuis l'extérieur ou provenant d'équipements électroniques (Weschler, 2009). Par exemple, les terpènes peuvent réagir avec l'ozone pour former notamment du formaldéhyde (Nazaroff and Weschler, 2004), mais également des aérosols organiques secondaires, AOS, (Sarwar and Corsi, 2007) dont la composition chimique n'est encore que partiellement connue (Hallquist *et al.*, 2009) et dont les effets sanitaires commencent à être démontrés (Baltensberger *et al.*, 2008; Nawrot *et al.*, 2007).

Il semble donc nécessaire d'identifier les émissions des produits ménagers, les composés secondaires formés pour évaluer leur toxicité et l'exposition résultante des occupants. L'aspect encore peu connu de la pollution des milieux clos vis-à-vis de la réactivité et des émissions liées à l'emploi de produits ménagers a notamment été identifié par le Scientific Committee on Health and Environmental Risks. De même, le projet de Loi « Grenelle 1 » recommande (article 35) la publication d'une étude sur les potentielles sources de polluants volatils dans l'air intérieur, autres que les matériaux, tels que les produits d'entretien.

Objectifs

Le but du projet ADOQ est d'identifier et de quantifier les composés volatils (COV et aldéhydes) et les particules, émis par des actions dites domestiques liées à l'emploi de produits ménagers et d'entretien, d'évaluer l'influence des paramètres environnementaux tels la température, l'humidité relative et le taux de renouvellement d'air, sur ces émissions ; et de différencier la part des émissions primaires des émissions secondaires, en particulier dans le cas du formaldéhyde.

Ces travaux ont pour objectif de proposer une méthodologie

adaptée à la caractérisation des émissions de ces produits dans l'air intérieur et d'apporter les données nécessaires à l'évaluation du risque encouru par la personne réalisant l'activité domestique ainsi que par son environnement afin d'identifier les actions à mener au jour le jour pour réduire l'exposition aux COV et particules secondaires. Ces éléments sont nécessaires aux toxicologues pour estimer le risque toxicologique associé à ces composés. Cette évaluation du risque en condition réelle a été identifiée d'intérêt majeur par le SCHER (SCHER, 2007).

De plus, des connaissances sur la réactivité physico-chimique de COV avec l'ozone, oxydant puissant présent dans les environnements intérieurs par transfert depuis l'air extérieur ou produits par des équipements électroniques spécifiques, seront apportées.

Ce projet de recherche pourra ainsi fournir des éléments de réflexion en vue de la mise en place future d'un étiquetage des émissions de composés volatils par certains produits tel que prévu dans le cadre du Grenelle de l'Environnement.

Matériel et méthode

La méthodologie employée repose sur la combinaison de mesures en atmosphère réelle (maison expérimentale – Figure 1-a) et en atmosphère simulée (évaluation des produits ménagers en chambre d'émission, dans des conditions réalistes, simplifiées, contrôlées).

Une première campagne de mesure a été réalisée en période estivale en reproduisant différentes activités domestiques impliquant l'utilisation de produits ménagers. La réactivité potentielle dans les environnements intérieurs étudiés est initiée par des concentrations en ozone présentes « naturellement » dans la pièce suite à un transfert depuis l'air extérieur par le système de ventilation (Figure 1-b ; Nicolas, 2006).



Figure 1 : a) Maison expérimentale du CSTB, MARIA

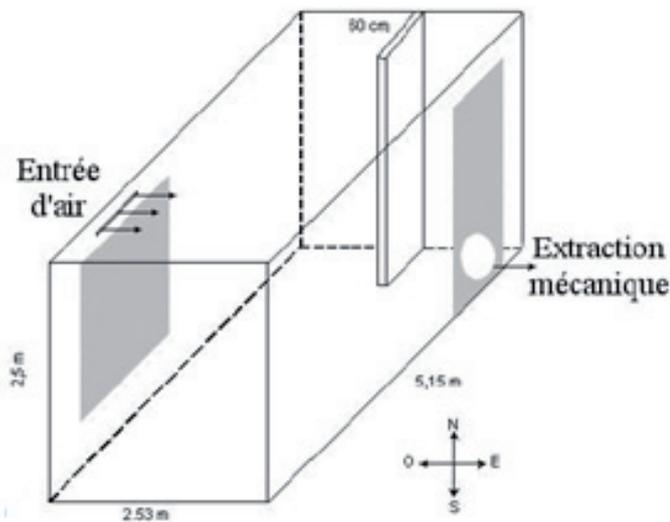


Figure 1 : b) Pièce d'étude

Les différentes techniques de mesures mises en œuvre se regroupent en deux catégories.

D'une part, des mesures intégrées dites « off-line », à l'intérieur et à l'extérieur de la pièce étudiée. Ainsi, les COVs sont analysés selon à la norme ISO 16000-6 (AFNOR, 2005) par prélèvements en continu sur des tubes contenant un adsorbant spécifique (Tenax TA) puis analysés par chromatographie gazeuse et spectrométrie de masse associée à un détecteur à ionisation de flamme après thermodesorption (ATD/GC/MS/FID). Les aldéhydes, conformément à la norme ISO 16000-3 (AFNOR, 2002), sont prélevés en continu sur des cartouches contenant un adsorbant spécifique (DNPH) puis analysés par chromatographie liquide à hautes performances (HPLC). Pour un essai particulier, les phases organiques gazeuse et particulaire sont évaluées simultanément grâce à une méthodologie innovante en cours de mise en œuvre à l'INERIS. La part de carbone organique (OC) et de carbone élémentaire (EC) des particules est mesurée à l'aide d'un analyseur de carbone Sunset Lab. D'autre part, des mesures en continu dites « on line » sont également conduites à l'intérieur et à l'extérieur de la pièce d'étude. Les paramètres environnementaux sont suivis en continu grâce à des sondes dédiées tandis que l'ozone et les oxydes d'azote sont mesurés par des analyseurs automatiques associés à des systèmes de multiplexage. Des mesures des COVs précurseurs d'ozone sont réalisés par analyseur en continu C2-C6 et C6-C12 Chromatotech. Cette technique permet de suivre l'évolution des concentrations de certains COVs ayant des chaînes carbonées contenant 2 à 12 atomes de carbone, après utilisation de produits ménagers, pour différencier une formation primaire et secondaire (disparition et apparition de COVs liées à des réactions en phase gazeuse). De même que pour les COVs, l'évolution des concentrations du formaldéhyde lors

de l'emploi de produits ménagers (formation primaire et secondaire, disparition et formation liées à des réactions en phase gazeuse) est suivie avec l'utilisation d'un Aerolaser. Enfin, la granulométrie et le nombre des particules sont évalués à l'aide d'un SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer ; TSI). Cet instrument permet de suivre l'évolution des concentrations et de la taille des particules en fonction des actions domestiques menées dans la maison.

Une deuxième campagne sera réalisée en période hivernale (février 2011). La réactivité potentielle dans les pièces étudiées sera initiée par des concentrations en ozone présentes « artificiellement » dans la pièce grâce à l'utilisation de sources intérieures spécifiques (présence et fonctionnement d'équipements électronique tels que des photocopieurs, des épurateurs d'air intérieur...). Les analyses seront identiques à celles réalisées en période estivale et la composition chimique des particules d'une population, ainsi que la classification de ces particules en différents groupes sur la base de leurs propriétés chimiques seront évaluées, en temps réel, à l'aide d'un AMS (Aerosol Mass Spectrometer, Aerodyne).

À l'issue de ces campagnes de mesures en environnement réel, des expérimentations en laboratoire seront menées à l'aide d'un banc d'exposition des produits à l'ozone (Nicolas, 2006) afin d'évaluer l'impact des conditions environnementales sur la réactivité chimique liée à l'utilisation de produits ménagers et d'identifier les mécanismes réactionnels impliqués.

Premiers Résultats

Lors d'une phase préliminaire, les émissions de plus de cinquante produits ménagers ont été évaluées en chambre d'émission afin de sélectionner une vingtaine de produits à mettre en œuvre lors des campagnes de mesures en conditions réalistes. Les critères de sélection des produits ont été d'une part, leur caractère émissif important et d'autre part, la présence de composés émis potentiellement réactifs avec l'ozone, tels les terpènes.

La campagne estivale a été organisée en juillet 2010 dans la maison MARIA du CSTB. Les émissions des produits ménagers sélectionnés ont été évaluées sur la base de scénarii rigoureusement définis. Les conditions atmosphériques et en particulier les concentrations en ozone ont été favorables à l'étude de la réactivité, vis-à-vis de cet oxydant, des COV émis par les produits testés (concentrations à préciser). Les premiers résultats ont permis d'observer des émissions de COV en lien avec l'emploi de produits ménagers et, en particulier, du limonène, terpène précurseur d'AOS. De plus, une diminution concomitante des concentrations de ce

terpène et de l'ozone a été mise en évidence, tout comme la formation de particules. Ces observations suggèrent la survenue de réactions chimiques dans l'air intérieur et la potentielle formation de produits secondaires.

Ces premiers résultats seront à confirmer lors de la campagne hivernale avec, notamment la réalisation d'essais en absence et en présence de différentes concentrations d'ozone.

Références

AFNOR, 2005. ISO 16000-6 : Dosage des composés organiques volatils dans l'air intérieur des locaux et enceintes d'essai par échantillonnage actif sur le sorbant Tenax TA, désorption thermique et chromatographie en phase gazeuse utilisant MS/FID.

AFNOR, 2002. ISO 16000-3 : Dosage du formaldéhyde et d'autres composés carbonyles – Méthode par échantillonnage actif.

U. Baltensberger, J. Dommen, R. Alfarra, J. Duplissy, K. Gaeggeler, A. Metzger, M.C. Facchini, S. Decesari, E. Finessi, C. Reinnig, M. Schott, J. Warnke, T. Hoffmann, B. Klatzer, H. Puxbaum, M. Geiser, M. Savi, D. Lang, M. Kalberer and T. Geiser, 2008. Combined determination of the chemical composition and of health effects of secondary organic aerosols : The POLYSOA project. *J. Aerosol. Med. Pulm. Drug Deliv.* 21, 145-154.

M. Hallquist, Wenger; J. C., U. Baltensberger, Y. Rudich, D. Simpson, M. Claeys, J. Dommen, N.M. Donahue, C. George, A.H. Goldstein, J.F. Hamilton, H. Hermann, T. Hoffman, M. Jang, M. Jenkin, J.L. Jimenez, A. Kiendler-Sharr, W. Maenhaut, G. McFiggans, T.F. Mentel, A. Monod, A.S.H. Prévôt, J.H. Seinfeld, J.D. Surrat, R. Szmigielski and J. Wildt, 2009. The formation, properties and impact of organic aerosol: current and emerging issues. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussion* 9, 3555-3762.

T.S. Nawrot, R. Torfs, F. Fierens, S. de Henauw, P.H. Hoet, van Kersschaever G., G. de Backer and B. Nemery, 2007. Stronger associations between daily mortality and fine particulate air pollution in summer than in winter: evidence from a heavily polluted region in western Europe. *Journal of Epidemiology and Community Health* 61, 146-149.

W.W. Nazaroff and C.J. Weschler, 2004. Cleaning products and air fresheners: exposure to primary and secondary air pollutants. *Atmos. Environ.* 38, 2841-2865.

M. Nicolas, 2006. Ozone et qualité de l'air intérieur : interactions avec les produits de construction et de décoration. Thèse, Université Paris 7 – Denis Diderot.

S. Rossignol, L. Chiappini, E. Perraudin, J.F. Doussin, May 18 –19, 2010. Simultaneous study of gas phase and secondary organic aerosols' chemical composition. 18th International Symposium Transport and Air Pollution, Zürich, Switzerland.

G. Sarwar and R. Corsi, 2007. The effect of ozone/limonene reactions in indoor secondary organic aerosols. *Atmospheric Environment* 41, 959-973.

C.J. Weschler, 2009. Changes in indoor pollutants since the 1950s. *Atmospheric Environment* 43, 153-169.

Session : Nouveaux outils, nouveaux polluants

Formation d'aérosols organiques secondaires (AOS) en lien avec l'utilisation de produits ménagers

Laura CHIAPPINI ; Stéphanie ROSSIGNOL, Sébastien FABLE
INERIS, Par technologique ALATA BO2 60550 Verneuil en Halatte

Contexte

L'article 40 de la Loi Grenelle 2009-967 du 3 août 2009 recommande la publication d'une étude sur les potentielles sources de polluants volatils dans l'air intérieur, autres que les matériaux, tels que les produits d'entretien. De plus, le SCHER, Scientific Committee on Health and Environmental Risks (SCHER, 2007), a identifié les émissions et la réactivité liées à l'emploi de produits ménagers comme un aspect de la pollution des environnements intérieurs nécessitant une amélioration des connaissances.

Les activités domestiques (utilisation de produits ménagers) entraînent des émissions de Composés Organiques Volatils pouvant réagir avec des oxydants présents dans les environnements intérieurs par transfert depuis l'extérieur ou provenant d'équipements électroniques (Weschler, 2009). En particulier, les terpènes, présents dans les produits ménagers, peuvent réagir avec l'ozone pour former du formaldéhyde (Nazaroff et Weschler, 2004) mais également des aérosols organiques secondaires, AOS, (Sarwar et Corsi, 2007), particules ultrafines susceptibles de pénétrer en profondeur dans le système respiratoire et être de ce fait à l'origine d'effets néfastes sur la santé.

Objectifs

Cette étude s'inscrit dans un programme d'appui de l'INERIS au MEEDDM sur l'évaluation des risques sanitaires liés aux expositions dans les environnements intérieurs. Elle a pour but d'évaluer l'importance des réactions secondaires en air intérieur, liées à l'emploi de produits ménagers et d'identifier la part, encore peu documentée, d'aérosols organiques d'origine secondaire (AOS) sur la masse d'aérosols totale. Exploratoire, elle a vocation à mettre en évidence la formation d'AOS en air intérieur, d'initier et diriger de futurs travaux, plus complexes et approfondis, axés sur l'identification de la composition chimique de ces AOS et de la phase gazeuse associée.

Matériel et méthodes

Un produit ménager contenant du limonène, composé connu pour sa propension à former des AOS par ozonolyse, a été utilisé dans une maison de particuliers dans une

atmosphère contenant de l'ozone. Les concentrations en limonène, la répartition des particules en taille et en nombre, les concentrations en formaldéhyde et acétaldéhyde, la composition chimique des particules (carbone organique et élémentaire) ont été suivies en continu durant les essais. De plus, la composition chimique des particules formées a été analysée à l'aide d'une technique originale développée dans le cadre d'une thèse à l'INERIS (Rossignol *et al.*, 2010)

La campagne a été organisée du 26 au 30 octobre 2009 dans la maison d'un particulier volontaire. L'activité domestique potentiellement génératrice de particules ainsi que les mesures ont été réalisées au 1^{er} étage, dans une pièce d'une quinzaine de m². La moitié de la surface au sol a été occupée par le matériel de prélèvement et d'analyse (Tableau 1). Cette première campagne étant exploratoire, une seule activité domestique a été étudiée. Le choix s'est porté sur une activité courante, le nettoyage des sols, à partir de détergent contenant du limonène. Ce dernier est en effet un terpène maintenant bien connu pour sa propension à former des AOS, en particulier par ozonolyse (Wainman *et al.*, 2000 ; Sarwar et Corsi, 2007).

Le détergent a été employé dilué et la surface de sol libre, d'environ 7 m², a été nettoyée pendant une dizaine de minutes. Il est ici important de noter que la quantité de détergent employée ainsi que le temps de nettoyage du sol n'ont pas été parfaitement maîtrisés entraînant de ce fait l'émission de limonène, non répétable d'un essai à l'autre. Notons également que la fenêtre de la pièce a été laissée ouverte en permanence pour palier le réchauffement de la pièce lié au fonctionnement des appareils. Le paramètre « ventilation » n'a donc pas été maîtrisé au cours de ces essais.

COVs: en particulier limonène: émis par le détergent et précurseur d'AOS	
Méthode on-line: Analyseur en continu C6-C12 Chromatotech	Méthode off-line: Tubes trois zones 100 mL min ⁻¹
Aldehydes: en particulier formaldéhyde et acétaldéhyde: produits de réaction 2 nd ozonolyse terpènes	
Méthode on-line: Analyseur en continu (Interscan)	Méthode off-line: Cartouches DNPH + filtres O ₃ 100 mL min ⁻¹
Ozone: Indispensable à l'initiation des réactions d'oxydation, sources extérieures ou produit par équipements électroniques et purificateurs d'air. Ici, générée artificiellement	
Méthode on-line: Analyseur 41 M Environnement SA	Méthode off-line:
EC/OC in particules: Carbone organique (OC) devrait augmenter lorsque l'AOS se forme	
Méthode on-line:	Méthode off-line: Prélèvement filtre, analyse thermo-optique
Distribution des particules en taille et nombre: afin d'identifier la formation de nouvelles particules	
Méthode on-line: 10 – 500 nm SPMS + 500 µm – 2 µm APS	Méthode off-line:
Composition chimique PM: afin d'identifier des composés traceurs de l'ozonolyse du limonène	
Méthode on-line:	Méthode off-line: Prélèvement filtre, analyse par méthode spécifique AOS (Rossignol <i>et al.</i> 2010)

Tableau 1 : Techniques de mesure mises en œuvre

Avant la réalisation de l'activité de nettoyage, il a été nécessaire de caractériser le niveau de fond de la pièce d'étude en y mesurant les concentrations en COVs, aldéhydes et particules, sans activité génératrice de polluants mais avec production artificielle d'ozone. L'ensemble des moyens de mesure décrits ci-dessus a pour ce faire été mis en œuvre.

En ce qui concerne les mesures dites « off-line », deux séries de tubes (3 zones et tubes imprégnés DNPH) et de filtres, ont été prélevés pour chaque action menée, l'une avant l'action et l'autre pendant et après pour en évaluer l'impact sur les niveaux de polluants. Chaque prélèvement dure ainsi 4 heures environ.

Résultats

Les deux premiers jours de la semaine ont été consacrés à la mesure des niveaux de fond de la pièce dans laquelle les actions d'utilisation de produits ménagers ont été réalisées. Trois journées ont été dédiées au nettoyage des sols avec un produit contenant du limonène. Les résultats de la journée du 29/10/2009 sont donnés en exemple (Figure 1). Une augmentation des concentrations en limonène est observée après l'utilisation du produit ménager. L'utilisation du détergent est suivie, après une dizaine de minutes, d'une augmentation du nombre de particules

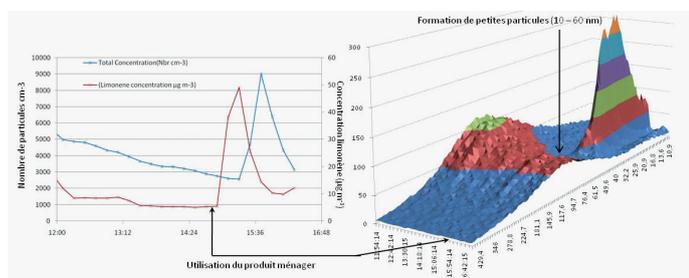


Figure 1: Suivi des concentrations en particules (Nombre cm^{-3}) et en limonène le 29/10/2009 (graphique de gauche); Distribution 3D en taille et en nombre des particules mesurées par SMPS le 29/10/09 (graphique de droite)

Ce délai entre l'émission du limonène et l'augmentation des niveaux de particules est représentatif de la formation de particules secondaires qui peuvent également être caractérisées par leurs tailles à l'aide d'un SMPS. Il est ainsi possible de remarquer sur le graphique de droite que l'augmentation des particules en nombre observée consécutivement à l'utilisation du produit ménager correspond à des particules de petite taille, entre 10 et 60 nm, alors que le mode des particules présentes en fond est de l'ordre de 100 nm.

Un autre indice permettant d'identifier la formation d'AOS est l'analyse de la composition chimique et la recherche de traceurs. A l'aide d'une technique spécifiquement

développée pour l'analyse des composés polyfonctionnels présents dans l'AOS (Rossignol *et al.*, 2010), une cinquantaine de composés ont pu être détectés et des hypothèses concernant l'identification de produits de réaction du limonène avec l'ozone ont pu être émises (nécessité de confirmation par analyse de standards) sur la base des spectres de masse et des données de la littérature.

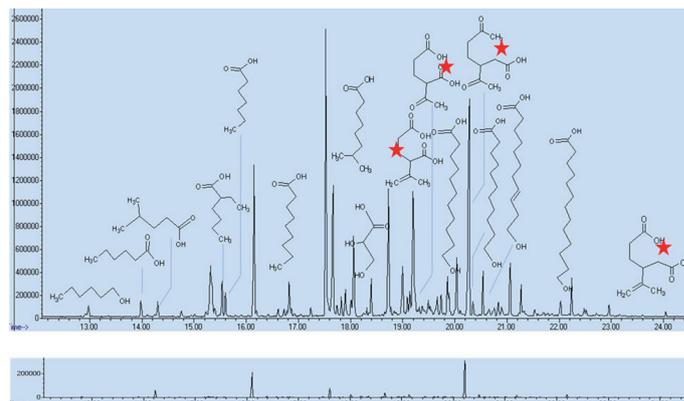


Figure 7: Chromatogramme issu de l'analyse d'un filtre prélevé avant l'action (bas) et après l'action (haut), étoile rouge: produits de réaction du limonène avec l'ozone

Résumé des différents essais

Le tableau ci-dessous résume les trois jours d'essais en présentant les concentrations « générées » de limonène (résultats de l'émission du détergent utilisé), ses concentrations « finales » (après réaction avec l'ozone), les concentrations en ozone, le nombre maximal de particules formées ainsi que le nombre final. Les concentrations dites finales en limonène et en particules correspondent aux concentrations stables mesurées une fois les niveaux de fond retrouvés.

	$\mu\text{g m}^{-3}$		Nombre / cm^3		? nombre / limonène
	Limonène "généré"	Limonène "final"	Ozone	Particules "générées"	
28/10/09	95	10	10	-	-
29/10/09	50	10	78	9011	3135
30/10/09	130	30	80	50747	26175

Tableau 2: Formation de particules en nombre en fonction des concentrations en limonène et en ozone ($\mu\text{g m}^{-3}$) - Estimation d'un rendement de formation, $\Delta\text{nombre}/\Delta\text{limonène}$ ($\text{Nbr cm}^{-3}/\mu\text{g m}^{-3}$)

Un rendement de formation de particules a été estimé et correspond au ratio entre le delta du nombre de particules (particules « générées » - particules « finales ») et le delta de concentration en limonène (limonène « généré » - limonène « final »). Notons que cette estimation de rendement a peu de sens et est déterminée uniquement afin de comparer les expériences entre elles. En effet, le rendement de formation d'aérosol généralement noté Y a été défini par Odum et al, 1996 comme la fraction de M_p masse d'aérosols formés ($\mu\text{g m}^{-3}$), sur ΔHC , la quantité de précurseur ayant réagi ($\mu\text{g m}^{-3}$). Ces valeurs devraient être déterminées en prenant la pente de la droite $M_p = f(\Delta\text{HC})$. Il est ainsi possible de remarquer que la formation en particules est fortement dépendante des concentrations en précurseur et en oxydant.

Conclusions et perspectives

Cette étude exploratoire a mis en valeur la formation de particules de petites tailles, aérosols organiques secondaires, mais également de COV et de formaldéhyde. Elle a ainsi mis en évidence l'exposition des personnes réalisant les activités domestiques à des composés organiques volatils mais également à des composés potentiellement toxiques de par leur taille et dont l'impact de la composition chimique sur la santé est encore peu connu. L'identification de la composition chimique des AOS a également permis d'identifier des produits traceurs de l'ozonolyse du limonène.

Ce travail débuté en 2010 se poursuivra jusqu'en 2012 dans des conditions opératoires réalistes (sources d'ozone provenant de l'extérieur ou d'appareils tels des épurateurs d'air) et maîtrisées. Des essais, financés par le programme PRIMEQUAL Air Intérieur et le programme d'appui de l'INERIS au MEEDDM, « Evaluation des risques sanitaires liés aux expositions dans les environnements intérieurs », ont été et seront en effet réalisés dans la maison expérimentale du CSTB, MARIA, dans laquelle les taux de renouvellement d'air, les conditions de température, humidité relative, l'influence de l'air extérieur sur l'intérieur, sont maîtrisés. L'exposition réelle des personnes faisant l'action pourra ainsi être évaluée.

Les prochains travaux auront ainsi pour objectif d'approfondir la présente étude en caractérisant les émissions de différents produits ménagers et situations de pollution rencontrées dans l'air intérieur, quantifiant les facteurs qui influencent les émissions de polluants (température, hygrométrie, concentration en ozone), estimant la part des polluants secondaires issus de la réactivité chimique sur la qualité de l'air intérieur.

Références

- Nazaroff, W. W. and C. J. Weschler (2004). «Cleaning products and air fresheners: exposure to primary and secondary air pollutants.» *Atmospheric Environment* 38: 2841-2865.
- Rossignol, S., L. Chiappini, *et al.* (2010). «study of gas phase and secondary organic aerosols' chemical composition.» *International Aerosol Conference (IAC) Helsinki, Finland.*
- Sarwar, G. and R. Corsi (2007). «The effect of ozone/limonene reactions in indoor secondary organic aerosols.» *Atmospheric Environment* 41: 959-973.
- Sarwar, G. and R. Corsi (2007). «The effects of ozone/limonene reactions on indoor secondary organic aerosols.» *Atmospheric Environment* 41(5): 959-973.
- SCHER (2007). «Opinion on risk assessment on indoor air quality.» (http://ec.europa.eu/health/ph_risk/committees/04_scher/docs/scher_o_055.pdf).
- Wainman, T., J. Zhang, *et al.* (2000). «Ozone and limonene in indoor air: a source of submicron particle exposure.» *Environmental Health Perspectives* 108: 1139-1145.
- Weschler, C. J. (2009). «Changes in indoor pollutants since the 1950s.» *Atmospheric Environment* 43(1): 153-169.

Session : Nouveaux outils, nouveaux polluants

Projet ECOS-HABITAT : Expositions cumulées aux Composés Organiques Semi-volatils dans l'habitat : risques pour le développement de l'enfant

Glennec P.^{1,2,3}, Mercier F.^{1,2}, Blanchard O.¹, Bonvallot N.^{1,2,3}, Ramalho O.⁴, Mandin C.⁴, Le Bot B.^{1,2}.

¹ Ecole des Hautes Etudes en Santé Publique, Rennes Sorbonne Paris Cité, France

² Institut de Recherche sur la Santé, l'Environnement, le Travail, Rennes, France

³ Institut National de la santé et de la Recherche Médicale Unité 625, Rennes, France

⁴ Université Paris-Est - Centre Scientifique et Technique du Bâtiment, Marne la Vallée, France

Introduction

L'utilisation accrue de matériaux performants (principalement des polymères), de nouveaux produits (retardateurs de flamme, pesticides) et d'équipements électriques et électroniques ont rendu les composés organiques semi-volatils (COSV) (comme les phtalates, polybromodiphényléthers,...) ubiquitaires dans les lieux clos. Les expositions environnementales à ces contaminants contribuent avec les expositions alimentaires et professionnelles à l'exposition totale. En particulier, celles associées à l'environnement intérieur font l'objet, depuis une décennie, d'un intérêt croissant de la part de la communauté scientifique, tant pour l'identification d'effets sur la santé (1), que pour la réduction des risques identifiés (2) du fait :

- de contaminations très probables provenant d'une multitude de sources à l'intérieur des logements (produits de nettoyage, vêtements, cosmétiques, meubles, emballages, jouets, produits de combustion mais aussi apport de l'air et des sols extérieurs), d'une ventilation parfois insuffisante et de la persistance de certains contaminants, du fait d'une longue demi-vie et/ou d'un réservoir d'émission important (à l'inverse des composés volatils (3)). Cependant les niveaux de contamination demeurent méconnus en France : seules de rares études ne concernant que quelques composés et quelques logements sont disponibles ;
- d'exposition de populations pouvant être considérées comme vulnérables compte tenu de certains effets (neurotoxique et reprotoxique). Par exemple, pendant la phase de développement de l'enfant (développement de l'embryon, croissance fœtale puis développement des systèmes reproducteur, neurologique et immunologique), dite « période de vulnérabilité accrue », l'exposition de la mère, puis de l'enfant, à de faibles doses de substances toxiques, pourrait être responsable d'effets sanitaires à long terme (4;5).

Les expositions aux COSV se font par inhalation (phases gazeuse et particulaire dans l'air), mais aussi par contact et ingestion de poussières déposées au sol et sur le mobilier (6), en particulier pour les jeunes enfants (7) du fait des contacts fréquents main-sol/main-bouche.

Le projet « ECOS-Habitat » a pour objectif d'apprécier l'importance du problème de santé publique posé par les COSV dans l'habitat par une approche d'évaluation des risques, en prenant en compte le cumul des expositions selon les différentes voies d'absorption puis en tenant compte de l'additivité ou de la potentialisation des effets pour les substances ayant un mécanisme d'action commun.

Démarche

Afin de cerner l'importance du problème de santé publique posé par les COSV à l'intérieur des lieux de vie, principalement le logement, il est nécessaire de :

- s'intéresser d'une part aux trois milieux d'exposition que sont la phase gazeuse, les particules en suspension et les poussières sédimentées, et, d'autre part, à la répartition des COSV entre ces trois compartiments ;
- connaître la contamination par ces substances de ces différents compartiments dans l'habitat afin de pouvoir caractériser les expositions ;
- considérer l'ensemble des composés, certains pouvant avoir des mécanismes d'action communs, et ainsi des effets qui s'additionnent ou se potentialisent.

Après une revue bibliographique des méthodes de mesure (prélèvement et analyse) et de l'occurrence des COSV dans les poussières d'habitation (8), une hiérarchisation des substances a été réalisée pour ce projet à partir des données (principalement étrangères) de contaminations et de toxicité de 254 substances (9). Une soixantaine de composés ont pu être hiérarchisés (phtalates, polybromodiphényléthers, organophosphorés...). Beaucoup sont toxiques pour la reproduction et le développement de l'enfant ; la plupart sont soupçonnés d'être des perturbateurs endocriniens. La majorité d'entre eux est analysable en chromatographie gazeuse couplée à la spectrométrie de masse, et constitue notre liste de polluants d'intérêt. Des méthodes d'analyses par chromatographie gazeuse couplée à la spectrométrie de masse sont actuellement développées ou en cours de validation pour ces composés dans l'air, les particules en suspension et les poussières déposées (10;11). En complément, des tests sont menés sur les conditions de conservation des échantillons de poussière sédimentée.

Des échantillons de particules en suspension et de poussières ont été collectés lors d'enquêtes nationales, et sont conservés à -18 °C en attente de financement pour analyse. Il s'agit pour les particules en suspension des filtres PM₁₀ et PM_{2,5} (N=297 paires) collectés entre 2003 et 2005 lors de la campagne nationale « logements » de l'Observatoire de la qualité de l'air intérieur, représentative des logements français. Pour les poussières, il s'agit de prélèvements par

lingettes (N=477) et sacs aspirateurs (N=311) collectés pour ce projet lors de la campagne Plomb-Habitat (2008-2009). Cette poussière est représentative des logements habités par les enfants de 6 mois à 6 ans. Ces échantillons peuvent servir à déterminer les expositions par inhalation et ingestion de poussières à partir de la distribution de la contamination par les COSV dans l'habitat français. Toutefois, afin d'englober l'inhalation de la phase gazeuse à l'échelle nationale, il est nécessaire de connaître le comportement physico-chimique des COSV dans l'habitat, et modéliser la répartition des COSV entre les phases gaz, particules en suspension et poussières déposées. Cette répartition sera étudiée sur 30 logements dont les données de contamination en COSV sont en cours d'acquisition. Elle permettra de proposer une modélisation de la distribution de chaque substance dans les trois compartiments, et ainsi de prédire la concentration dans un compartiment à partir d'un autre.

L'exposition liée à l'environnement intérieur pourra alors être estimée en intégrant les expositions sur ces trois phases dans les logements, à partir des échantillons collectés et représentatifs des logements occupés en France. Ensuite les différents COSV ayant un mécanisme d'action toxicologique commun seront étudiés simultanément dans l'évaluation des risques pour tenir compte de l'additivité ou de la potentialisation des effets attendus.

Résultats attendus

- une meilleure compréhension des phénomènes (et de leurs déterminants) d'émission, de transfert, des COSV dans l'habitat ;
- une estimation de la distribution des expositions aux COSV dans l'habitat en France ;
- la mise à disposition d'un modèle d'exposition utilisable en évaluation des risques sanitaires et en épidémiologie (à partir des données de contamination d'un des trois milieux, le modèle permettrait d'estimer la contamination des deux autres) ;
- une estimation de l'exposition attribuable au logement (en la comparant aux expositions alimentaires, professionnelles etc. connues) ;
- l'identification des composés les plus préoccupants et leurs voies d'exposition prépondérantes ;
- l'estimation des risques de survenue d'effets sur le développement des enfants en prenant en compte les expositions cumulées à plusieurs composés.

Discussion

L'originalité de ces travaux est la définition de la liste de composés prioritaires et les développements analytiques correspondants, sur la base de critères sanitaires. Les difficultés attendues sont la prise en compte des voies cutanées et alimentaires pour certains composés, ainsi que le cumul des effets.

Les résultats pourront avoir une utilité directe en gestion des risques, dans une logique de réduction des émissions

et de surveillance (environnementale et/ou biologique) des expositions. Il paraît en effet important, dans une optique de santé publique, de se donner la possibilité d'agir le plus en amont possible, sans attendre d'avoir la confirmation épidémiologique d'effets à des doses même faibles, comme cela a pu être le cas par le passé, pour le plomb par exemple (12) ; l'interdiction de l'utilisation d'un composé ne signifie pas ipso facto l'arrêt des expositions du fait de la persistance des COSV.

Ce programme de recherche bénéficie de financements de l'Anses (Agence nationale de sécurité sanitaire de l'alimentation, de l'environnement et du travail), de la Direction Générale de la Santé et de l'ADEME (Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie) par le programme de recherche Primequal2/Predit (convention Ademe 0962C0070).

Références bibliographiques

- (1) Mitchell CS, Zhang JJ, Sigsgaard T, Jantunen M, Liroy PJ, Samson R, *et al.* Current state of the science: health effects and indoor environmental quality. *Environ Health Perspect* 2007 Jun;115(6):958-64.
- (2) Wu F, Jacobs D, Mitchell C, Miller D, Karol MH. Improving indoor environmental quality for public health: impediments and policy recommendations. *Environ Health Perspect* 2007 Jun;115(6):953-7.
- (3) Weschler CJ. Changes in indoor pollutants since the 1950s. *Atmospheric Environment* 2009 Jan;43(1):153-69.
- (4) Anonymous. Developmental origins of environmentally induced disease and dysfunction. Proceedings of the International Conference on Foetal Programming and Developmental Toxicity. Torshavn, Faroe Islands, May, 20-24, 2007. *Basic & Clinical Pharmacology & Toxicology* 2008 Feb;102(2):71-273.
- (5) Grandjean P, Bellinger D, Bergman A, Cordier S, vey-Smith G, Eskenazi B, *et al.* The faroes statement: human health effects of developmental exposure to chemicals in our environment. *Basic & Clinical Pharmacology & Toxicology* 2008 Feb;102(2):73-5.
- (6) Liroy PJ, Freeman NC, Millette JR. Dust: a metric for use in residential and building exposure assessment and source characterization. *Environ Health Perspect* 2002 Oct;110(10):969-83.
- (7) Pernelet-Joly V, Rousselle C, Glorennec P, Barral S, Ginenestet A, Masson J-B, *et al.* Conférence Indoor Air 2008 : éléments marquants et travaux français présentés. *Pollution atmosphérique* 2009;(201):49-62.
- (8) Mercier F, Glorennec P, Thomas O, Le Bot B. Exposure assessment to settled house dust: recent advances and research needs. *Environ Sci Technol* 2011;submitted.
- (9) Bonvallot N, Mandin C, Mercier F, Le Bot B, Glorennec P. Health ranking of ingested semi-volatile organic compounds in house dust: an application to France. *Indoor Air* 2010;20:458-72.
- (10) Mercier F, Glorennec P, Thomas O, Le Bot B. New development in GC/MS/MS for the analysis of semi-volatile organic compounds in settled house dust. 34th International Symposium on Capillary Chromatography and 7th GCxGC Symposium, Riva del Garda, Italy, May 30 - June 4. 2010.
- (11) Mercier F, Glorennec P, Thomas O, Le Bot B. New development in TD/GC/MS for the analysis of semi-volatile organic compounds in indoor suspended particles. 34th International Symposium on Capillary Chromatography and 7th GCxGC Symposium, Riva del Garda, Italy, May 30 - June 4. 2010.
- (12) Lanphear BP. The conquest of lead poisoning: a Pyrrhic victory. *Environ Health Perspect* 2007 Oct;115(10):A484-A485.

Session 6 : Quelle gestion pour contrôler et réduire les concentrations particulières dans l'air intérieur ?

Proposition de valeurs guides de qualité d'air intérieur pour les particules

Guillaume Boulanger¹, Corinne Mandin², René Alary³, Pierre-André Cabanes⁴, Frédéric Dor⁵, Séverine Kirchner², Yvon Le Moullec⁶, Jean-Ulrich Mullot⁷, Anne-Elisabeth Peel⁸, Christophe Rousselle¹, Valérie Pernelet-Joly¹, Marion Keirsbulck¹

¹ Anses (agence nationale de sécurité sanitaire), France

² CSTB (centre scientifique et technique du bâtiment), France

³ LCPP (laboratoire central de préfecture de Paris), France

⁴ EDF- Service d'études médicales, France

⁵ InVS (Institut national de veille sanitaire), France

⁶ LHVP (laboratoire d'hygiène de la ville de Paris), France

⁷ Service de Santé des Armées, France

⁸ Direction générale de l'armement, France

Introduction

En France, les résultats de la campagne nationale « Logements » de l'Observatoire de la Qualité de l'Air Intérieur (OQAI), publiés en 2007, ont permis de dresser un état de la pollution intérieure des logements français. Cette première référence sur la qualité de l'air du parc de logements français souligne la nécessité de disposer, au niveau national, de valeurs guides permettant d'asseoir des recommandations, voire d'une réglementation dans ce domaine.

En raison de l'enjeu sanitaire que présente la qualité de l'air intérieur, l'Anses a initié dès 2004 une expertise afin de proposer des valeurs guides de qualité d'air intérieur (VGAI).

Les VGAI sont exprimées en concentrations dans l'air d'un polluant, associées à un temps d'exposition, en-dessous desquelles aucun effet sanitaire, aucune nuisance, ou aucun effet indirect important sur la santé n'est en principe attendu au sein de la population générale.

Concernant les substances présentes dans l'air intérieur dont les effets sanitaires se manifesteraient sans seuil de dose (généralement des substances cancérigènes génotoxiques directs), les valeurs guides sont exprimées sous la forme de niveaux de risque correspondant à une probabilité de survenue de la maladie.

Une hiérarchisation des substances d'intérêt a permis d'établir en 2007 une liste de polluants prioritaires à étu-

dier, incluant les particules. Les VGAI sont définies selon une méthodologie proposée par le groupe de travail dédié. Ce travail d'expertise a pour objectif d'apporter aux pouvoirs publics des éléments utiles à la gestion des risques. Il s'inscrit dans le cadre des conclusions du Grenelle de l'environnement en 2007 et du deuxième Plan national santé environnement (PNSE 2) qui prévoit notamment plusieurs actions sur la qualité de l'air intérieur.

Méthode d'élaboration des VGAI

Le groupe de travail s'est appuyé sur la méthode d'élaboration des VGAI établie en 2007 et dont la révision est en cours. La démarche suivie pour proposer les VGAI relatives aux particules se décompose en trois étapes :

- 1^{ère} étape : analyse des données sur la toxicité des particules chez l'Homme et l'animal ;
- 2^{ème} étape : recueil des différentes valeurs guides et valeurs toxicologiques de référence (VTR) publiées au niveau international avec le détail de leur construction et des études de référence ;
- 3^{ème} étape : analyse des valeurs recensées et proposition de VGAI françaises.

Définition et composition des particules

Dans le cadre de ces travaux, le terme « particules » désigne l'ensemble de la matière solide et/ou liquide en suspension dans l'air. Les particules sont le plus souvent réparties en différentes classes granulométriques selon leur diamètre aérodynamique moyen. Les fractions PM₁₀ (Particule Matter₁₀; particules en suspension dans l'air, d'un diamètre aérodynamique médian inférieur à 10 µm) et PM_{2,5} sont les plus communément documentées, dans la mesure où leurs niveaux de concentration dans l'air ambiant sont réglementés et où les études épidémiologiques ont mis en évidence des effets sur la santé.

Les fractions dites submicroniques (PM₁) et ultrafines (PM_{0,1}) sont de plus en plus étudiées en raison d'une toxicité potentielle accrue (pénétration et persistance dans l'organisme, réactivité de surface plus élevée...).

La composition chimique et biologique des particules est un élément déterminant lorsque l'on étudie leurs effets sur la santé. Le mélange constituant les particules varie en fonction des sources d'émissions, de la fraction granulométrique de la météorologie, etc. Ce sujet complexe a été insuffisamment étudié, en particulier pour les particules présentes dans l'air intérieur. Quelques études publiées se sont intéressées aux composés organiques sur les particules en suspension (phtalates, polybromodiphényléthers (PBDE), ...). Globalement, les données disponibles soulignent que les particules dans

l'air intérieur sont mal caractérisées et forment un mélange très hétérogène tant en taille qu'en composition chimique et biologique.

Les biocontaminants aéroportés n'ont pas été spécifiquement considérés dans l'expertise réalisée par l'Anses ainsi que les nanoparticules manufacturées. Au bilan, il a été proposé de s'intéresser aux différentes fractions granulométriques (PM_{10} , $PM_{2,5}$, PM_1 et particules ultrafines), indépendamment de leur composition chimique.

Sources d'émission et concentrations dans l'air intérieur

Les niveaux de particules dans l'air intérieur dépendent de plusieurs facteurs dont le transfert de la pollution extérieure, les activités humaines telles que la cuisson des aliments, l'entretien des locaux et le tabagisme ainsi que certains équipements du bâtiment (état des appareils de combustion domestiques, systèmes de ventilation, etc.). En l'absence de sources intérieures, les niveaux de particules dans l'air intérieur sont corrélés à ceux dans l'air extérieur. En revanche, dès lors que des sources intérieures sont activées, ces dernières contribuent de façon prépondérante aux niveaux intérieurs.

Les concentrations massiques en PM_{10} et $PM_{2,5}$ ont été mesurées dans le séjour pendant les périodes de présence des occupants (soirées, nuits et week-ends) lors de la campagne « Logement » de l'OQAI. Les médianes des concentrations en PM_{10} et $PM_{2,5}$ sont respectivement égales à $31,3 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ($P75 = 56,7 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) et $19,1 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ($P75 = 35,4 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$).

Dans l'air extérieur, les sources sont d'origines naturelle (feux de végétation, éruptions volcaniques et érosion éolienne) et anthropique (agriculture, industrie, transport, chauffage résidentiel etc.).

Les particules fines et ultrafines sont issues principalement de processus de combustion. Des réactions chimiques en phase atmosphérique peuvent aussi conduire à la formation de particules secondaires, plutôt dans la gamme des ultrafines.

Effets sur la santé

Les études portant sur les effets sanitaires des particules présentes dans l'air intérieur sont peu nombreuses. La grande majorité des études chez l'Homme concerne l'exposition aux particules de l'air ambiant.

Le dépôt et la persistance des particules dans l'appareil respiratoire dépendent de leur taille. Différentes régions de dépôt sont généralement considérées :

- les particules les plus grossières (diamètre $> 5 \mu\text{m}$) sont retenues dans la région nasopharyngée;
- les particules de 1 à $5 \mu\text{m}$ peuvent atteindre la région trachéobronchique d'où, grâce au mécanisme de clairance mucociliaire, elles sont en grande partie rejetées;
- les particules fines, inférieures à $1 \mu\text{m}$, peuvent atteindre les régions bronchiolaire et alvéolaire où leur persistance dans ces tissus peut être prolongée.

Ainsi, les PM_{10} se répartissent dans toutes les régions de l'arbre respiratoire. Les $PM_{2,5}$ se localisent de manière privilégiée dans les régions bronchiolaire et alvéolaire.

Les effets observés chez l'Homme liés à une exposition à court terme aux particules dans l'air ambiant ont été décrits par des études d'exposition humaine contrôlée et des études épidémiologiques, essentiellement sur les particules Diesel, et les fractions PM_{10} et $PM_{2,5}$. Des inflammations respiratoires suivies d'atteintes de la fonction vasculaire ont été observées ainsi que des troubles du rythme cardiaque chez des volontaires en bonne santé ou souffrants de pathologies respiratoires exposés par instillations nasales ou inhalations de particules. Des augmentations de la mortalité, des hospitalisations pour des pathologies cardiovasculaires et respiratoires, des aggravations d'asthme ont été associées à des augmentations des concentrations ambiantes en PM_{10} et $PM_{2,5}$ dans les études épidémiologiques. Ces effets sont généralement plus marqués chez les sujets âgés (65 ans et plus).

Les études portant sur l'exposition à long terme aux particules dans l'air ambiant sont moins nombreuses. Des études de cohorte américaines ont mis en évidence des augmentations significatives de la mortalité (totale, cardio-respiratoire et cancer du poumon) et de la survenue de maladies respiratoires (asthme, broncho-pneumopathie chronique obstructive (BPCO)...) et cardio-vasculaires.

Certaines populations sont plus sensibles que d'autres en termes d'effets sur la santé, les sous-groupes suivants peuvent être considérés : fœtus, nouveau-nés, enfants, personnes âgées, toute personne atteinte de pathologie cardiovasculaire ou respiratoire (antécédents d'infarctus du myocarde, coronaropathie, asthme, etc.), de diabète, voire d'obésité.

Conclusion et recommandations

La démarche d'élaboration des VGAI n'est pas applicable stricto sensu au cas des particules. En effet les valeurs guides proposées par des organismes supranationaux ou nationaux, ne sont pas basées exclusivement sur des critères sanitaires, et aucune VTR n'existe dans les bases de données usuellement consultées.

Ainsi, conformément à la méthodologie d'élaboration de VGAI, l'Anses n'a pas proposé en 2010 de valeurs guides de qualité d'air intérieur pour des expositions aiguë et chronique aux particules présentes dans l'air intérieur. A l'heure actuelle, il n'est pas possible de construire de telles valeurs étant donné que les particules sont un mélange très hétérogène tant en taille qu'en composition chimique et biologique et donc en l'absence de relations dose-effet propre au mélange de particules présent dans l'air intérieur.

Des valeurs guides à des fins de gestion ont été proposées par l'OMS pour l'air ambiant (air extérieur) dans la mise à jour de ses Air Quality Guidelines, en 2005 :

- Sur 24 heures : 25 $\mu\text{g.m}^{-3}$ pour les $\text{PM}_{2,5}$ et 50 $\mu\text{g.m}^{-3}$ pour les PM_{10}
- Sur le long terme : 10 $\mu\text{g.m}^{-3}$ pour les $\text{PM}_{2,5}$ et 20 $\mu\text{g.m}^{-3}$ pour les PM_{10}

Cependant, sur la base des données toxicologiques et épidémiologiques disponibles, l'OMS estime qu'il ne peut être établi de seuil en deçà duquel aucun effet sanitaire néfaste n'est attendu à l'échelle de la population. Des troubles sanitaires ont été rapportés jusqu'à de faibles concentrations en $\text{PM}_{2,5}$, de l'ordre de 3 à 5 $\mu\text{g.m}^{-3}$, voisines du bruit de fond et loin de toute source, aux États-Unis et en Europe. Compte tenu de la variabilité des niveaux d'exposition de la population et de la variabilité inter-individuelle, il apparaît peu probable qu'une valeur limite à seuil puisse garantir la protection de tous les individus vis-à-vis de tous les effets toxicologiques des particules. L'OMS estime aussi que PM_{10} et $\text{PM}_{2,5}$ sont tous deux des traceurs à considérer et que pour chacun d'eux, des valeurs guides protégeant des effets à court terme d'une part, et des effets à long terme d'autre part, sont utiles. En effet, à défaut de pouvoir proposer des valeurs sanitaires, l'OMS a estimé utile de produire des premiers repères afin d'encourager les actions visant à la réduction des émissions de particules.

Pour conclure, dans la mise à jour de ses Air quality guidelines, l'OMS précise que malgré l'évidence croissante des effets sanitaires liés à l'exposition par inhalation aux particules ultrafines (diamètre < 100 nm), les connaissances scientifiques sont actuellement insuffisantes pour établir une valeur guide de qualité de l'air.

Dans l'attente d'acquisition de connaissances scientifiques complémentaires, l'Anses recommande la mise en œuvre par les politiques publiques des valeurs guides de l'OMS pour l'amélioration de la qualité de l'air intérieur considérant que :

- en présence de sources intérieures (combustion, système de freinage dans les espaces ferroviaires souterrains...), des concentrations intérieures en particules peuvent être élevées (de l'ordre de plusieurs centaines de $\mu\text{g.m}^{-3}$)
- une partie des particules de l'air intérieur provient de la pollution atmosphérique ambiante, dont les effets sur la santé sont bien documentés.

Cette recommandation s'inscrit dans la continuité de l'avis de l'Anses du 20 mars 2009 relatif à une synthèse des éléments sanitaires en vue d'un appui à l'élaboration de seuils d'information et d'alerte du public pour les particules dans l'air ambiant. L'agence a estimé que des mesures de gestion devraient prioritairement viser l'abaissement des niveaux moyens de particules responsables de l'essentiel de l'impact sanitaire.

L'agence recommande donc de donner la priorité à la réduction des pollutions à la source en agissant sur les émissions de particules dans l'air intérieur mais aussi dans l'air ambiant (combustion du bois, du charbon et du fuel, industries, transports, agriculture...).

Compte tenu de l'insuffisance des données disponibles, l'Anses encourage la réalisation de travaux sur la composition des particules intérieures et sur les effets sur la santé du mélange de particules présent dans les lieux clos. Enfin, l'Anses recommande la réalisation de travaux de recherches permettant de mieux caractériser la toxicité et l'exposition aux particules fines et ultrafines.

Informations diverses

Manifestations

Conférence sur la qualité de l'Air Intérieur dans le cadre du « café de la DREAL ». Information et sensibilisation auprès du personnel de la DREAL Aquitaine le souhaitant, le mardi 11 janvier 2011. A cette occasion, une exposition sur la qualité de l'air extérieur et intérieur a été présentée dans le hall d'accueil de la cité administrative (Bordeaux-33).

12^{ème} Conférence internationale sur la distribution de l'air dans les pièces ; ROOMVENT 2011 - Du 19 au 22 juin 2011 - Trondheim, Norvège.

Cette conférence mettra l'accent sur les nouvelles technologies et les stratégies de ventilation pour les bâtiments basse consommation, les maisons passives et les bâtiments «zéro émission» .

Modélisation et visualisation seront des thèmes importants, ainsi que les stratégies de ventilation naturelle, hybride et mécanique. En outre, le transport et la propagation des infections à transmission aérienne sera un enjeu important.

Publications

Rapport sur le diagnostic et le traitement des syndromes de réponse inflammatoire causés par l'exposition à l'environnement intérieur de bâtiments ayant subi un dégât des eaux

Le Comité de recherche sur les moisissures présente un état actuel des connaissances concernant les effets sur la santé de l'homme acquis à la suite d'exposition aux microorganismes et de leurs métabolites présents dans l'environnement intérieur des bâtiments endommagés par l'eau. Ces contaminants comprennent, notamment des champignons, bactéries, actinomycètes, des mycobactéries ainsi que leurs toxines.

Association of Residential Dampness and Mold with Respiratory Tract Infections and Bronchitis: A Meta-Analysis
Environmental Health 2010, 9:72doi:10.1186/1476-069X-9-72 by William J Fisk, Ekaterina A Eliseeva and Mark J Mendell

Guide ARTEFAB Améliorer la qualité de l'air dans les logements - Le rôle essentiel du plombier-chauffagiste (mars 2010)

Dans le cadre du PRSE des Pays-de-la-Loire, un partenariat a été développé entre la CAPEB et l'ARS pour former les professionnels du bâtiment à la maîtrise du risque lié au monoxyde de carbone. Une qualification distingue les professionnels qui ont suivi une formation spécifique (Quali'CO).

Elle est validée par un examen portant sur les compétences acquises en matière d'installation et d'entretien d'appareils dans les règles de l'art.

Ce partenariat s'est poursuivi par l'élaboration en 2010 d'un guide pratique Améliorer la qualité de l'air dans les logements - le rôle essentiel du plombier-chauffagiste.

Ce guide permet aux professionnels de se poser les bonnes questions avant de réaliser une intervention afin de concilier les impératifs de qualité de l'air et de sécurité, notamment pour prévenir le risque d'intoxication au monoxyde de carbone. Ces questions permettent de réfléchir aux amenées d'air nécessaires et à l'évacuation des gaz brûlés en fonction du bâti et de l'environnement des installations prévues. Elles vont jusqu'à alerter des interférences possibles avec les autres corps d'état. Elles abordent, quelle que soit le combustible, les installations en neuf et les installations en existant.

En suivant la formation Quali'CO et en consultant ce guide, les professionnels seront capables de répondre à toutes ces questions qu'ils doivent se poser avant chaque intervention. Guide pratique Améliorer la qualité de l'air dans les logements - Le rôle essentiel du Plombier-Chauffagiste (mars 2010) Pdf téléchargement (23 pages, 5579 Ko).

Ce document est disponible en téléchargement sur le site de l'ARTEFAB Pays-de-la-Loire lien avec site internet.

<http://rese.sante.gouv.fr/santenv/interven/airint/biblio/artefab.htm>

Intoxications au monoxyde de carbone

L'InVS publie un rapport intitulé Intoxications au monoxyde de carbone dans des foyers équipés d'un chauffage au charbon Nord-Pas-de-Calais, septembre-décembre 2007. Il est disponible sur le site de l'InVS .

http://www.invs.sante.fr/display/?doc=publications/2010/intoxications_co_charbon/index.html

Description du budget espace-temps (BET) et estimation de l'exposition de la population française dans son logement

Les données utilisées ont été collectées par l'Observatoire de la qualité de l'air intérieur entre octobre 2003 et décembre 2005. En moyenne sur la semaine, le temps passé quotidiennement à l'intérieur du logement est de 16 h 10 min. Ceci représente 67 % du temps journalier (71 % chez les femmes et 63 % chez les hommes).

Les données sur le BET constituent une source d'information utile pour améliorer l'estimation de l'exposition des populations aux polluants présents à l'intérieur du logement et dans les évaluations quantitatives du risque sanitaire.

http://www.invs.sante.fr/publications/2010/exposition_co_logement/index.html

Effets sanitaires des moisissures dans l'habitat - L'enquête ESMHA, pilote d'une étude épidémiologique en Île-de-France

Dans le cadre de l'action 19 du PRSE Île-de-France : Protéger la santé des populations vivant en habitat insalubre, la réalisation d'une étude épidémiologique sur les effets sanitaires des moisissures dans l'habitat (ESMHA) a été confiée à l'observatoire régional de santé d'Île-de-France (ORS).

<http://www.ors-idf.org/index.php/component/content/article/594-etude-moisissure>

L'OMS a publié un nouveau volume des valeurs guides mondiales sur la qualité de l'air intérieur. Intitulé Valeurs guides de l'OMS pour la qualité de l'air intérieur : le cas de plusieurs polluants, il présente les valeurs guides de l'OMS pour le benzène, le monoxyde de carbone, le formaldéhyde, le naphthalène, le dioxyde d'azote, les hydrocarbures aromatiques polycycliques (notamment le benzopyrène), le radon, le trichloréthylène et le tétrachloréthylène. Pour chacune des substances, il présente une description précise, les sources et les modes d'exposition, la relation entre l'air intérieur et l'air extérieur, la cinétique et le métabolisme, les effets sur la santé, une évaluation des risques sanitaires, des valeurs guides, un résumé et des références.

Sur le web

Étude à Tokyo : 12 % des émissions de COV proviennent de l'usage quotidien de produits domestiques

Le Gouvernement Métropolitain de Tokyo (TMG) a publié, le 29 juin 2010, les chiffres de l'émission de composés organiques volatils (COV) provenant de l'utilisation de produits dans les maisons et bureaux. Dans un effort pour réduire les risques environnementaux causés par les produits chimiques et des oxydants photochimiques, le TMG a travaillé à quantifier et réduire la quantité des émissions de COV provenant des usines et des automobiles. L'estimation montre, pour la première fois, que les émissions de COV provenant des maisons et des bureaux constituent une proportion relativement élevée de 12 % des émissions totales de COV à Tokyo.

<http://www.japanfs.org/en/pages/030418.html>

Les intoxications au monoxyde de carbone concernent tout le monde. Les bons gestes de prévention aussi.

L'Institut national de prévention et d'éducation pour la santé (Inpes) et le ministère du Travail, de l'Emploi et de la Santé diffusent, depuis cet automne et durant tout l'hiver, une campagne d'information pour sensibiliser la popula-

tion sur les risques liés au monoxyde de carbone et les bons gestes à adopter. Alors que seul un Français sur 10 (11,1 %) pense courir un risque élevé d'être victime d'une intoxication au monoxyde de carbone (CO) au cours de sa vie, la campagne rappelle que « les intoxications au monoxyde de carbone concernent tout le monde. Les bons gestes de prévention aussi. » En effet, selon l'Institut de veille sanitaire (InVS), environ 1 300 épisodes d'intoxication au monoxyde de carbone, impliquant environ 4 000 personnes exposées à des émanations de CO, sont déclarés chaque année.

http://www.invs.sante.fr/presse/2010/communiqués/cp_monoxyde_carbone_061210/index.html

Une étude estime que le tabagisme passif est responsable de plus de 600 000 décès, soit 1 % des décès dans le monde

Pour y parvenir, une équipe internationale a mis en œuvre la méthode dite d'estimation comparative des risques. Celle-ci implique, d'une part, d'estimer la proportion de la population exposée et, d'autre part, de disposer des risques relatifs de développer certaines maladies associées au tabagisme passif. Il s'agit ensuite de calculer le nombre de décès et de DALYs (années de vie ajustées sur l'incapacité) attribués au tabagisme passif. Les calculs sont présentés par pathologie, par groupe d'âge et par sexe, pour 192 pays et sur l'année 2004.

<http://www.e-cancer.fr/toutes-les-actualites/310/4752-une-etude-estime-que-le-tabagisme-passif-est-responsable-de-plus-de-600-000-deces-soit-1-des-deces-dans-le-monde>

Animation du réseau RSEIN et publication de Info Santé Environnement Intérieur coordonnées par l'INERIS

Directeur de la publication : Vincent Laflèche

Directeur de la rédaction : André Cicolella

Comité scientifique : Souad BOUALLALA, ADEME, Gaëlle GUILLOSSOU, EDF, Frédérique GRIMALDI, Faculté de pharmacie de Marseille/APPA, Benjamin HANOUNE, USTL/PC2A, Juliette LARBRE, INERIS/RSEIN, Olivier LE BIHAN, INERIS, Corinne MANDIN, CSTB/OQAI, Vincent NEDELLEC, VNC, Olivier RAMALHO, CSTB/OQAI, Corinne SCHADKOWSKI, APPA

Comité d'organisation : Benjamin HANOUNE, Juliette LARBRE, Corinne MANDIN, Corinne SCHADKOWSKI ainsi que toute l'équipe de l'APPA Nord-Pas-de-Calais

Coordination et contact : Juliette Larbre juliette.larbre@ineris.fr

Maquette : Aude Revesche

ISSN 1760-5407

Le réseau RSEIN, en relation avec l'Observatoire de la Qualité de l'Air Intérieur, est constitué de représentants des structures suivantes : Agence Française de Sécurité Sanitaire de l'Environnement et du Travail, Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Énergie, Association pour la Prévention de la Pollution Atmosphérique et ses comités régionaux Nord-Pas de Calais et PACA-Marseille, ATMO PACA représentant les Associations Agréées pour la Surveillance de la Qualité de l'Air, Bureau Véritas, Centre Scientifique et Technique du Bâtiment, Complexe de Recherche Interprofessionnel en Aérothermochimie, École des Hautes Études en Santé Publique, Faculté de Pharmacie de Marseille, Faculté de Pharmacie de Paris V, Hôpitaux de Marseille, Hôpitaux de Rouen, Hôpitaux de Strasbourg, Institut National de la Santé et de la Recherche Médicale, Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques, Institut Technologique Forêt, Cellulose, Bois et Ameublement, Institut de Veille Sanitaire, Laboratoire Central de la Préfecture de Police de Paris, Laboratoire d'Étude des Phénomènes de Transfert et de l'Instantanéité : Agro-industrie et Bâtiment, Laboratoire d'Hygiène de la Ville de Paris, Laboratoire du Génie de l'Environnement Industriel – antenne de Pau de