

Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air



THEME AIR INTERIEUR - ETUDE N° 8/3 - 2011 MESURE DU FORMALDÉHYDE

<u>Volet 2.B.</u>: « Test d'un échantillonneur passif pour la mesure in situ des taux d'émission en formaldéhyde des surfaces et matériaux présents dans les environnements intérieurs »

Novembre 2011 Programme 2011







PREAMBULE

Le Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air

Le Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air est constitué de laboratoires de l'Ecole des Mines de Douai, de l'INERIS et du LNE. Il mène depuis 1991 des études et des recherches finalisées à la demande du Ministère chargé de l'environnement, en concertation avec les Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA). Ces travaux en matière de pollution atmosphérique, supportés financièrement par la Direction Générale de l'Energie et du Climat (Bureau de la Qualité de l'Air) du Ministère de l'Ecologie, du Développement Durable, des Transports et du Logement (MEDDTL), sont réalisés avec le souci constant d'améliorer le dispositif de surveillance de la qualité de l'air en France en apportant un appui scientifique et technique aux AASQA.

L'objectif principal du LCSQA est de participer à l'amélioration de la qualité des mesures effectuées dans l'air ambiant, depuis le prélèvement des échantillons jusqu'au traitement des données issues des mesures. Cette action est menée dans le cadre des réglementations nationales et européennes mais aussi dans un cadre plus prospectif destiné à fournir aux AASQA de nouveaux outils permettant d'anticiper les évolutions futures.



Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air

ECOLE DES MINES DE DOUAI DEPARTEMENT CHIMIE ET ENVIRONNEMENT

Programme financé par la Direction Générale de l'Energie et du Climat (DGEC)

2011

ETUDE N° 8/3 - 2011 MESURE DU FORMALDÉHYDE

TEST D'UN ECHANTILLONNEUR PASSIF POUR LA MESURE IN
SITU DES TAUX D'EMISSION EN FORMALDEHYDE DES SURFACES
ET MATERIAUX PRESENTS DANS LES ENVIRONNEMENTS
INTERIEURS

Sabine CRUNAIRE
Sébastien DUSANTER
Hervé PLAISANCE
Guillaume POULHET
Avec la collaboration technique d'Isabelle FRONVAL et Vincent GAUDION

Convention : 2200460208 Novembre 2011

SOMMAIRE

S	OMMAIRE		7
R	RESUME		9
R	REMERCIEMENTS .		11
1	INTRODUCTIO)N	13
2	MOYENS MIS I	EN ŒUVRE	14
	2.1 MODELE D'E	EQUILIBRE DES MASSES	14
		res d'influence de la concentration intérieure en formaldéhyde	
		ses d'application du modèle	
		lu modèle	
	2.2 DETERMINA	TION DES DIFFERENTS PARAMETRES D'INFLUENCE	16
	2.2.1 Détermin	nation des concentrations en formaldéhyde dans l'air	16
		nation du taux de renouvellement de l'air	
		nation des taux d'émission des matériaux et du total des émissions	
		lection et identification des différentes matériaux à échantillonnertermination du taux d'émission en formaldéhyde de chacun des matériaux	
		Méthodes existantes	
		Méthode utilisée pour les campagnes de terrain	
	2.2.3.2.2.		
	2.2.3.2.2.	1	23
		termination du total des émissions des matériaux sélectionnés et de leur contribution à la térieure	24
3	RESULTATS D	ES CAMPAGNES DE MESURE	25
	3.1 CAMPAGNE	D'ABBEVILLE	25
		ude	
		ristiques de la campagne	
		s et interprétations	
		ux de renouvellement et concentrations ambiantes	
		nissions des surfaces identifiées	
		erprétation des résultats	
		DE MOUANS-SARTOUX	
		uderistiques de la campagne	
		ss	
	C.2.C 1(CS)	ux de renouvellement et concentrations ambiantes	
		nissions des surfaces identifiées.	
		erprétation des résultats	
		DE LA SEYNE-SUR-MER	
		ude	
		ristiques de la campagne	
		s	
		ux de renouvellement et concentrations ambiantes	
		erprétation des résultats.	
		DE DONGES	
		ude	
	3.4.2 Caractéi	ristiques de la campagne	44
		s	
		ux de renouvellement et concentrations ambiantes	
		nissions des surfaces identifiées.	
	3.4.3.3 Int	erprétation des résultats	48
4	SYNTHESE DE	S RESULTATS	49

		VALEURS DES BLANCS ET LIMITES DE DETECTION « TERRAIN »	
	4.2	COMPARAISON DES CONTRIBUTIONS RELATIVES DU BATI ET DE L'AMENAGEMENT.	50
	4.3	COMPARAISON MODELE-MESURE	53
	4.4	APPLICATION DE SCERANIOS D'AMELIORATION DE LA QUALITE DE L'AIR	54
5	C	ONCLUSION GENERALE	55
Δ	NNF	XF : Document de référence	50

RESUME

DE l'ETUDE LCSQA n° 8/3 – 2011 : MESURE DU FORMALDÉHYDE

Sabine CRUNAIRE - LCSQA/EMD

sabine. crunaire@mines-douai.fr; 203 27 71 26 01

Le principe d'une surveillance obligatoire de la qualité de l'air intérieur dans les lieux clos recevant du public a été introduit lors du Grenelle Environnement et acté dans le second plan national santé-environnement (PNSE2) et dans la loi de programmation relative à la mise en œuvre du Grenelle Environnement, dite Grenelle 1, du 3 août 2009 [1]. Afin de définir les modalités de cette surveillance, une campagne pilote est conduite au niveau national sur la période 2009-2011.

Au sein du LCSQA, les objectifs de l'Ecole des Mines de Douai de tester un échantillonneur passif pour la mesure in situ des taux d'émission en formaldéhyde des surfaces et matériaux présents dans les environnements intérieurs et de mettre au point la méthodologie d'utilisation de ceux-ci sur le terrain dans le cadre d'une recherche des sources en formaldéhyde.

Au cours de l'année 2011, les travaux réalisés dans le cadre du LCSQA ont porté sur les actions suivantes :

- Réalisation d'un diagnostic approfondi des sources de formaldéhyde dans 4 salles de classe pour lesquelles les teneurs ambiantes moyennes en formaldéhyde déterminées durant la phase 1 de la campagne pilote avoisinaient 50 μg.m⁻³ (seuil correspondant à la valeur d'information et de recommandation définie en 2009 par le HCSP [6]). La recherche des principales sources diffuses intérieures a été réalisée au moyen de préleveurs passifs qui ont été déployés pour la mesure in-situ de taux d'émission en formaldéhyde des matériaux de construction et d'aménagement en présence (données exprimées en μg.m⁻².h⁻¹). Ainsi pour chacun des 4 sites, c'est plus de 30 sources possibles qui ont été échantillonnées;
- Etablissement d'un bilan quantifié des contributions des différentes sources grâce à un métrage des surfaces de chacun des éléments individuels échantillonnés;
- Utilisation d'un modèle mathématique d'équilibre des masses permettant d'évaluer l'impact de différentes stratégies d'amélioration de la qualité de l'air intérieur (diminution des émissions, amélioration du renouvellement d'air) en complément de données mesurées individuellement pour chacun des sites comme le taux de renouvellement de l'air de la salle de classe ou encore les concentrations en formaldéhyde à l'intérieur et à l'extérieur de la salle de classe.

L'ensemble de ces mesures nous ont permis de dégager les conclusions suivantes :

Les taux d'émission (TE) mesurés sur site se situent dans une gamme de valeurs comprises entre 8 et 252 μg.m⁻².h⁻¹ et indiquent la présence d'émetteurs très importants (TE > 50 μg.m⁻².h⁻¹) qui sont généralement constitués de matériaux à base de bois compressés ou de mousses expansées;

- La proportion de matériaux dont les taux d'émission sont inférieurs à la limite de détection du préleveur est de l'ordre de 2 % pour chacun des établissements;
- Les principales sources d'émission en formaldéhyde dans ces écoles ont été clairement identifiées et le plafond est apparu comme l'émetteur le plus important pour chacune des écoles;
- Bien que les valeurs médianes des taux d'émission en formaldéhyde mesurés dans les 4 salles de classe soient proches (11 à 23 μg.m⁻².h⁻¹), l'émission totale en formaldéhyde varie fortement d'un site à l'autre avec des valeurs comprises entre 4,3 et 21,5 mg.h⁻¹;
- Le modèle d'équilibre des masses utilisé dans cette étude est apparu comme un outil de diagnostic utile pour évaluer l'impact de stratégie d'amélioration de la qualité de l'air avec une diminution escomptée pour les 4 salles de classe d'environ 40 % des teneurs en formaldéhyde pour un doublement du taux de renouvellement de l'air de la pièce et une diminution variable comprise entre 16 et 65 % dans le cas du remplacement du matériaux constitutif du plafond par un matériau moins émetteur (TE = 12,5 μg.m⁻².h⁻¹).

REMERCIEMENTS

Le LCSQA remercie les Associations Agrées pour la Surveillance de la Qualité de l'Air : ATMO PACA, ATMO Picardie et Air Pays de la Loire pour leur contribution à cette étude ainsi pour leur aide dans l'organisation et la mise en place des différentes campagnes de mesure. Le LCSQA est également très reconnaissant envers les Services municipaux des Mairies d'Abbeville, de La Seyne-sur-Mer, de Mouans-Sartoux et de Donges pour leur disponibilité et leur intéressement à cette étude.

1 INTRODUCTION

Le principe d'une surveillance obligatoire de la qualité de l'air intérieur dans les lieux clos recevant du public a été introduit lors du Grenelle Environnement et acté dans le second plan national santé-environnement (PNSE2) et dans la loi de programmation relative à la mise en œuvre du Grenelle Environnement, dite Grenelle 1, du 3 août 2009 [1]. Afin de définir les modalités de cette surveillance, une campagne pilote est conduite au niveau national sur la période 2009-2011.

Cette étude s'inscrit dans ce contexte national et dans la continuité de la première phase de la campagne pilote de surveillance de la qualité de l'air dans les écoles et crèches [2].

Le formaldéhyde, composé classé dans le groupe 1 des substances cancérigènes certains pour l'homme par le Centre International de la Recherche sur le Cancer [3]. est l'un des aldéhydes les plus abondants dans l'air intérieur des établissements scolaires avec des teneurs de 5 à 50 fois supérieures à celles mesurées en atmosphère extérieure [4-5]. Les résultats de la première phase de la campagne pilote ont révélé que les moyennes « annuelles » des concentrations en formaldéhyde, établies sur la base de 2 campagnes de prélèvement par tube à diffusion passive de 4,5 jours (une en été et l'autre en hiver), sont inférieures ou égales à 30 µg.m⁻³ dans 89 % des 160 établissements investigués. Cette valeur de 30 µg.m⁻³ est considérée comme satisfaisante par le Haut Conseil de la Santé Publique (HCSP) et ne requiert pas d'action spécifique dans l'état des connaissances actuelles [6]. En revanche, parmi les autres établissements quelques situations nécessitent des diagnostics complémentaires et des mesures correctives. Des moyens d'expertise pour tenter d'identifier les sources principales de pollution et mettre en place les actions nécessaires ont été proposés aux maires et chefs d'établissement concernés.

Ainsi, ce travail a pour objectif principal de réaliser un diagnostic approfondi des sources de formaldéhyde dans des salles de classe. Celles-ci ont été sélectionnées au regard des concentrations moyennes « annuelles » en formaldéhyde mesurées au cours de la campagne pilote. Quatre établissements scolaires ont ainsi été retenus car ils comportaient au moins une salle dans laquelle cette concentration avoisinait 50 µg.m⁻³ (seuil correspondant à la valeur d'information et de recommandation définie en 2009 par le HCSP [6]). La recherche des principales sources diffuses intérieures se fera au moyen de préleveurs passifs qui seront déployés pour la mesure in-situ de taux d'émission en formaldéhyde des matériaux de construction et d'aménagement présents dans la salle de classe la plus contaminée. Ceci permettra d'établir un bilan quantifié des contributions des différentes sources. Pour finir, l'utilisation d'un modèle mathématique permettra d'évaluer l'impact de différentes stratégies d'amélioration de la qualité de l'air intérieur (diminution des émissions, amélioration du renouvellement d'air).

2 MOYENS MIS EN ŒUVRE

2.1 MODELE D'EQUILIBRE DES MASSES

2.1.1 Paramètres d'influence de la concentration intérieure en formaldéhyde

La concentration en formaldéhyde dans l'air intérieur dépend de quatre processus de base qui contrôlent les vitesses d'apparition et de disparition de ce composé dans un environnement clos donné. Ces paramètres sont :

- la transmission du formaldéhyde de l'extérieur vers l'intérieur de la pièce ;
- les émissions de formaldéhyde depuis les sources intérieures ;
- le flux de formaldéhyde sortant de l'environnement intérieur (i.e. le renouvellement de l'air) ;
- l'élimination du formaldéhyde par des processus physico-chimiques d'adsorption et/ou de réactions chimiques hétérogènes sur les surfaces.

Ces différents paramètres ont été mis en équation pour la première fois, en 1981, par Dockery et Spengler pour aboutir à un modèle mathématique dit « d'équilibre des masses » [7]. Ce modèle a par la suite été affiné pour aboutir à l'expression mathématique suivante donnant la variation de la concentration de formaldéhyde dans un environnement intérieur [8] :

$$\left[H_2CO\right]_{\rm int} = \left[\left[H_2CO\right]_{\rm ext} \cdot \frac{a \cdot P}{a + v \cdot \frac{S_{bati} + S_{meubles}}{V}}\right] + \left[\frac{\frac{Q}{V}}{a + v \cdot \frac{S_{bati} + S_{meubles}}{V}}\right] \\ \left[\left[H_2CO\right]_{\rm int} \text{ est la concentration en formaldéhyde dans l'air intérieur (en $\mu g.m^{-3}$),} \right]$$

 $[H_2CO]_{\rm int}$ est la concentration en formaldéhyde dans l'air intérieur (en $\mu g.m^{-3}$), $[H_2CO]_{\rm ext}$ est la concentration en formaldéhyde dans l'air extérieur à la pièce (en $\mu g.m^{-3}$), P est le taux de pénétration du formaldéhyde lors de son transfert de l'extérieur vers l'intérieur de la pièce (sans unité), a est le taux de renouvellement de l'air (en h^{-1}), Q est la somme des émissions en formaldéhyde de l'ensemble des matériaux et meubles présents dans la pièce pondérés par leur surface (en $\mu g.h^{-1}$), V est le volume de la pièce (en m^3), $S_{\rm bati}$ et $S_{\rm meubles}$ sont respectivement les surfaces géométriques de l'ensemble des éléments bâtis et des éléments du mobilier/aménagement (en m^2), V est la vitesse de dépôt du formaldéhyde dans la pièce (en $m.h^{-1}$).

2.1.2 Hypothèses d'application du modèle

L'utilisation de l'équation du modèle d'équilibre des masses telle que présentée au paragraphe précédent suppose que plusieurs hypothèses soient vérifiées :

- a. Homogénéité de la concentration en formaldéhyde au sein d'un même espace clos ;
- b. Réactivité chimique du formaldéhyde réduite sur la durée des prélèvements ;
- c. Pas de sources ponctuelles d'émission de formaldéhyde ;
- d. Renouvellement de l'air intérieur uniquement par de l'air ambiant extérieur ;
- e. Taux de pénétration du formaldéhyde de l'extérieur vers l'intérieur d'une pièce est une constante ;
- f. Vitesse de dépôt du formaldéhyde est une constante.

- a. L'étude de la représentativité spatiale d'un prélèvement à l'intérieur d'une salle de classe a fait l'objet de travaux en 2009 dans le cadre du Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air [9]. Cette étude a conclu à une "indépendance de la concentration en fonction du point de mesure dans la pièce (...) choisi pour réaliser le prélèvement court terme".
- b. Les différents prélèvements réalisés pour mettre en application le modèle d'équilibre des masses pour le formaldéhyde ont une durée moyenne de 6 heures. Dans l'air intérieur, les processus chimiques mettant en jeu le formaldéhyde sont de différentes natures :
- production de formaldéhyde par réaction d'ozonolyse de composés organiques volatils insaturés ;
 - production de formaldéhyde par photolyse ;
 - dégradation du formaldéhyde par photolyse ;
- oxydation du formaldéhyde par l'ozone ou les radicaux hydroxyles (OH) ou nitrates (NO₃).

Les cinétiques de réaction du formaldéhyde avec les radicaux OH et NO_3 sont très lentes ($k_{OH,298K} = 9,3.10^{-12} \text{ cm}^3$.molécule $^{-1}.\text{s}^{-1}$ et $k_{NO3,298K} = 5,8.10^{-16} \text{ cm}^3$.molécule $^{-1}.\text{s}^{-1}$). La dégradation du formaldéhyde par ces deux voies ne conduira pas à des pertes significatives sur la durée des mesures.

Les niveaux de concentration en ozone dans l'air intérieur sont typiquement 2 à 5 fois moins élevés que dans l'air extérieur et ils sont aussi directement proportionnels au taux de renouvellement de l'air de la pièce [10]. Ce qui laisse suggérer que les réactions mettant en jeu l'ozone seront minoritaires dans les conditions d'application du modèle.

La photolyse du formaldéhyde en air extérieur est un processus de dégradation rapide. En air intérieur, ce processus est nettement plus limité du fait que le spectre lumineux est modifié et que le domaine des UV est nettement atténué par les vitrages. L'atténuation d'un vitrage clair est supérieure à 80% pour les longueurs d'onde inférieures à 360 nm. Cette valeur étant la limite haute pour la photolyse du formaldéhyde, sa dégradation par photolyse en air intérieur est limitée.

- c. Pour limiter au mieux la contribution de sources ponctuelles (utilisation de matériels propres aux activités scolaires ou aux travaux manuels, produits d'entretien, etc.), il a été demandé qu'aucun nettoyage ne soit réalisé avec des produits dans la salle de classe 2 à 3 jours avant les mesures et que la salle soit libre pendant les 2 jours nécessaires à la réalisation des mesures.
- d. La concentration $[H_2CO]_{ext}$ peut avoir deux origines différentes : l'air extérieur à l'établissement scolaire et l'air des pièces ou couloirs adjacents à la salle de classe échantillonnée. La répartition entre ces apports étant difficile à déterminer, seules les entrées d'air en provenance de l'extérieur du bâtiment ont été rendues possibles. Les issues en communication avec une autre pièce du bâtiment ont été calfeutrées.
- e. En examinant les relations entre les concentrations extérieures et intérieures, Liu et al. (2006) ont montré que le taux de pénétration du formaldéhyde, P, pouvait être considéré comme égal à 1 [11]. Dans ce cas, la concentration en formaldéhyde dans la masse d'air transférée de l'extérieur vers l'intérieur ne change pas. Une valeur de P =1 sera donc considérée dans cette étude.

f. La vitesse de dépôt du formaldéhyde au sein d'une pièce dépend de nombreux paramètres telle que la nature des matériaux présents, l'humidité relative, la température, etc. Pour l'application du modèle au cas des écoles, nous avons choisi d'utiliser une vitesse de dépôt déterminée expérimentalement dans des logements étudiants qui présentent des surfaces et des conditions environnementales similaires à celles rencontrées dans des établissement scolaires [8]. Cette vitesse est égale à 0,11±0,01 m.h⁻¹.

2.1.3 Intérêt du modèle

Le modèle d'équilibre des masses tel que présenté dans l'équation du paragraphe 2.1.1 a été utilisé dans le cadre de cette étude pour :

- vérifier qu'aucune source d'émission n'a été oubliée lors de l'échantillonnage sur site en comparant la concentration en formaldéhyde mesurée à l'intérieur de la pièce par une méthode normalisée à la concentration intérieure calculée par le modèle;
- tester différents scénarios d'amélioration de la qualité de l'air (retrait ou modification d'un matériau, augmentation du renouvellement d'air, etc.) et évaluer leurs impacts sur la concentration intérieure en formaldéhyde attendue.

2.2 DETERMINATION DES DIFFERENTS PARAMETRES D'INFLUENCE

Chacun des paramètres de l'équation donnée en 2.2.1 qui n'a pas été considéré comme une constante en 2.1.2 doit être mesuré à chaque nouvelle campagne de mesure sur site. Les paragraphes qui suivent, présentent les méthodes qui ont été utilisées pour déterminer les concentrations en formaldéhyde à l'intérieur et à l'extérieur des pièces ($[H_2CO]_{\rm int}$, $[H_2CO]_{\rm ext}$), le taux de renouvellement de l'air (a), les taux d'émission des matériaux ainsi que les émissions totales de chacun d'entre eux (Q).

2.2.1 Détermination des concentrations en formaldéhyde dans l'air

Les concentrations en formaldéhyde à l'intérieur des salles de classe et dans l'air extérieur au bâtiment sont déterminées selon la norme NF EN ISO 16000-3 [12]. Ainsi, des prélèvements actifs d'une durée égale à celle de la mesure des taux d'émission (6 heures en général) ont été réalisés à l'aide de cartouches de DNPH (Sep-Pak, Waters, France) à un débit régulé de 1 L.min⁻¹.

Pour les prélèvements extérieurs un scrubber d'ozone contenant du KI a été utilisé afin d'éviter l'interférence de l'ozone sur le prélèvement du formaldéhyde. Le prélèvement a été réalisé à proximité d'une entrée d'air (fenêtre, porte, grille d'aération).

Comme indiqué au paragraphe 2.1.2, la concentration en formaldéhyde au sein d'un même espace clos est relativement homogène. Néanmoins, à proximité directe d'une source importante en formaldéhyde on peut s'attendre à une concentration locale légèrement différente. Pour s'assurer d'un niveau le plus homogène possible, les prélèvements intérieurs ont été réalisés au centre de la pièce à une hauteur d'environ 1,20 m et des réplicats ont été effectués dans la mesure du possible.

2.2.2 Détermination du taux de renouvellement de l'air

Le taux de renouvellement de l'air est déterminé selon le protocole défini dans la norme ASTM E 741-00 [13]. Cette méthode consiste à injecter un gaz traceur inerte dans la pièce et à suivre la décroissance temporelle de la concentration de celui-ci. Pour la présente étude, le gaz traceur choisi est le dioxyde de carbone (CO₂) car c'est un composé déjà présent en air intérieur, non toxique et non réactif. Un volume permettant d'amener la concentration en CO₂ dans la salle de classe à environ 10 fois la concentration de fond (généralement prise autour de 390 ppmV) est injecté au centre de la pièce à partir d'une bouteille de CO₂ à 99%. Un ventilateur est mis en fonctionnement durant toute la durée de l'injection et pour 5 minutes de plus après la fin de l'injection afin d'homogénéiser le mélange. Le suivi temporel de la concentration est réalisé au moyen d'une sonde pour une durée minimale de 2 heures (sonde Testo, réf. : 0632.1240, principe de mesure par absorption infrarouge non-dispersif). Le CO₂ étant un gaz inerte, sa variation de concentration dans la pièce suit une cinétique de d'ordre 1, uniquement attribuable au renouvellement de l'air intérieur par de l'air extérieur. On peut donc déduire une relation linéaire entre le logarithme de la concentration et le temps. La valeur du taux de renouvellement de l'air (a) est donnée directement par le coefficient directeur de la droite :

$$Ln([CO_2]_t - [CO_2]_{fond}) = -a \cdot t + Ln([CO_2]_{initial} - [CO_2]_{fond})$$

Avec $[CO_2]_{initial}$, $[CO_2]_{fond}$ et $[CO_2]_t$ respectivement les concentrations en CO_2 après injection dans la salle de classe, de fond et au temps t.

Les mesures de taux de renouvellement sont réalisées juste avant ou juste après la période de détermination des taux d'émission en formaldéhyde des matériaux. Comme expliqué au paragraphe 2.1.2, le renouvellement de l'air ne doit s'effectuer pour l'application du modèle que par de l'air en provenance de l'extérieur du bâtiment, pour cette raison les entrées d'air en provenance des pièces adjacentes sont bouchées pendant la mesure du taux de renouvellement. Cette situation n'est pas représentative de l'utilisation habituelle d'une salle de classe et conduit dans tous les cas à diminuer le taux de renouvellement de l'air de la pièce. Aussi, dans la mesure du possible, une seconde mesure du taux de renouvellement de l'air est effectuée dans des conditions où les portes et fenêtres sont juste fermées. Cette seconde mesure nous permettra d'avoir une valeur initiale plus réaliste lors de l'utilisation du modèle pour évaluer la diminution de la concentration intérieure en formaldéhyde en fonction de l'amélioration du taux de renouvellement de l'air.

2.2.3 Détermination des taux d'émission des matériaux et du total des émissions

Bien que les sources potentielles en formaldéhyde soient maintenant assez bien identifiées, il est toujours assez difficile de déterminer quelle est ou quelles sont les sources responsables d'un niveau de concentration élevé à l'intérieur d'une pièce. Il est donc nécessaire d'avoir recours à des moyens de mesure des taux d'émission de chacun des matériaux présents dans la pièce.

2.2.3.1 Sélection et identification des différentes matériaux à échantillonner

La contribution à l'émission totale des surfaces assimilables à des sources ponctuelles (papier, livres, dessins, crayons, etc.) est difficilement quantifiable car on s'attend à ce qu'elle soit très variable d'un élément à un autre mais aussi uniquement

représentative d'un moment donné. Ces éléments sont sortis de la pièce de sorte que les mesures d'émissions ne soient réalisées que pour des éléments « fixes » de la pièce c'est-à-dire sur les éléments du bâti, le mobilier et les éléments d'aménagement fixes de la pièce (tableau, tapis, etc.).

Des exemples d'éléments qui sont retirés des pièces sont présentés sur les photographies de la Figure 1.





<u>Figure 1</u>: Photographies d'environnements intérieurs. Les cercles rouges représentent les éléments qui sont retirés avant de réaliser les mesures.

Une fois l'étape de sélection des surfaces à échantillonner effectuée, chacune des surfaces restantes est métrée avec précision et les surfaces identiques sont regroupées (ex. : ensemble des tables, murs de même nature, etc.). A ce niveau, il est important de prendre en compte toutes les surfaces en contact direct avec l'air de la pièce car leurs émissions vont contribuer directement à la concentration ambiante en formaldéhyde.

2.2.3.2 Détermination du taux d'émission en formaldéhyde de chacun des matériaux

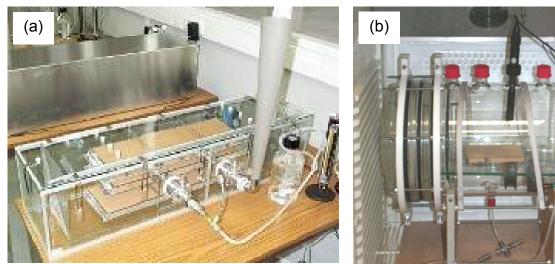
Le taux d'émission en formaldéhyde est généralement exprimé en µg.m⁻².h⁻¹. Il représente la masse de formaldéhyde émise par un matériau par unité de surface et par unité de temps. Les méthodes de référence permettant de déterminer ce taux d'émission mettent en œuvre des prélèvements actifs. D'autres méthodes, développées plus récemment, utilisent l'échantillonnage passif. Ces différentes méthodes sont présentées succinctement dans le paragraphe suivant (2.2.3.2.1). La méthode utilisée pour répondre à la présente étude est développée plus en détails dans le paragraphe 2.2.3.2.2.

2.2.3.2.1 Méthodes existantes

Trois méthodes normées sont utilisées pour la détermination de l'émission en composés organiques volatils ou semi-volatils des produits de construction ou d'aménagement.

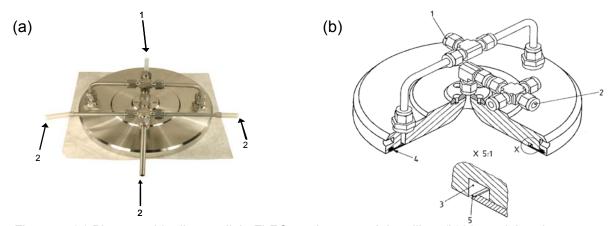
La norme NF EN ISO 16000-9 décrit la méthode basée sur l'utilisation de la chambre d'essai d'émission [14]. L'échantillon est placé dans une chambre dans des conditions normalisées (voir Figure 2), proches de celles rencontrées dans les environnements intérieurs. Des prélèvements et analyses de l'air de la chambre sont effectués afin de déterminer les taux d'émission. Dans le cas du formaldéhyde, les

prélèvements sont réalisés sur des cartouches DNPH. L'analyse au laboratoire des cartouches permet d'obtenir la valeur du taux d'émission.



<u>Figure 2</u>: Photographies de chambres d'essai d'émission. (a) Chambre rectangulaire du CSTB. (b) Chambre cylindrique du Département Chimie et Environnement de l'Ecole des Mines de Douai.

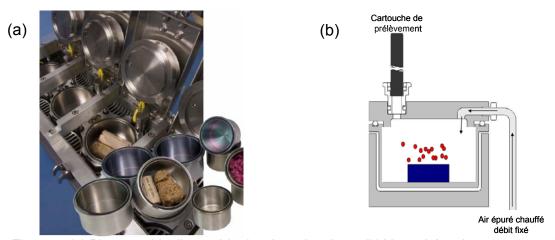
La norme NF EN ISO 16000-10 décrit la méthode basée sur l'utilisation de la cellule d'essai d'émission encore appelée cellule FLEC (Field and Laboratory Emission Cell) [15]. L'échantillon constitue le fond de l'appareillage sur lequel est placée une cellule circulaire (diamètre = 15 cm; volume = 35 mL) en inox (voir Figure 3).



<u>Figure 3</u>: (a) Photographie d'une cellule FLEC posée sur un échantillon. (b) Vue schématique en coupe d'une cellule FLEC. 1: entrée d'air, 2: sortie d'air, 3: canal, 4: joint d'étanchéité, 5: fente.

De l'air épuré est injecté à un débit fixé à la circonférence de la cellule (1). Le prélèvement de l'air s'effectue après avoir été mis au contact de l'échantillon placé dans des conditions normalisées typiquement rencontrées dans les environnements intérieurs, au centre de la cellule (2). Dans le cas du formaldéhyde, les prélèvements sont réalisés sur des cartouches DNPH. L'analyse au laboratoire des cartouches permet d'obtenir la valeur du taux d'émission.

La norme NF ISO 16000-25 décrit la méthode basée sur l'utilisation d'une microchambre [16]. L'échantillon est placé directement à l'intérieur d'une chambre en inox qui est balayé par un flux d'air épuré dans des conditions normalisées typiquement rencontrées dans les environnements intérieurs (voir Figure 4). Un prélèvement d'air est effectué à la sortie de la chambre sur une cartouche contenant un adsorbant. Ce dispositif est rarement utilisé pour les mesures de taux d'émission en aldéhydes.



<u>Figure 4</u>: (a) Photographie d'une série de micro-chambres. (b) Vue schématique en coupe d'une micro-chambre et de son principe.

Ces trois méthodes normalisées de mesure des taux d'émission des matériaux nécessite un prélèvement actif pour transférer les composés émis par les matériaux sur une cartouche d'adsorbant. Les méthodes en chambre d'essai ou en microchambre ne peuvent par ailleurs pas être utilisées directement sur le terrain. A l'opposé, la cellule FLEC peut être utilisée pour des mesures in-situ de taux d'émission à condition que les matériaux testés présentent une surface plane et lisse. Néanmoins, sa mise en œuvre sur site reste limitée à l'étude de quelques matériaux du fait de la lourdeur de l'équipement à mettre en place (générateur ou bouteille d'air épuré, régulateur de débit massique, etc.).

C'est pour ces raisons que des méthodes alternatives aux méthodes mettant en jeu un prélèvement dynamique, ont été développées. A ce titre, l'échantillonnage passif peut être envisagé. Comme aucun système de pompage n'est utilisé, le protocole est plus facile à mettre en œuvre et est mieux adapté à des mesures sur site. Pour chacune des méthodes présentées dans le Tableau 1, les composés émis par les matériaux diffusent vers un adsorbant en fonction de leur coefficient de diffusion moléculaire.

<u>Tableau 1</u>: Présentation de différentes méthodes de mesure des émissions de matériaux utilisant un échantillonnage passif.

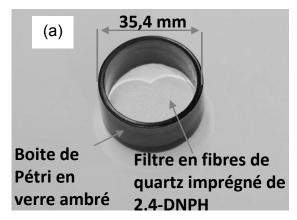
	FLEC-SPME	ADSEC	ECSMS	PECS	STE	PFS
Désignation	Field and Laboratory Emission Cell - MicroExtraction sur Phase Solide	Advanced Diffusive Sampling Emission Cell	Emission Cell for Simultaneous Multi- Sampling	Passive Emission Colorimetric Sensor	Sorptive Tape Extraction	Passive Flux Sampler
Représentation	SPME Flux d'air entrant Vannes ¼ de tour Flux d'air sortant Cettule FLEC®	Weight Specimen (Building Material) Stainless Ceil Silicone	Passive sampler Magnet Stainless container 21mm Polyethylene seal	Adhesive (non-formaldehyde) Body (PET) DLC coating Sensing sheet Water-retaining glass filter	Bande absorbante en PDMS (STE) Matériau Diffusion des COV	Boite de Pétri en verre Adsorbant en verre Diffusion des COV
Application in- situ	OUI (bureaux, amphithéâtre)	NON	OUI (école, logement)	OUI (logement)	NON	OUI (logement)
Durée de prélèvement	20 min	24 h	6 h	30 min	30 min	8 h
Limite de détection pour H₂CO	H₂CO non échantillonné	< 5 μg.m ⁻² .h ⁻¹	~1,2 µg.m ⁻² .h ⁻¹	3,1 µg.m ⁻² .h ⁻¹	H₂CO non échantillonné	2,3 μg.m ⁻² .h ⁻¹
Référence	[17]	[18]	[19]	[20]	[21]	[22]

2.2.3.2.2 Méthode utilisée pour les campagnes de terrain

Une technique adaptée de celle de Shinohara *et al.* (2007) [22] a fait l'objet d'un développement expérimental et d'une validation en laboratoire au Département Chimie et Environnement de l'Ecole des Mines de Douai au cours de la thèse de Blondel [8]. C'est cette dernière technique qui a été déployée pour les campagnes de terrain de cette étude. Les paragraphes qui suivent présentent une synthèse des ses spécifications obtenues en laboratoire et sur le terrain.

2.2.3.2.2.1 Descriptif et performances en laboratoire de la méthode

L'échantillonneur est constitué d'une boîte de Pétri de 35,4 mm de diamètre et de 20 mm de hauteur. Un filtre en fibre de verre imprégné de 500 µL d'une solution de 2,4-dinitrophénylhydrazine (DNPH) est placé au fond de la boîte. La boîte est ensuite retournée sur la surface à échantillonner ou scotcher contre celle-ci avec du ruban adhésif très faiblement émetteur (type bande de masquage). Le formaldéhyde émis par le matériau, diffuse jusqu'au filtre où il est piégé et réagi pour former l'hydrazone stable correspondant (voir Figure 5). La durée d'exposition du préleveur sur la surface à échantillonner varie entre 4 et 8 heures.



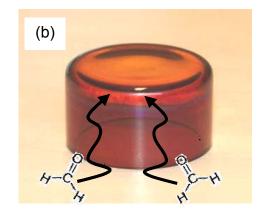
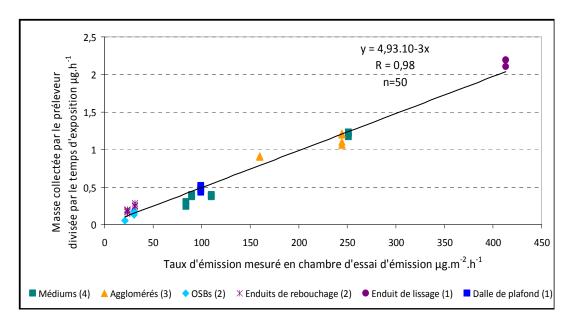


Figure 5: (a) – (b) Préleveur DNPH utilisé pour les campagnes de terrain [8].

A la fin de l'exposition, les préleveurs sont bouchés ou les filtres récupérés et mis dans des flacons en verre ambré. La conservation s'effectue à -18°C pour une durée maximale de 14 jours avant l'analyse.

Pour l'analyse, les hydrazones sont extraites avec de l'acétonitrile et séparées par chromatographie liquide haute performance couplée à un détecteur à barrettes de diode pour une quantification à 365 nm permettant de déterminer la masse de formaldéhyde présente sur un filtre. Le taux de recouvrement analytique moyen pour le formaldéhyde est de 99,4±1,1 %.

Une droite d'étalonnage de la réponse du préleveur passif (masse de formaldéhyde) en fonction du taux d'émission déterminé par la méthode de la chambre d'essai d'émission (NF EN ISO 16000-9) a été réalisée à partir de 10 matériaux différents présentant des taux d'émission entre 20 et 420 µg.m⁻².h⁻¹ (Figure 6).



<u>Figure 6</u>: Droite d'étalonnage du capteur passif pour le formaldéhyde. Masse collectée par le préleveur en fonction du taux d'émission de différents matériaux mesurés en chambre d'exposition [8].

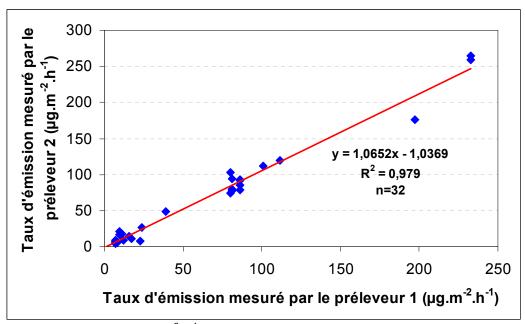
La limite de détection du formaldéhyde pour une durée d'exposition de 6 heures est de 1,2 µg.m⁻².h⁻¹. Elle correspond à trois fois l'écart-type mesuré sur les blancs (préleveurs non-exposés).

Le coefficient de variation moyen calculé sur la base de 9 séries de 6 réplicats réalisés sur des matériaux émetteurs, est égal à 7,8% (min-max = 3-15%). Ce coefficient de variation diminue lorsque le taux d'émission mesuré augmente.

La conservation des préleveurs à -18°C est possible jusqu'à au moins 21 jours avant l'échantillonnage et jusqu'à au moins 14 jours après exposition.

2.2.3.2.2.2 Répétabilité sur site des mesures de taux d'émission en formaldéhyde d'un matériau

Des mesures de répétabilité sur site ont été effectuées. Des doublons ont été réalisés sur plusieurs matériaux présents dans les 4 établissements scolaires de cette étude. Les résultats sont présentés sur la Figure 7 ci-dessous.



<u>Figure 7</u>: Taux d'émission (μg.m⁻².h⁻¹) du formaldéhyde mesurés deux fois, simultanément, sur le même matériau dans des environnements réels (établissements scolaires).

Les mesures faites en doublon sur les différents matériaux sont en bon accord : pente de la droite égale à 1,07 et coefficient de corrélation égal à 0,98. La répétabilité intra-méthode est égale à 8 µg.m⁻².h⁻¹. D'après ces résultats, il est possible d'en déduire que les mesures de formaldéhyde effectuées avec le préleveur passif dans un environnement réel sont répétables et que les taux d'émission déterminés sur la base d'un préleveur unique sont pertinents.

2.2.3.3 Détermination du total des émissions des matériaux sélectionnés et de leur contribution à la concentration intérieure

Le total des émissions (Q) des sources intérieures d'une salle de classe est déterminé en utilisant la formule ci-dessous :

$$Q = \sum_{i=1}^{Nombre} TE_i \cdot S_i$$

Avec TE_i le taux d'émission en formaldéhyde déterminé à l'aide du préleveur DNPH de la i^{ème} surface (en μ g.m⁻².h⁻¹) et S_i la surface géométrique recouverte par le matériau échantillonné (en m²).

Pour chacune des sources identifiées, il est possible de calculer son pourcentage de contribution à la concentration intérieure connaissant son taux d'émission et le taux de renouvellement d'air dans la pièce. Ce pourcentage est déduit de l'équation suivante :

$$\% [H_2CO]_{Source_i} = \frac{TE_i \cdot S_i}{V \cdot a} \times \frac{100}{[H_2CO]_{int}}$$

3 RESULTATS DES CAMPAGNES DE MESURE

Les mesures effectuées durant la première phase de la campagne pilote Ecoles et Crèches montrent que concernant le formaldéhyde, l'écart moyen entre la concentration « été » et la concentration « hiver » est de 4,0 µg.m⁻³ (min= -8,8 µg.m⁻³; max = 39,7 µg.m⁻³) [2]. Ce qui implique que pour la majorité des établissements ayant fait l'objet de mesure durant cette phase, les concentrations en formaldéhyde sont plus élevées en été qu'en hiver. Pour une recherche des sources d'émission, cette situation est plus favorable. C'est pour cela, et aussi pour facilité la logistique de fonctionnement au sein des établissements (période de congés scolaires) que l'intégralité des campagnes de terrain s'est déroulée du 21 juin au 21 juillet 2011. Les 4 établissements qui ont fait l'objet de cette campagne d'investigation de recherche des sources d'émission en formaldéhyde sont situés sur les communes d'Abbeville (80), de Mouans-Sartoux (06), de La Seyne-sur-Mer (83) et Donges (44). Une description détaillée des établissements et des résultats obtenus pour chacun d'entre eux, sont détaillés dans les paragraphes suivants.

3.1 CAMPAGNE D'ABBEVILLE

3.1.1 Site d'étude

Le premier site d'étude est une école maternelle à 2 niveaux située en zone périurbaine de la commune d'Abbeville dans la Somme en région Picardie (voir Figure 8).



Figure 8 : (a) Emplacement de l'école d'Abbeville. (b) Photographie de l'établissement.

Cette école a été construite dans les années 80. Elle compte 13 pièces pour une superficie totale de 240 m². Des travaux de rénovation ont été réalisés durant l'été 2009 pour remplacer la moquette par un sol PVC et pour mettre de la fibre de verre dans plusieurs pièces.

Durant la première phase de la campagne pilote, les mesures ont été réalisées dans une salle de classe ainsi que dans le dortoir de l'école (environ 25% du budget espace-temps de présence à l'école des enfants les plus jeunes). La concentration moyenne en formaldéhyde de l'établissement mesurée par prélèvement passif (Radiello 165) d'une durée de 4,5 jours (soit 2x2 cartouches – 2 salles – une campagne été et une campagne hiver) était de 71,7 µg.m⁻³ en 2009 et de 51,4 µg.m⁻³ en 2010. Le dortoir était la pièce dans laquelle les concentrations moyennes étaient les plus élevées (89,0 µg.m⁻³ en 2009 et 57,4 µg.m⁻³ en 2010). C'est dans cette pièce que la recherche des sources d'émission a été effectuée.

La surface au sol de la pièce investiguée est d'environ 50 m². Les murs sont recouverts de fibre de verre peinte sauf le mur « sous-pente » qui est constitué par

en Placoplatre peint. Une partie du plafond est en ciment recouvert de crépi peint et l'autre partie en « sous-pente » de l'édifice est constituée de carreaux de plâtre peint. Le sol est recouvert d'un revêtement plastique. Cette pièce comporte 2 fenêtres de type Velux (dans la partie sous-pente), 2 fenêtre hublots condamnées et une fenêtre classique. Cette salle comporte une porte d'accès vers une salle de classe, une autre vers un local sanitaire et une porte donnant directement vers l'extérieur. Le mobilier se compose de deux armoires pour du rangement d'article de papeterie et de travaux manuels, d'une étagère en bois et d'une table en bois (voir Figure 9).





<u>Figure 9</u>: (a) - (b) Photographies de l'aménagement intérieur du dortoir de l'école maternelle d'Abbeville.

Une trappe de ventilation située sous un radiateur et des baguettes situées sur les Velux assurent une aération passive de la pièce par de l'air en provenance de extérieur.

D'après le Tableau 2, le ratio des surfaces des éléments du mobilier sur celles du bâti est très faible. Dans le cas présent, le dortoir s'apparente presque à une pièce vide pour laquelle on s'attend à ce que les contributions des éléments du mobilier soient modérées.

<u>Tableau 2</u>: Superficie, volume, rapport entre la surface des éléments mobilier et de décoration et la surface du bâti et rapport entre la totalité des surfaces et le volume du dortoir de l'école d'Abbeville.

Surface au sol (m²)	Volume de la pièce (m³)	Surfaces bâties (m²)	Surface mobiliers et décoration (m²)	Rapport meubles/bâti	Rapport surfaces/volume (m ⁻¹)
50,5	141,2	214,5	60,0	0,3	1,9

3.1.2 Caractéristiques de la campagne

La campagne de mesure d'Abbeville s'est déroulée en 3 phases. La première a été réalisée le 17 juin 2011. Elle a permis de faire une pré-visite des lieux afin de se rendre compte des mesures qu'il serait nécessaire de mettre en place et a permis d'identifier les différentes surfaces sur lesquelles il faudrait réaliser une mesure à l'aide du préleveur DNPH. La deuxième phase s'est déroulée les 21 et 22 juin 2011. La première journée a été dédiée à la mesure du taux de renouvellement de l'air du dortoir et au métrage des différentes surfaces. Durant la seconde journée, les préleveurs ont été posés et les mesures de concentrations ambiantes à l'intérieur et

à l'extérieur de la pièce ont été réalisées. La dernière phase s'est déroulée le 21 juillet 2011 et a consisté à poser de nouveaux préleveurs sur les surfaces qui avaient été identifiées comme les plus émettrices ou les plus contributrices à la suite des analyses des prélèvements réalisés en phase 2.

Le Tableau 3 rassemble les données environnementales et techniques de ces 3 phases.

<u>Tableau 3</u>: Données environnementales et techniques concernant les mesures réalisées dans le dortoir de l'école d'Abbeville.

	D I 4	Pha	Phase 2	
	Phase 1	Jour 1	Jour 2	Phase 3
Date	17/06/2011	21/06/2011	22/06/2011	17/07/2011
Actions menées	- Identification des surfaces	 Métrage des surfaces Mesure du taux de renouvellement de l'air 	- Pose de préleveurs DNPH - Mesure des concentrations ambiantes (intérieur et extérieur)	- Pose de préleveurs DNPH sur les 3 surfaces les plus émettrices et les 3 surfaces les plus contributrices - Pose de préleveurs sur une même surface dans une autre pièce pour comparaison
Température extérieure moyenne (min - max) ^a	-	19,3°C (17,0 - 21,0)	16,5°C (14,0 - 18,0)	15,7°C (14,0 - 17,0)
Humidité relative extérieure moyenne (min - max) ^a	-	66,7% (56,0 - 78,0)	70,5% (60,0 - 82,0)	75,7% (68,0 - 82,0)
Température intérieure moyenne (min - max)	-	20,2°C (19,9 - 20,9)	21,4 °C (21,0 - 22,0)	19,3°C (19,2 - 19,6)
Humidité relative intérieure moyenne (min - max)	-	72,4% (70,0 - 74,5)	70,6% (62,2 - 74,3)	65,6% (63,0 - 66,4)
Nombre de surfaces identifiées	> 60	33	33	5
Nombre de mesure du taux de renouvellement de l'air	-	2	-	-
Nombre de préleveurs DNPH posés	-	-	39	29
Nombre de surfaces avec réplicats	-	-	4	5
Nombre de prélèvement actif à l'intérieur	-	-	1	-
Nombre de prélèvement actif à l'extérieur	-	-	1	-

^a Données issues des relevés météorologiques de la station d'Abbeville (Latitude : 50'13 ; Longitude : 1'83 et Hauteur : 77m).

3.1.3 Résultats et interprétations

3.1.3.1 Taux de renouvellement et concentrations ambiantes

La valeur moyenne du taux de renouvellement de l'air du dortoir est de 0,14 h⁻¹ (n=2). Les concentrations ambiantes en formaldéhyde à l'intérieur du dortoir et à l'extérieur du bâtiment sont respectivement égales à 207,9 µg.m⁻³ et 2,2 µg.m⁻³. Nous rappelons qu'à part la concentration extérieure, <u>les valeurs annoncées ici ne sont en rien représentatives d'une situation normale et habituelle d'utilisation du dortoir</u>. En effet, pour les besoins de l'étude, la porte entre le dortoir et la salle de classe attenante a été calfeutrée. Cette situation particulière a été conservée pendant plusieurs heures avant l'échantillonnage afin d'atteindre un état d'équilibre entre les émissions des matériaux et la concentration intérieure (d'où un niveau très élevée pour cette concentration).

3.1.3.2 Emissions des surfaces identifiées

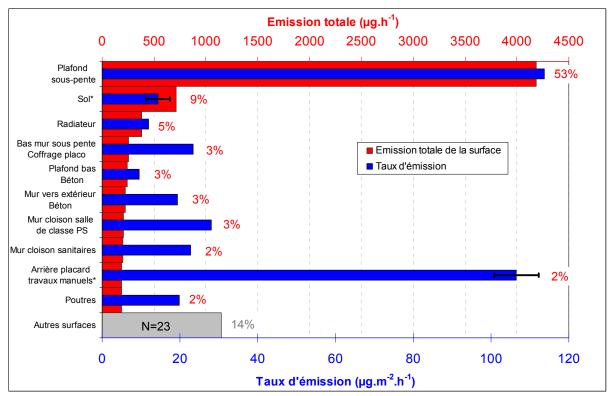
Comme le montre le Tableau 4, les taux d'émission des surfaces et matériaux échantillonnés dans le dortoir d'Abbeville sont compris entre 8 et 152 $\mu g.m^{-2}.h^{-1}$. Aucun des taux d'émission mesurés n'est en dessous de la limite de détection de 1,2 $\mu g.m^{-2}.h^{-1}$. Les taux d'émission sont en moyenne de 29 $\mu g.m^{-2}.h^{-1}$ avec une valeur médiane à 17 $\mu g.m^{-2}.h^{-1}$.

<u>Tableau 4</u>: Taux d'émission en formaldéhyde (TE_i) des différentes surfaces intérieures échantillonnées dans le dortoir d'Abbeville et émissions totales correspondantes (Q_i).

Surface échantillonnée	Taux d'émission (μg.m ⁻² .h ⁻¹)	Emission totale (µg.h ⁻¹)
Montant du volet (fenêtre hublot)	13,3	
Angle de mur	16,9	
Fenêtre à côté porte donnant sur l'extérieur	13,6	
Encadrement porte	12,8	9,2
Porte extérieur	11,3	15,0
Plinthe (côté mur extérieur)	14,6	18,0
Encadrements porte extérieur + Fenêtre (dessus radiateur et hublots)	10,5	18,1
Table	8,1	18,2
Volet fenêtre hublot	18,9	25,3
Porte des sanitaires	18,1	28,0
Poutres d'extrémité + baguette d'angle	21,1	35,0
Tapis (porte donnant sur l'extérieur)	55,6	41,1
Encadrement + sur-encadrement porte sanitaires	151,5	43,9
Coffrage vélux	22,3	47,2
Mur communiquant couloir d'entrée	21,4	52,8
Placard travaux manuels (surfaces extérieures + portes)*	14,3	62,4
Étagère jaune*	10,7	69,4
Fond arrière placard papeterie	77,4	79,0
Porte communicante avec salle de classe	28,4	91,8
Placard papeterie (surfaces extérieures + portes)	15,1	93,5
Bas de mur sous-pente	12,0	94,9
Mur cloison salle de classe (jusqu'à porte communicante)	10,3	
Poutres sous-pente (intérieur)	16,3	148,2
Poutres horizontales	19,8	•
Fond arrière placard travaux manuels*	106,5	188,5
Mur cloison sanitaires + dessus porte	22,8	·
Mur à droite porte + dessus porte	28,0	207,8
Mur communicant avec extérieur (jusqu'au niveau plafond bas)	19,4	225,6
Plafond partie basse de la pièce	9,5	,
Mur donnant sur l'extérieur (sous pente)	23,4	252,1
Radiateur	12,0	378,3
Sol*	14,3	711,6
Plafond sous-pente	113,7	4188,5

Surfaces pour lesquelles des réplicats ont été effectués. La valeur du taux d'émission est une valeur moyenne.

En se focalisant sur les dix principaux contributeurs (dix dernières lignes du Tableau 4), on peut tracer un histogramme comme celui de la Figure 10).

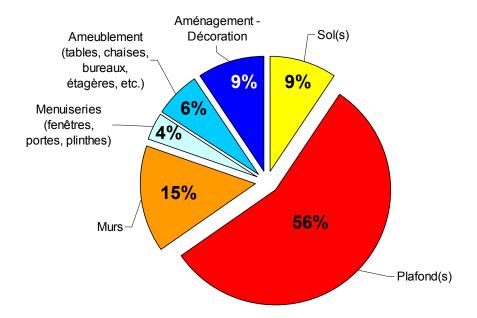


<u>Figure 10</u>: Barres rouges: Emission totale de chacune des 10 surfaces identifiées comme les plus contributrices dans le dortoir d'Abbeville, les valeurs correspondent au pourcentage des contributions relatives individuelles — Barre grise: Emission totale cumulée des 23 autres surfaces - Barres bleues: Taux d'émission associés de chacune des ces 10 surfaces. *Surfaces pour lesquelles des réplicats ont été effectués. La barre noire représente les valeurs minimale et maximale mesurées pour le taux d'émission.

Dans le cas du dortoir d'Abbeville, deux des trois sources ayant un taux d'émission supérieur à 100 μ g.m⁻².h⁻¹ contribuent pour moins de 2% au total des émissions. En effet, en raison des faibles surfaces occupées par ces matériaux ($\approx 2 \text{ m}^2$), leurs contributions à l'émission totale en formaldéhyde restent très limitées. En revanche, le plafond sous-pente du dortoir qui présente un taux d'émission supérieur à 100 μ g.m⁻².h⁻¹ et a une étendue de l'ordre de 37 m², est la source d'émission principale.

3.1.3.3 Interprétation des résultats

Les différents matériaux échantillonnés ont été réunis en six catégories : sol, murs, plafond, mobiliers (tables, chaises, armoires, etc.), menuiseries (fenêtres, portes, plinthes, etc.) et éléments de décoration ou d'aménagement (tableaux, radiateurs, livres, etc.). Les contributions relatives de chacune de ces catégories sont représentées sur la Figure 11.



<u>Figure 11</u>: Graphique représentant les contributions relatives des 6 catégories de surfaces présentes dans le dortoir d'Abbeville.

Selon la Figure 11, plus de 80% des émissions en formaldéhyde du dortoir d'Abbeville proviennent des éléments du bâti (plafond, murs et sol). Ce résultat est en accord avec le rapport entre les surfaces du mobilier et du bâti de 0,3 (Tableau 2). La concentration ambiante en formaldéhyde mesurée dans le dortoir en comparaison de la valeur obtenue par l'application du modèle d'équilibre des masses tel que présenté au paragraphe 2.1, nous indique une différence relative de 22%. Compte tenu des approximations faites et des incertitudes de mesure sur les valeurs du taux de renouvellement (a) ou de la vitesse de disparition du formaldéhyde (v), on peut conclure que cet écart n'est pas significatif et que l'échantillonnage des sources a été exhaustif (pas d'oubli de source majeure).

3.2 CAMPAGNE DE MOUANS-SARTOUX

3.2.1 Site d'étude

Le deuxième site d'étude est une école maternelle comportant 2 bâtiments distincts, l'un à niveau unique et le second à deux niveaux. Cette école est située à la périphérie de la commune de Mouans-Sartoux dans les Alpes-Maritimes en région Provence-Alpes-Côte d'Azur (voir Figure 12).





Figure 12 : (a) Emplacement de l'école de Mouans-Sartoux. (b) Photographie de l'établissement.

Cette école a été construite dans les années 80. Elle compte 10 salles de classe pour une superficie totale de 1995 m².

Durant la première phase de la campagne pilote, les mesures ont été réalisées dans deux salles de classe pour chacun des bâtiments. La concentration moyenne en formaldéhyde de l'établissement mesurée par prélèvement passif (Radiello 165) d'une durée de 4,5 jours (soit 4x2 cartouches – 4 salles – une campagne été et une campagne hiver) était de 40,0 µg.m⁻³. Les salles de classe du bâtiment à niveau unique étaient les pièces dans lesquelles les concentrations moyennes étaient les plus élevées. La concentration moyenne maximale était de 59,4 µg.m⁻³. C'est dans cette pièce que la recherche des sources d'émission a été effectuée.

La surface au sol de la pièce investiguée est d'environ 54 m². Les murs sont en parpaings peints et en Placoplatre peint. Le plafond est recouvert de panneaux acoustiques en bois aggloméré. Le sol est recouvert d'un revêtement plastique. Cette pièce comporte 2 fenêtres oscillo-battantes et une grande baie vitrée avec des ouvrants sur la partie haute. Cette salle comporte une porte d'accès vers le hall commun du bâtiment, une autre vers un local de stockage de matériel et deux portes donnant sur la cour de récréation. Le mobilier se compose de tables et chaises pour les enfants, de bureaux pour le personnel, d'une armoire pour du rangement du matériel des professeurs et de plusieurs étagères « faites maison » (voir Figure 13).





<u>Figure 13</u>: (a) - (b) Photographies de l'aménagement intérieur de la salle de classe de l'école maternelle de Mouans-Sartoux.

Des baguettes situées au dessus des fenêtres assurent une aération passive de la pièce par de l'air en provenance de extérieur.

D'après le Tableau 5, le ratio des surfaces des éléments du mobilier sur celles du bâti est égal à 0,5. Dans le cas présent, on s'attend à ce que les contributions des éléments du mobilier soient moyennes.

<u>Tableau 5</u>: Superficie, volume, rapport entre la surface des éléments mobilier et de décoration et la surface du bâti et rapport entre la totalité des surfaces et le volume de la salle de classe de l'école de Mouans-Sartoux.

Surface au sol (m²)	Volume de la pièce (m³)	Surfaces bâties (m²)	Surface mobiliers et décoration (m²)	Rapport meubles/bâti	Rapport surfaces/volume (m ⁻¹)
53,6	202,7	220,4	120,5	0,5	1,7

3.2.2 Caractéristiques de la campagne

La campagne de mesure de Mouans-Sartoux s'est déroulée les 28 et 29 juin 2011. La matinée de la première journée a été dédiée à l'identification des différentes surfaces et à leurs métrages. L'après-midi, les préleveurs DNPH ont été posés et les mesures de concentrations ambiantes à l'intérieur et à l'extérieur de la pièce ont été réalisées. Durant la matinée de la seconde journée, la mesure du taux de renouvellement de l'air de la salle de classe a été effectuée. Le Tableau 6 rassemble les données environnementales de cette campagne.

<u>Tableau 6</u>: Données environnementales et techniques concernant les mesures réalisées dans la salle de classe de l'école de Mouans-Sartoux.

	Jour 1	Jour 2	
Date	28/06/2011	29/06/2011	
Actions menées	 Identification des surfaces Métrage des surfaces Pose de préleveurs DNPH Mesure des concentrations ambiantes (intérieur et extérieur) 	- Mesure du taux de renouvellement de l'air	
Température extérieure moyenne (min - max) ^a	26,2°C (21,0 - 32,0)	20,5°C (17,0 - 27,0)	
Humidité relative extérieure moyenne (min - max) ^a	62,0% (38,0 - 83,0)	72,8% (58,0 - 83,0)	
Température intérieure moyenne (min - max)	29,8°C (28,8 - 31,2)	27,8°C (27,3 - 29,0)	
Humidité relative intérieure moyenne (min - max)	63,1% (60,1 - 66,2)	60,3% (58,9 - 61,7)	
Nombre de surfaces identifiées	> 60	-	
Nombre de mesure du taux de renouvellement de l'air	-	1	
Nombre de préleveurs DNPH posés	46	-	
Nombre de surfaces avec réplicats	5	-	
Nombre de prélèvement actif à l'intérieur	3	-	
Nombre de prélèvement actif à l'extérieur	2	-	

^a Données issues des relevés météorologiques de la station de Cannes à environ 9km de Mouans-Sartoux (Latitude : 43'53 ; Longitude : 6'95 et Hauteur : 8m).

3.2.3 Résultats

3.2.3.1 Taux de renouvellement et concentrations ambiantes

La valeur du taux de renouvellement de l'air de la salle de classe est de 0,22 h⁻¹. Les concentrations ambiantes moyennes en formaldéhyde à l'intérieur du dortoir et à l'extérieur du bâtiment sont respectivement égales à 349,9 µg.m⁻³ (n=3; CV=5%) et 6,7 µg.m⁻³ (n=2). Nous rappelons qu'à part la concentration extérieure, les valeurs annoncées ici ne sont en rien représentatives d'une situation normale et habituelle d'utilisation de la salle de classe. En effet, pour les besoins de l'étude, la porte entre la salle de classe et le hall et la porte entre la salle de classe et le local de stockage ont été calfeutrées. Cette situation particulière a été conservée pendant plusieurs heures avant l'échantillonnage afin d'atteindre un état d'équilibre entre les émissions des matériaux et la concentration intérieure (d'où un niveau très élevée pour cette concentration).

3.2.3.2 Emissions des surfaces identifiées

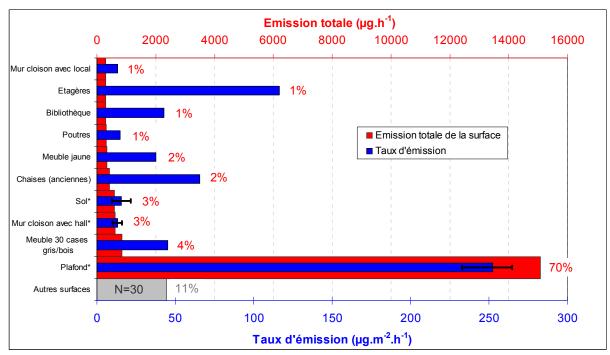
Comme le montre le Tableau 7, les taux d'émission des surfaces et matériaux échantillonnés dans la salle de classe de Mouans-Sartoux sont compris entre 8 et 252 $\mu g.m^{-2}.h^{-1}$. Aucun des taux d'émission mesurés n'est en dessous de la limite de détection de 1,2 $\mu g.m^{-2}.h^{-1}$. Les taux d'émission sont en moyenne de 39 $\mu g.m^{-2}.h^{-1}$ avec une valeur médiane à 23 $\mu g.m^{-2}.h^{-1}$.

<u>Tableau 7</u>: Taux d'émission en formaldéhyde (TE_i) des différentes surfaces intérieures échantillonnées dans la salle de classe de Mouans-Sartoux et émissions totales correspondantes (Q_i).

Emplacement - Désignation	Taux d'émission (μg.m ⁻² .h ⁻¹)	Emission totale (µg.h ⁻¹)
Dogwottes dieffish one		
Baguettes d'affichage	10,2	1,7
Fenêtres	7,6	2,5
Encadrement des fenêtres	12,9	8,9
Encadrement de porte d'entrée	48,8	9,8
Encadrement de porte local	38,9	10,9
Plinthe Tableau affichage liège	11,2 38,5	17,0
Tables blanche et rouge	30,5	19,7
U U		22,9
Dessus tables jaune simples	17,0	23,7
Tables jaune	23,8	25,0
Tableau noir	14,1	27,4
Fauteuil	16,0	51,1
Pilliers béton	17,0	55,4
Dessus tables jaune doubles	22,0	61,2
Porte d'entée (hall) + Porte local	17,2	63,0
Dessus de la table verte + table jaune	23,4	67,3
Appuis de fenêtres	54,0	67,5
Bancs verts	41,8	77,8
Plaque dessus de fenêtres	40,8	79,1
Surface extérieur du placard (livres+matériel de l'enseignant)	13,1	84,1
Portes donnant sur l'extérieur + dessus de porte (trappes de	21,9	99,7
ventilation)	21,0	
Pieds du placard blanc (surface n°24)	135,1	104,0
Bancs	71,7	124,8
Placard blanc	13,6	129,1
Tapis route	22,2	142,1
Encadrement de fenêtres	61,3	152,0
Fond du meuble 30 cases	41,9	188,1
Chaises (récentes) + dessous tables + pieds tables et chaises	14,4	211,2
Meuble 9 cases gris/jaune	23,0	221,2
Pieds de table + petit meuble	53,6	222,9
Mur cloison avec local*	13,4	297,0
Etagères	116,4	298,0
Bibliothèque	42,6	301,6
Poutres*	15,0	
Meuble jaune	37,6	
Chaises (anciennes)	65,7	425,1
Sol*	15,6	597,2
Mur cloison avec hall*	13,0	608,8
Meuble 30 cases gris/bois	45,3	847,1
Plafond*	252,3	15089,8
	202,0	10000,0

*Surfaces pour lesquelles des réplicats ont été effectués. La valeur du taux d'émission est une valeur moyenne.

En se focalisant sur les dix principaux contributeurs (dix dernières lignes du Tableau 7), on peut tracer un histogramme comme celui de la Figure 14).

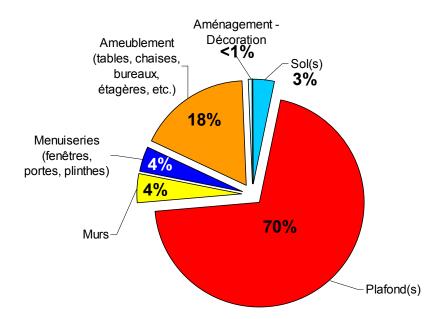


<u>Figure 14</u>: Barres rouges: Emission totale de chacune des 10 surfaces identifiées comme les plus contributrices dans la salle de classe de Mouans-Sartoux, les valeurs correspondent au pourcentage des contributions relatives individuelles — Barre grise: Emission totale cumulée des 30 autres surfaces - Barres bleues: Taux d'émission associés de chacune des ces 10 surfaces. *Surfaces pour lesquelles des réplicats ont été effectués. La barre noire représente les valeurs minimale et maximale mesurées pour le taux d'émission.

Dans le cas de la salle de classe de Mouans-Sartoux, deux des trois sources ayant un taux d'émission supérieur à 100 μg.m⁻².h⁻¹ contribuent pour moins de 2% au total des émissions. En effet, en raison des faibles surfaces occupées par ces matériaux (≈ 3 m²), leurs contributions à l'émission totale en formaldéhyde restent très limitées. En revanche, le plafond qui présente un taux d'émission de l'ordre de 250 μg.m⁻².h⁻¹ et a une étendue de l'ordre de 58 m², est la source d'émission principale.

3.2.3.3 Interprétation des résultats

Les différents matériaux échantillonnés ont été réunis en six catégories : sol, murs, plafond, mobiliers (tables, chaises, armoires, etc.), menuiseries (fenêtres, portes, plinthes, etc.) et éléments de décoration ou d'aménagement (tableaux, radiateurs, livres, etc.). Les contributions relatives de chacune de ces catégories sont représentées sur la Figure 15.



<u>Figure 15</u>: Graphique représentant les contributions relatives des 6 catégories de surfaces présentes dans la salle de classe de Mouans-Sartoux.

Selon la Figure 15, plus de 80% des émissions en formaldéhyde de la salle de classe de Mouans-Sartoux proviennent des éléments du bâti (plafond, murs et sol). Ce résultat est en désaccord avec le rapport entre les surfaces du mobilier et du bâti de 0,5 (Tableau 5).

La concentration ambiante en formaldéhyde mesurée dans la salle de classe en comparaison de la valeur obtenue par l'application du modèle d'équilibre des masses tel que présenté au paragraphe 2.1, nous indique une différence relative de 29%. Compte tenu des approximations faites et des incertitudes de mesure sur les valeurs du taux de renouvellement (a) ou de la vitesse de disparition du formaldéhyde (v), on peut conclure que cet écart n'est pas significatif et que l'échantillonnage des sources a été exhaustif (pas d'oubli de source majeure).

3.3 CAMPAGNE DE LA SEYNE-SUR-MER

3.3.1 Site d'étude

Le troisième site d'étude est une école élémentaire comportant 2 bâtiments distincts, l'un à niveau unique et le second à deux niveaux. Cette école est située à la périphérie de la commune de La Seyne-sur-Mer dans le Var en région Provence-Alpes-Côte d'Azur (voir Figure 16).

37





Figure 16: (a) Emplacement de l'école de La Seyne-sur-Mer. (b) Photographie de l'établissement.

Cette école a été construite dans les années 70 et a fait l'objet de rénovation importante en 2006-2007. Elle compte 14 salles de classe pour une superficie totale approximative de 2800 m².

Durant la première phase de la campagne pilote, les mesures ont été réalisées dans 8 salles de classe pour chacun des bâtiments. La concentration moyenne en formaldéhyde de l'établissement mesurée par prélèvement passif (Radiello 165) d'une durée de 4,5 jours (soit 8x2 cartouches – 8 salles – une campagne été et une campagne hiver) était de 45,9 µg.m⁻³. Les salles du bâtiment à deux niveaux étaient les pièces dans lesquelles les concentrations moyennes étaient les plus élevées. La concentration moyenne maximale était de 57,2 µg.m⁻³. C'est dans cette pièce que la recherche des sources d'émission a été effectuée.

La surface au sol de la pièce investiguée est d'environ 60 m². Les murs et le plafond sont en ciment recouvert de crépi peint. Le sol est recouvert d'un revêtement plastique. Cette pièce comporte 5 fenêtres coulissantes à double-vitrage. Cette salle comporte une porte d'accès vers le couloir du bâtiment et une seconde porte communicante avec une autre salle de classe. Le mobilier se compose de tables et chaises pour les enfants, d'un bureau pour l'enseignant, de trois armoires pour le rangement des livres et cahiers et d'une étagère « faite maison » (voir Figure 17). Il est important de noter que dans cette salle de classe, les mesures ayant été réalisées en période scolaire, les cahiers, livres et matériel de bureau sont restés dans la pièce pour les mesures.





<u>Figure 17</u>: (a) - (b) Photographies de l'aménagement intérieur de la salle de classe de l'école élémentaire de La Seyne-sur-Mer.

Des baguettes situées au dessus des fenêtres assurent une aération passive de la pièce par de l'air en provenance de extérieur.

D'après le Tableau 8, le ratio des surfaces des éléments du mobilier sur celles du bâti est égal à 0,5. Dans le cas présent, on s'attend à ce que les contributions des éléments du mobilier soient moyennes.

<u>Tableau 8</u>: Superficie, volume, rapport entre la surface des éléments mobilier et de décoration et la surface du bâti et rapport entre la totalité des surfaces et le volume de la salle de classe de l'école de La Seyne-sur-Mer.

Surface au sol (m²)	Volume de la pièce (m³)	Surfaces bâties (m²)	Surface mobiliers et décoration (m²)	Rapport meubles/bâti	Rapport surfaces/volume (m ⁻¹)
60,4	187,7	231,2	106,0	0,5	1,8

3.3.2 Caractéristiques de la campagne

La campagne de mesure de La Seyne-sur-Mer s'est déroulée les 29 et 30 juin 2011. L'après-midi de la première journée a été dédiée à l'identification des différentes surfaces, à leurs métrages et à la mesure du taux de renouvellement de l'air de la salle de classe. Durant la seconde journée, les préleveurs DNPH ont été posés et les mesures de concentrations ambiantes à l'intérieur et à l'extérieur de la pièce ont été réalisées. Le Tableau 9 rassemble les données environnementales et techniques de cette campagne.

<u>Tableau 9</u>: Données environnementales et techniques concernant les mesures réalisées dans la salle de classe de l'école de La Seyne-sur-Mer.

	Jour 1	Jour 2	
Date	29/06/2011	30/06/2011	
Actions menées	 Identification des surfaces Métrage des surfaces Mesure du taux de renouvellement de l'air 	 Pose de préleveurs DNPH Mesure des concentrations ambiantes (intérieur et extérieur) 	
Température extérieure	27,8°C (24,0 - 32,0)	31,8°C (30,0 - 33,0)	
moyenne (min - max) ^a	27,8 C (24,0 - 32,0)	31,8 € (30,0 - 33,0)	
Humidité relative extérieure	56,4% (34,0 - 74,0)	30,5% (26,0 - 36,0)	
moyenne (min - max) ^a	00,470 (04,0 14,0)	00,070 (20,0 00,0)	
Température intérieure	27,9°C (27,4 - 28,4)	28,0°C (27,7 - 28,4)	
moyenne (min - max)		20,0 0 (2.,1 20,1)	
Humidité relative intérieure moyenne (min - max)	61,6% (59,4 - 64,2)	54,4% (51,4 - 58,6)	
Nombre de surfaces identifiées	> 60	-	
Nombre de mesure du taux de renouvellement de l'air	1	-	
Nombre de préleveurs DNPH posés	-	49	
Nombre de surfaces avec réplicats	-	5	
Nombre de prélèvement actif à l'intérieur	-	2	
Nombre de prélèvement actif à l'extérieur	-	1	

^a Données issues des relevés météorologiques de la station de Hyères à environ 30km de La Seynesur-Mer (Latitude : 43'10 ; Longitude : 6'15 et Hauteur : 4m).

3.3.3 Résultats

3.3.3.1 Taux de renouvellement et concentrations ambiantes

La valeur du taux de renouvellement de l'air de la salle de classe est de 0,19 h⁻¹. Les concentrations ambiantes moyennes en formaldéhyde à l'intérieur du dortoir et à l'extérieur du bâtiment sont respectivement égales à 155,9 µg.m⁻³ (n=2) et 7,1 µg.m⁻³. Nous rappelons qu'à part la concentration extérieure, les valeurs annoncées ici ne sont en rien représentatives d'une situation normale et habituelle d'utilisation de la salle de classe. En effet, pour les besoins de l'étude, la porte entre la salle de classe et le couloir et la porte entre les deux salles de classes contigües ont été calfeutrées. Cette situation particulière a été conservée pendant plusieurs heures avant l'échantillonnage afin d'atteindre un état d'équilibre entre les émissions des matériaux et la concentration intérieure (d'où un niveau très élevée pour cette concentration).

3.3.3.2 Emissions des surfaces identifiées

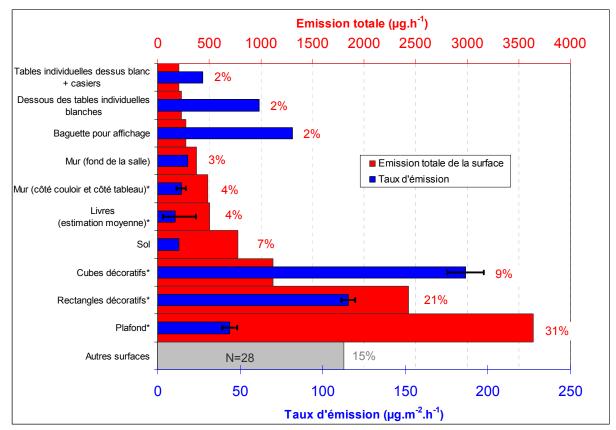
Comme le montre le Tableau 10, les taux d'émission des surfaces et matériaux échantillonnés dans la salle de classe de La Seyne-sur-Mer sont compris entre 1 et 187 $\mu g.m^{-2}.h^{-1}$. Le taux d'émission des livres de lecture recouvert de plastique transparent est juste en dessous de la limite de détection (LD) de 1,2 $\mu g.m^{-2}.h^{-1}$, pour le calcul de l'émission totale de cette surface on a utilisé un taux d'émission égal à la LD. Les taux d'émission sont en moyenne de 34 $\mu g.m^{-2}.h^{-1}$ avec une valeur médiane à 19 $\mu g.m^{-2}.h^{-1}$.

<u>Tableau 10</u>: Taux d'émission en formaldéhyde (TE_i) des différentes surfaces intérieures échantillonnées dans la salle de classe de La Seyne-sur-Mer et émissions totales correspondantes

(Q _i). Emplacement - Désignation	Taux d'émission (μg.m ⁻² .h ⁻¹)	Emission totale (μg.h ⁻¹)
Livres de lecture recouvert plastique (nombre=23)	1,2	1,6
Chaise noire	7,1	5,3
Baguette pour affichage dessous tableau	76,8	9,2
Encadrement de portes marron (nombre=2)	24,5	15,2
Tours de fenêtres (nombre=5)	11,2	20,7
Encadrement de fenêtres (nombre=5)	15,1	29,3
Encadrement tableau mobile	11,8	31,5
Grandes tables marron (nombre=2)	13,4	32,1
Plinthes	24,1	34,2
Tables individuelles dessus marron + casiers (nombre=4)	16,4	35,0
Tableau noir mobile	19,4	42,3
Coffrage volet roulant	10,3	44,3
Étagères jaune	13,2	46,0
Dessus bureau maître + tiroirs	19,8	57,7
Tables doubles dessus marron (nombre=5)	22,8	61,5
Sièges des tables 25 (nombre=10)	24,1	69,5
Porte d'entrée et communication autre salle marron (nombre=2)	18,9	71,5
Tableau noir fixe	12,7	76,3
Placard beige contenant des livres	13,0	80,0
Placard marron contenant des cahiers	12,1	84,5
Chaises à pieds marron (nombre=8)	41,7	90,2
Fond du placard 8	45,2	93,7
Dessous des tables individuelles marron (nombre=4)	92,5	99,9
Sièges des tables 22 et 24 (nombre=18)	24,7	108,0
Dessous des grandes tables doubles (nombre=5)	45,0	121,5
Placard bas marron contenant des livres	19,1	122,5
Mur (côté extérieur)	13,7	136,7
Dessous des grandes tables marron (nombre=2)	78,3	188,0
Tables individuelles dessus blanc + casiers (nombre=14)	27,3	204,4
Dessous des tables individuelles blanches (nombre=14)	61,6	233,0
Baguette pour affichage	81,6	273,6
Mur (fond de la salle)	18,3	379,1
Mur (côté couloir et côté tableau)*	14,3	485,7
Livres moyen	10,5	503,0
Sol	12,9	779,0
Cubes décoratifs (nombre=16)*	186,6	1119,3
Rectangles décoratifs (nombre=13)*	115,6	2434,5
Plafond*	43,7	3643,8

^{*} Surfaces pour lesquelles des réplicats ont été effectués. La valeur du taux d'émission est une valeur moyenne.

En se focalisant sur les dix principaux contributeurs (dix dernières lignes du Tableau 7), on peut tracer un histogramme comme celui de la Figure 18).

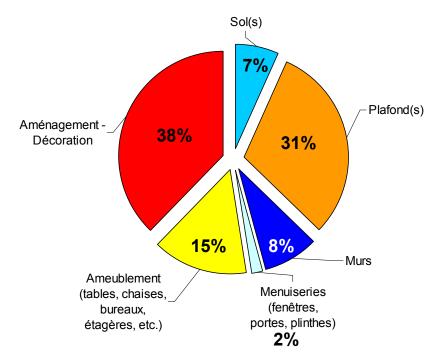


<u>Figure 18</u>: Barres rouges: Emission totale de chacune des 10 surfaces identifiées comme les plus contributrices dans la salle de classe de La Seyne-sur-Mer, les valeurs correspondent au pourcentage des contributions relatives individuelles — Barre grise: Emission totale cumulée des 28 autres surfaces - Barres bleues: Taux d'émission associés de chacune des ces 10 surfaces. *Surfaces pour lesquelles des réplicats ont été effectués. La barre noire représente les valeurs minimale et maximale mesurées pour le taux d'émission.

Dans le cas de la salle de classe de La Seyne-sur-Mer, les deux sources qui ont un taux d'émission supérieur à 100 µg.m⁻².h⁻¹ contribuent pour 9 et 21% (soit 30%) au total des émissions pourtant ces surfaces représentent moins de 10% du total des surfaces. En revanche, le plafond qui présente un taux d'émission de l'ordre de 44 µg.m⁻².h⁻¹ et a une étendue de l'ordre de 83 m², est la source d'émission principale.

3.3.3.3 Interprétation des résultats

Les différents matériaux échantillonnés ont été réunis en six catégories : sol, murs, plafond, mobiliers (tables, chaises, armoires, etc.), menuiseries (fenêtres, portes, plinthes, etc.) et éléments de décoration ou d'aménagement (tableaux, radiateurs, livres, etc.). Les contributions relatives de chacune de ces catégories sont représentées sur la Figure 19.



<u>Figure 19</u>: Graphique représentant les contributions relatives des 6 catégories de surfaces présentes dans la salle de classe de La Seyne-sur-Mer.

Selon la Figure 19, moins de 50% des émissions en formaldéhyde de la salle de classe de La Seyne-sur-Mer proviennent des éléments du bâti (plafond, murs et sol). Ce résultat est en accord avec le rapport entre les surfaces du mobilier et du bâti de 0,5 (Tableau 8).

La concentration ambiante en formaldéhyde mesurée dans la salle de classe en comparaison de la valeur obtenue par l'application du modèle d'équilibre des masses tel que présenté au paragraphe 2.1, nous indique une différence relative de -8%. Compte tenu des approximations faites et des incertitudes de mesure sur les valeurs du taux de renouvellement (a) ou de la vitesse de disparition du formaldéhyde (v), on peut conclure que cet écart n'est pas significatif et que l'échantillonnage des sources a été exhaustif (pas d'oubli de source majeure).

3.4 CAMPAGNE DE DONGES

3.4.1 Site d'étude

Le quatrième site d'étude est une école maternelle comportant 2 bâtiments distincts à niveau unique. L'un des bâtiments est un bâtiment préfabriqué. Cette école est située au centre ville de la commune de Donges en Loire-Atlantique dans la région Pays de la Loire. Cette école est également à moins de 2 km de la seconde raffinerie de France (voir Figure 20).



Figure 20 : (a) Emplacement de l'école de Donges. (b) Photographie de l'établissement.

Le premier bâtiment de l'école date de 1958 et le bâtiment préfabriqué de 1982. Elle compte 9 salles de classe et de salles de motricité pour une superficie totale approximative de 1500 m².

Durant la première phase de la campagne pilote, les mesures ont été réalisées dans une salle de classe pour chacun des bâtiments. La concentration moyenne en formaldéhyde de l'établissement mesurée par prélèvement passif (Radiello 165) d'une durée de 4,5 jours (soit 2x2 cartouches – 2 salles – une campagne été et une campagne hiver) était de 37,4 µg.m⁻³. La classe du bâtiment préfabriqué était la pièce dans laquelle la concentration moyenne était la plus élevée et égale à 42,6 µg.m⁻³. C'est dans cette pièce que la recherche des sources d'émission a été effectuée.

La surface au sol de la pièce investiguée est d'environ 57 m². Les murs sont en Placoplatre peint. Le plafond est recouvert de dalles de plâtre. Le sol est recouvert par deux revêtements plastiques différents. Cette pièce comporte 8 fenêtres basculantes à simple vitrage. Cette salle comporte une porte d'accès vers un local de stockage de matériel pour les activités scolaires et manuelles et une seconde porte donnant directement sur l'extérieur. Le mobilier se compose de tables et chaises pour les enfants, de deux bureaux pour les enseignants, de plusieurs placards et étagères « faite maison » (voir Figure 21). Il est important de noter qu'une partie du mobilier de cette salle de classe avait été retirée avant notre intervention étant donné qu'à la rentrée 2011, la salle sera transformée en dortoir.





<u>Figure 21</u>: (a) - (b) Photographies de l'aménagement intérieur de la salle de classe de l'école maternelle de Donges.

Aucune grille d'aération n'est présente dans la pièce, l'aération passive n'est assurée que par l'air passant sous les portes ou les interstices des fenêtres.

D'après le Tableau 11, le ratio des surfaces des éléments du mobilier sur celles du bâti est égal à 0,6. Dans le cas présent, on s'attend à ce que les contributions des éléments du mobilier soient relativement importantes.

<u>Tableau 11</u>: Superficie, volume, rapport entre la surface des éléments mobilier et de décoration et la surface du bâti et rapport entre la totalité des surfaces et le volume de la salle de classe de l'école de Donges.

Surface au sol (m²)	Volume de la pièce (m³)	Surfaces bâties (m²)	Surface mobiliers et décoration (m²)	Rapport meubles/bâti	Rapport surfaces/volume (m ⁻¹)
56,8	147,6	186,7	120,4	0,6	2,1

3.4.2 Caractéristiques de la campagne

La campagne de mesure de Donges s'est déroulée les 5 et 6 juillet 2011. La première journée a été dédiée à l'identification des différentes surfaces, à leurs métrages et à la mesure du taux de renouvellement de l'air de la salle de classe. Durant la seconde journée, les préleveurs DNPH ont été posés et les mesures de concentrations ambiantes à l'intérieur et à l'extérieur de la pièce ont été réalisées. Durant cette campagne, des membres du personnel de l'Association Agrée de Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA) d'Air Pays de la Loire (AirPL), ont été initiés à la méthodologie de mesure afin d'appliquer un protocole réduit dans d'autres établissements scolaires de la région. Le Tableau 12 rassemble les données environnementales et techniques de cette campagne.

<u>Tableau 12</u> : Données environnementales et techniques concernant les mesures réalisées dans la salle de classe de l'école de Donges.

	Jour 1	Jour 2	
Date	05/07/2011	06/07/2011	
Actions menées	 Identification des surfaces Métrage des surfaces Mesure du taux de renouvellement de l'air Présentation de la méthodologie à Air Pays de la Loire 	 Pose de préleveurs DNPH Mesure des concentrations ambiantes (intérieur et extérieur) Accompagnement d'Air Pays de la Loire sur la mise en place d'une méthodologie simplifiée dans une autre salle de classe 	
Température extérieure moyenne (min - max) ^a	18,2°C (17,0 - 19,0)	18,6°C (16,0 - 20,0)	
Humidité relative extérieure moyenne (min - max) ^a	88,3% (83,0 - 94,0)	62,4% (53,0 - 82,0)	
Température intérieure moyenne (min - max)	24,8°C (23,2 - 25,8)	24,2°C (22,3 - 25,8)	
Humidité relative intérieure moyenne (min - max)	58,3% (49,5 - 69,8)	57,5% (54,1 - 62,8)	
Nombre de surfaces identifiées	> 60	-	
Nombre de mesure du taux de renouvellement de l'air	2	-	
Nombre de préleveurs DNPH posés	-	47	
Nombre de surfaces avec réplicats	-	1	
Nombre de prélèvement actif à l'intérieur	-	2	
Nombre de prélèvement actif à l'extérieur	-	1	

^a Données issues des relevés météorologiques de la station de Saint Nazaire-Monto à environ 11km de Donges (Latitude : 47'31 ; Longitude : -2'16 et Hauteur : 3m).

Cette campagne a été marquée par un dépassement du seuil d'information de la population pour le SO₂. En effet, la station d'Air Pays de la Loire du Plessis a enregistré des concentrations supérieures à 200 µg.m⁻³ entre 19h30 et 21h45. Le pic de pollution s'est produit vers 20h45, la valeur atteinte était alors d'environ 490 µg.m⁻³. La direction du vent durant cette période était d'ouest-sud-ouest (environ 250°/N) avec une vitesse moyenne d'environ 4,4 m/s. La station et l'école se sont ainsi trouvées juste sous les vents de la raffinerie.

3.4.3 Résultats

3.4.3.1 Taux de renouvellement et concentrations ambiantes

La valeur du taux de renouvellement de l'air de la salle de classe est de 0,12 h⁻¹. Les concentrations ambiantes moyennes en formaldéhyde à l'intérieur du dortoir et à l'extérieur du bâtiment sont respectivement égales à 63,9 µg.m⁻³ (n=2) et 1,4 µg.m⁻³. Nous rappelons qu'à part la concentration extérieure, <u>les valeurs annoncées ici ne sont en rien représentatives d'une situation normale et habituelle d'utilisation de la salle de classe</u>. En effet, pour les besoins de l'étude, la porte entre la salle de classe et le hall et la porte entre la salle de classe et le local de stockage ont été calfeutrées. Cette situation particulière a été conservée pendant plusieurs heures avant l'échantillonnage afin d'atteindre un état d'équilibre entre les émissions des matériaux et la concentration intérieure (d'où un niveau très élevée pour cette concentration). A titre d'exemple, une mesure du taux de renouvellement de l'air a

été réalisée en maintenant uniquement les ouvertures fermées (mais pas calfeutrées). De cette façon, le taux de renouvellement de l'air dans la pièce est multiplié par 3 (a'=0,37 h⁻¹).

3.4.3.2 Emissions des surfaces identifiées

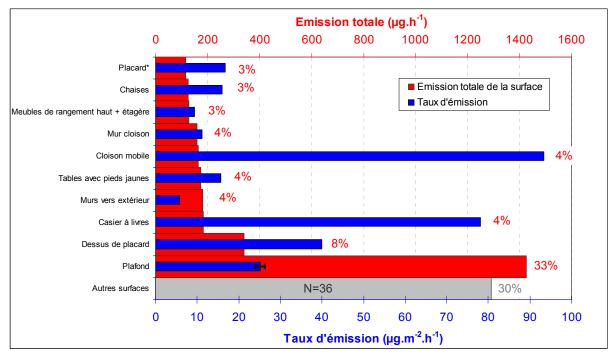
Comme le montre le Tableau 13, les taux d'émission des surfaces et matériaux échantillonnés dans la salle de classe de Donges sont compris entre 0 et 93 µg.m⁻².h⁻¹. Le taux d'émission de l'intérieur du meuble à casier est en dessous de la limite de détection (LD) de 1,2 µg.m⁻².h⁻¹, pour le calcul de l'émission totale de cette surface on a utilisé un taux d'émission égal à la LD. Les taux d'émission sont en moyenne de 16 µg.m⁻².h⁻¹ avec une valeur médiane à 11 µg.m⁻².h⁻¹.

<u>Tableau 13</u>: Taux d'émission en formaldéhyde (TE_i) des différentes surfaces intérieures échantillonnées dans la salle de classe de Donges et émissions totales correspondantes (Q_i).

Emplacement - Désignation	Taux d'émission (µg.m ⁻² .h ⁻¹)	Emission totale (μg.h ⁻¹)
Tableau Veleda	2,1	1,4
Sur-encadrement de fenêtres en bois	5,3	
Encadrement de la porte extérieur	10,4	
Meuble métallique	6,0	
Extérieur de placard	8,7	
Bancs blancs	9,9	
Tableau noir - 2	6,8	
Porte extérieur	6,3	
Tableau noir	5,8	
Porte d'entrée (communicante avec local inter-classes)	6,3	
Banquette	3,2	
Encadrement de fenêtres	3,9	
Encadrement tableau Veleda	12,4	
Etagère en contreplaqué peint	16,8	
Extérieur meuble à casiers	9,3	·
Plinthes	10,2	
Etagère en contreplaqué vernis	21,1	·
Tables à pieds multicolores	19,8	,
Intérieur du placard orange	11,1	
Fond de l'étagère	13,2	
Encadrement de cloison mobile	25,8	
Tapis "route"	5,5	
Bureau du maître	14,0	
Meuble étagère	10,4	
Intérieur meuble à casier	0,0	
Encadrement haut de la pièce + Montants des fenètres	11,8	53,0
Sol - Linoléum	6,3	
Etagères bleue et jaune	18,7	
Extérieur du meuble à tiroirs orange	29,3	
Casiers orange (nombre=2)	20,2	
Etagères en bois peint (beige)	13,7	
Chevalet à peinture	12,5	
Extérieur du meuble beige	28,1	
Table rectangulaire	28,6	•
Bureau orange	14,8	
Sol - Dalles	2,6	,
Placard	16,8	
Chaises	16,0	
Meubles de rangement haut + étagère	9,3	
Mur cloison	11,2	
Cloison mobile	93,3	
Tables avec pieds jaunes	15,8	,
Murs vers extérieur	5,7	
Casier à livres	78,1	
Dessus de placard	39,9	
Plafond*	25,1	1427,4
urface pour laquelle des réplicats ont été effectués. La va		•

^{*} Surface pour laquelle des réplicats ont été effectués. La valeur du taux d'émission est une valeur moyenne.

En se focalisant sur les dix principaux contributeurs (dix dernières lignes du Tableau 7), on peut tracer un histogramme comme celui de la Figure 22).

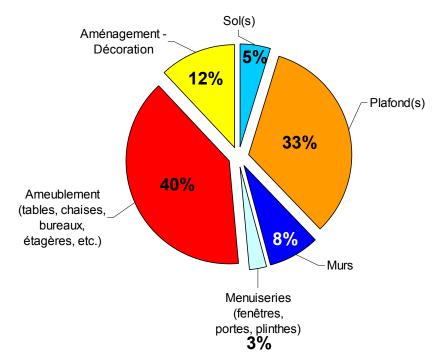


<u>Figure 22</u>: Barres rouges: Emission totale de chacune des 10 surfaces identifiées comme les plus contributrices dans la salle de classe de Donges, les valeurs correspondent au pourcentage des contributions relatives individuelles — Barre grise: Emission totale cumulée des 36 autres surfaces - Barres bleues: Taux d'émission associés de chacune des ces 10 surfaces. Surface pour laquelle des réplicats ont été effectués. La barre noire représente les valeurs minimale et maximale mesurées pour le taux d'émission.

Dans le cas de la salle de classe de Donges, aucune source n'a un taux d'émission supérieur à 100 $\mu g.m^{-2}.h^{-1}$. Les deux sources qui présentent les taux d'émission les plus importants contribuent pour environ 8% au total des émissions alors qu'elles représentent moins de 2% des surfaces. En revanche, le plafond qui présente un taux d'émission de l'ordre de 25 $\mu g.m^{-2}.h^{-1}$ et a une étendue de l'ordre de 57 m^2 , est la source d'émission principale.

3.4.3.3 Interprétation des résultats

Les différents matériaux échantillonnés ont été réunis en six catégories : sol, murs, plafond, mobiliers (tables, chaises, armoires, etc.), menuiseries (fenêtres, portes, plinthes, etc.) et éléments de décoration ou d'aménagement (tableaux, radiateurs, livres, etc.). Les contributions relatives de chacune de ces catégories sont représentées sur la Figure 23.



<u>Figure 23</u>: Graphique représentant les contributions relatives des 6 catégories de surfaces présentes dans la salle de classe de Donges.

Selon la Figure 23, moins de 50% des émissions en formaldéhyde de la salle de classe de Donges proviennent des éléments du bâti (plafond, murs et sol). Ce résultat est en bon accord avec le rapport entre les surfaces du mobilier et du bâti de 0,6 (Tableau 11).

La concentration ambiante en formaldéhyde mesurée dans la salle de classe en comparaison de la valeur obtenue par l'application du modèle d'équilibre des masses tel que présenté au paragraphe 2.1, nous indique une différence relative de -26%. Compte tenu des approximations faites et des incertitudes de mesure sur les valeurs du taux de renouvellement (a) ou de la vitesse de disparition du formaldéhyde (v), on peut conclure que cet écart n'est pas significatif et que l'échantillonnage des sources a été exhaustif (pas d'oubli de source majeure).

4 SYNTHESE DES RESULTATS

4.1 VALEURS DES BLANCS ET LIMITES DE DETECTION « TERRAIN »

Les blancs correspondent à des préleveurs préparés mais non exposés. Toutefois, ce sont des capteurs fermés qui ont été placés à la même température dans les salles de classe en même temps que les capteurs passifs utilisés pour la détermination des taux d'émission des différents matériaux. Ces capteurs fermés permettent d'évaluer la contamination au cours des phases de préparation et de prélèvement, notamment la pureté de la solution de DNPH.

La masse moyenne de formaldéhyde dans les blancs a été calculée à partir de l'extraction et de l'analyse de 4 à 7 filtres par école (Tableau 14). Ces valeurs moyennes étant toutes significatives, elles ont été soustraites des masses de formaldéhyde mesurées lors des prélèvements.

La limite de détection correspond à trois fois l'écart-type mesuré sur les blancs et convertie en taux d'émission (voir § 2.2.3.2.2.1 pp. 13-14) pour 6 heures d'exposition (Tableau 14).

<u>Tableau 14</u>: Masse moyenne de formaldéhyde des blancs de terrain pour les 4 établissements scolaires, écarts-types et limites de détection associés.

	Abbeville 1	Abbeville 2	Mouans- Sartoux	La Seyne- sur-Mer	Donges
Moyenne blancs	59	39	169	100	166
(ng)	n = 4	n = 4	n = 4	n = 5	n = 7
Ecart-type (ng)	30	10	7	13	11
LD préleveur (µg.m ⁻² .h ⁻¹)	3,0	1,1	0,7	1,3	1,2

Compte tenu de taux d'émission déterminés sur les différents matériaux au cours de différentes campagnes (taux d'émission moyen = $34 \mu g.m^{-2}.h^{-1}$; taux d'émission médian = $18 \mu g.m^{-2}.h^{-1}$), la limite de détection moyenne déterminée sur l'ensemble des établissements apparait satisfaisante (LD_{moyen} = $1,5 \mu g.m^{-2}.h^{-1}$).

Cette limite de détection du formaldéhyde en condition terrain est proche de celle établie en laboratoire par Blondel et qui était égale à 1,2 µg.m⁻².h⁻¹ dans des conditions d'exposition du préleveur similaires [8].

4.2 COMPARAISON DES CONTRIBUTIONS RELATIVES DU BATI ET DE L'AMENAGEMENT

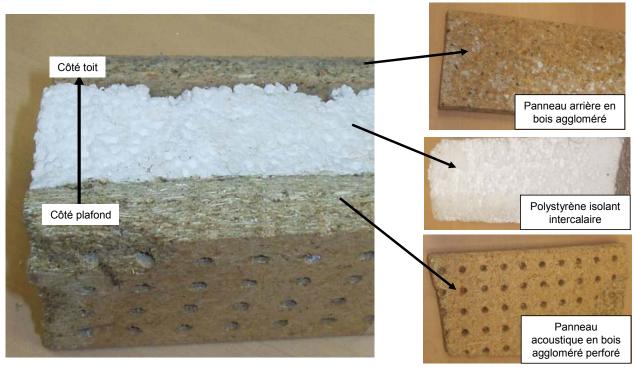
Pour chacune des campagnes réalisées le plafond ou une partie de celui-ci était toujours la source d'émission de formaldéhyde principale. Par ailleurs, si on classe l'ensemble des sources d'émission en six catégories : sol, plafond, murs, menuiseries, mobilier et éléments de décoration ou d'aménagement, le plafond reste la source principale pour les établissements d'Abbeville et de Mouans-Sartoux. En pour revanche. l'établissement de La Seyne-sur-Mer c'est décoration/aménagement qui est représente la catégorie principale d'émission de formaldéhyde et pour l'établissement de Donges c'est la catégorie de l'ameublement. De la même façon, si on classe les différentes sources d'émission en deux catégories principales : éléments du bâti et éléments d'aménagement, les établissements d'Abbeville et de Mouans-Sartoux présentent des émissions qui proviennent à plus de 80% du bâti alors que les établissements de La Seyne-sur-Mer et Donges, le bâti représente moins de 50% des émissions totales de formaldéhyde (voir Tableau 15).

<u>Tableau 15</u>: Contribution moyenne de chaque catégorie de sources (selon Figures 11, 15, 19 et 23), du bâti et de l'aménagement à l'émission totale en formaldéhyde.

	Abbeville	Mouans- Sartoux	La Seyne-sur- Mer	Donges
Sol(s)	9%	3%	7%	5%
Plafond(s)	56%	70%	31%	33%
Murs	15%	4%	8%	8%
Menuiseries (fenêtres, portes, plinthes)	4%	4%	2%	3%
Contribution du "bâti"	84%	82%	48%	49%
Ameublement (tables, chaises, bureaux, étagères, etc.)	6%	18%	15%	40%
Aménagement - Décoration	9%	0%	38%	12%
Contribution de l'aménagement	16%	18%	52%	51%

Il faut cependant rester vigilent concernant l'émission globale des éléments comme le plafond qui sont assez rarement constitués par un matériau unique. On est souvent en présence de matériaux « multicouches » qui peuvent avoir des taux d'émission différents. Par exemple, le plafond de l'école de Mouans-Sartoux est constitué de 3 couches différentes assemblées ensemble par de la colle (voir Figure 24).

52



<u>Figure 24</u>: Photographie représentant l'assemblage des 3 matériaux constitutifs du plafond de la salle de classe de Mouans-Sartoux.

ATMO PACA nous a fourni un échantillon de cet assemblage sur lequel nous avons pu réaliser des mesures de taux d'émission de chacune des différentes couches du matériaux en chambre d'essai d'émission selon la méthode normalisée (NF EN ISO 16000-9 [14]). Les résultats sont rassemblés dans le Tableau 16 ci-dessous.

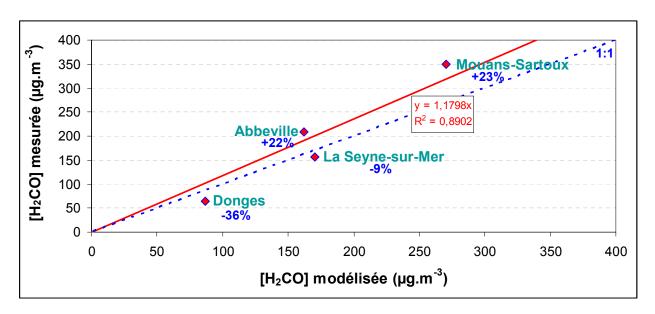
<u>Tableau 16</u>: Taux d'émission en formaldéhyde des 3 matériaux constitutifs du plafond de la salle de classe de Mouans-Sartoux (déterminées selon la méthode normalisée NF EN ISO 16000-9 [14]).

	Taux d'émission formaldéhyde (µg.m ⁻² .h ⁻¹)
Panneau arrière en bois aggloméré	61
Isolant polystyrène intercalaire	<ld< th=""></ld<>
Panneau acoustique en bois aggloméré perforé	166

Un autre point à prendre en considération est le phénomène de transfertmigration du formaldéhyde d'une source importante vers une source moins émettrice mais poreuse (type plâtre, gypse, enduit, crépi) qui se trouve à proximité. Par exemple, le plafond de l'établissement de La Seyne-sur-Mer qui est recouvert de crépi, est situé à moins de 50 cm des éléments acoustiques en mousse dont les taux d'émission sont environ 3 à 4 fois plus élevés que celui du plafond. Il y aurait donc pu y avoir une « contamination » du plafond par les éléments acoustiques. Il semble très difficile de s'assurer de cela en réalisant des mesures en chambre d'essai d'émission du fait de la nature du plafond (béton), un autre moyen serait de retirer les éléments acoustique de la salle de classe et de procéder à un suivi temporel périodique du taux d'émission du plafond.

4.3 COMPARAISON MODELE-MESURE

La concentration intérieure de formaldéhyde a été calculée à l'aide du modèle d'équilibre des masses décrit dans le paragraphe 2.1 et comparée à la concentration mesurée pour les 4 salles de classe échantillonnées (voir Figure 25).



<u>Figure 25</u>: Comparaison des concentrations en formaldéhyde mesurées et calculées (Equation § 2.1) à l'intérieur des salles de classe. La courbe en pointillé représente la droite 1:1. Les différences observées entre les valeurs mesurées et calculées sont indiquées en dessous de chaque point.

Une bonne adéquation a été trouvée entre les concentrations calculées et mesurées (Figure 25). A l'exception d'un cas, l'écart entre les concentrations calculées et mesurées ne dépasse pas 30 %. Les différences observées peuvent provenir des erreurs associées aux mesures (5-10%, 1 sigma) et/ou des erreurs associées aux valeurs calculées (15-20%, 1 sigma).

Comme montré par la pente de la droite proche de 1, il n'y a pas de biais systématique entre ces deux concentrations. Les taux d'émission mesurés sont donc représentatifs des émissions de la pièce et le modèle d'équilibre des masses utilisé donne des estimations satisfaisantes des concentrations intérieures en formaldéhyde dans ces pièces.

Ces résultats permettent donc de valider l'emploi du modèle d'équilibre des masses pour des environnements présentant des sources d'émission importantes et un faible taux de renouvellement de l'air.

4.4 APPLICATION DE SCERANIOS D'AMELIORATION DE LA QUALITE DE L'AIR

En modifiant certains paramètres du modèle d'équilibre des masses présenté au paragraphe 2.1, tels que le taux de renouvellement de l'air ou les émissions totales ou individuelles des matériaux, il est possible d'évaluer l'impact de stratégies d'amélioration de la qualité de l'air intérieur. Les deux scénarios testés sont une augmentation du taux de renouvellement de l'air jusqu'à 1 h⁻¹ en prenant un taux de renouvellement initial égal à 0,5 h⁻¹ qui est plus représentatif de la ventilation « normale » des salles de classe (Scenario I) et le remplacement de la source d'émission la plus importante, c'est-à-dire le plafond par un matériau moins émetteur (Scenario II, taux d'émission abaissé à 12,5 µg.m⁻².h⁻¹, ce qui correspond à un matériau classé A ou A+ selon le journal officiel de la république française n°0111 du 13 mai 2011, texte 15). A noter que dans le cas de l'école de La Seine-sur-Mer, ce n'est pas un scénario de remplacement du plafond qui a été utilisé mais un scénario de retrait des éléments acoustiques en mousse car c'est un scénario qui est plus simple, rapide et moins couteux à mettre en place.

Les résultats présentés sur la Figure 26 montrent qu'une réduction d'environ 40% de la concentration en formaldéhyde pourrait être obtenue par l'installation d'un système de ventilation permettant d'atteindre un taux de renouvellement de l'air de 1 h⁻¹ (Scenario I). Le remplacement de l'émetteur le plus important (Scenario II) aura également un impact significatif pour les écoles d'Abbeville, Mouans-Sartoux et La Seyne-sur-Mer, avec une réduction de 28 à 65 % de la concentration en formaldéhyde. Une réduction plus modeste d'environ 16 % est calculée pour l'école de Donges qui ne présentait pas de sources d'émission prépondérantes. Combiner les deux solutions proposées (Scenarios I+II) permettrait de réduire la concentration en formaldéhyde dans ces écoles d'environ 49 à 78 %.

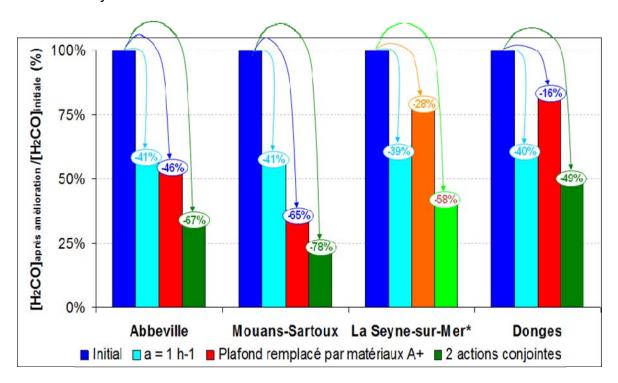


Figure 26 : Impact de différentes stratégies de réduction des concentrations en formaldéhyde.

5 CONCLUSION GENERALE

Le but de cette étude était d'identifier les sources intérieures de formaldéhyde dans 4 établissements scolaires et d'examiner leur contribution respective à la concentration intérieure.

Ainsi, la méthodologie basée sur l'utilisation d'un préleveur passif pour la mesure des taux d'émission en formaldéhyde des matériaux permet de compléter les moyens existant en matière de qualité de l'air intérieur et de réaliser un diagnostic des sources intérieures conduisant à la définition de mesures pour réduire efficacement les concentrations intérieures.

Par ailleurs, un modèle d'équilibre des masses, utilisant les taux d'émission, les concentrations extérieures à la pièce ainsi que le taux de renouvellement d'air, a été appliqué afin de calculer les concentrations dans les chambres.

Suite à ces mesures plusieurs conclusions peuvent être faites :

- Les taux d'émission mesurés se situent dans une fourchette de valeurs comprises entre 8 et 252 μg.m⁻².h⁻¹ et indiquent la présence d'émetteurs très important (T_i > 50 μg.m⁻².h⁻¹) qui sont généralement consitués de matériaux à base de bois compressés ou de mousses expensées;
- La proportion de matériaux dont les taux d'émission sont inférieurs à la limite de détection du préleveur est de l'ordre de 2 % pour chacun des établissements ;
- Bien que les valeurs médianes des taux d'émission mesurés dans ces quatres établissements soient proches (11 à 23 μg.m⁻².h⁻¹), l'émission totale en formaldéhyde varie fortement d'un site à l'autre : Mouans-Sartoux (21,5 mg.h⁻¹), Abbeville (8,0 mg.h⁻¹), La Seyne-sur-Mer (11,9 mg.h⁻¹) et Donges (4,3 mg.h⁻¹);
- Les principales sources d'émission en formaldéhyde dans ces écoles ont été clairement identifiées ;
- Le plafond est apparu comme l'émetteur le plus important pour chacune des écoles :
- Le modèle d'équilibre des masses utilisé dans cette étude est apparu comme un outil de diagnostic utile pour évaluer l'impact de stratégie d'amélioration de la qualité de l'air.

6 REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] Loi n° 2009-967 du 3 août 2009 de programmation relative à la mise en œuvre du Grenelle de l'environnement.
- [2] Michelot N., C. Mandin, O. Ramalho, J. Riberon, C. Marchand, L. Malherbe, M. Ramel, M.-B. Personnaz, V. Delmas, S. Urban et M. Carrega "Campagne pilote de surveillance de la qualité de l'air dans les écoles et crèches en France : Résultats de la première phase", *Pollution Atmosphérique*, vol. 211, pp. 267-280, 2011.
- [3] "Formaldehyde", *IARC Monographs on the evaluation of carcinogenic risks to humans*, **vol. 88**, pp. 39-324, 2006.
- [4] ASPA "Campagne de mesure du formaldéhyde dans les établissements scolaires et d'accueil de petite enfance de la ville de Strasbourg : bilan des niveaux mesurés", Réf. ASPA 05061301-I-D, 33 p., 2005.
- [5] AIR-APS, AMPASEL, ATMO Drôme-Ardèche, ASCOPARG, COPARLY "Mesure des aldéhydes dans l'air intérieur des écoles maternelles et des crèches de la région Rhône-Alpes", Convention DRASS, 44 p., 2007.
- [6] HCSP "Valeurs repères d'aide à la gestion dans l'air des espaces clos : le formaldéhyde", 41 p., 2009.
- [7] Dockery D. W. and J. D. Spengler "Indoor-outdoor relationships of respirable sulfates and particles", *Atmospheric Environment*, **vol. 15**, pp. 335-343, 1981.
- [8] Blondel A. "Identification des sources intérieures de composés organiques volatils et estimation de leur contribution aux teneurs observées dans les logements français", Thèse de l'Université des Sciences et Technologie de Lille, 165 p., 2010.
- [9] Fable S., S. Verlhac, B. Triart, C. Marchand et L. Chiappini "Mesure du formaldéhyde", Etude LCSQA-INERIS, 39 p., 2009, disponible sur : http://www.lcsqa.org/rapport/2009/ineris/mesure-formaldehyde.
- [10] Weschler C. J. and H. C. Shields "The influence of ventilation on reactions among indoor pollutants: modeling and experimental observations", *Indoor Air*, **vol. 10**, pp. 92-100, 2000.
- [11] Liu W., J. Zhang, L. Zhang, B. J. Turpin, C. P. Weisel, M. T. Morandi, T. H. Stock, S. Colome and L. R. Korn "Estimating contributions of indoor and outdoor sources to indoor carbonyl concentrations in three urban areas of the United States", *Atmospheric Environment*, **vol. 40**, pp. 2202-2214, 2006.
- [12] NF EN ISO 16000-3: Air Intérieur Partie 3: Dosage du formaldéhyde et d'autres composés carbonylés Méthode par échantillonnage actif, janvier 2002.

- [13] ASTM E 741-00 : Standard test method for determining air change in a single zone by means of tracer gas dilution, 2006.
- [14] NF EN ISO 16000-9 : Air Intérieur Partie 9 : Dosage de l'émission de composés organiques volatils de produits de construction et d'objets d'équipement Méthode de la chambre d'essai d'émission, août 2006.
- [15] NF EN ISO 16000-10 : Air Intérieur Partie 10 : Dosage de l'émission de composés organiques volatils de produits de construction et d'objets d'équipement Méthode de la cellule d'essai d'émission, août 2006.
- [16] NF ISO 16000-25 : Air Intérieur Partie 25: Dosage de l'émission de composés organiques semi-volatils des produits de construction Méthode de la microchambre, septembre 2011.
- [17] Nicolle J. "Développement d'une méthodologie d'analyse de composés organiques volatils en traces pour la qualification de matériaux de construction", Thèse de l'Université de Pau et des Pays de l'Adour, 168 p., 2009.
- [18] Akutsu T., R. Aoki, K. Kumagai and S. Tanabe "Development of measurement Device (ADSEC) for aldehydes emission rate using a diffusive sampler: Part 2 Examination of the size of ADSEC and comparison with FLEC", Summaries of technical papers of Annual Meeting Architectural Institute of Japan, vol. D-2: Environmental engineering II, pp. 721-722, 2000.
- [19] Yamashita S., K. Kume, T. Horiike, N. Honma, M. Fusaya, T. Ohura and T. Amagai "Emission sources and their contribution to indoor air pollution by carbonyl compounds in a school and a residential building in Shizuoka, Japan", *Indoor and Built Environment*, sous presse, 2011.
- [20] Shinohara N., T. Kajiwara, M. Ohnishi, K. Kodama and Y. Yanagisawa "Passive Emission Colorimetric Sensor (PECS) for measuring emission rates of formaldehyde based on an enzymatic reaction and reflectance photometry", *Environmental Science and Technology*, **vol. 42**, pp. 4472-4477, 2008.
- [21] Bicchia C., C. Corderoa, E. Libertoa, P. Rubioloa, B. Sgorbinia and P. Sandrab "Sorptive tape extraction in the analysis of the volatile fraction emitted from biological solid matrices", *Journal of Chromatography A*, **vol. 1148**, pp. 137-144, 2007.
- [22] Shinohara N., M. Fujii, A. Yamasaki and Y. Yanagisawa "Passive flux sampler for measurement of formaldehyde emission rates", *Atmospheric Environment*, **vol. 41**, pp. 4018-4028, 2007.

ANNEXE

Document de référence de l'étude

ANNEXE

DOCUMENT DE REFERENCE DE L'ETUDE

ETUDE N° 8/3: MESURE DU FORMALDEHYDE

Responsable de l'étude INERIS En collaboration avec EMD

Objectifs

Cette étude a pour but d'évaluer l'influence des niveaux de vent sur la mesure du formaldéhyde par tubes passifs ainsi que de réaliser un panorama des techniques et d'approches disponibles pour la recherche des sources et/ou l'analyse en temps réel des aldéhydes.

Contexte et travaux antérieurs

Depuis juin 2004, la toxicité du formaldéhyde, composé ubiquitaire en air intérieur, a été réévaluée à la hausse par le Centre International de Recherche sur le Cancer (CIRC) et est ainsi passée de « cancérogène probable » (groupe 2A) à « cancérogène certain chez l'homme » (groupe 1).

C'est pourquoi il est indispensable de déterminer les niveaux de concentration de ce polluant en air intérieur où la population y est particulièrement exposée.

Au cours des années 2007, 2008 et 2009, des travaux portant sur la mesure du formaldéhyde par tubes passifs et actifs ont été menés en atmosphère simulée (chambre d'exposition de l'INERIS) et en environnement intérieur réel (supermarché, bureau, maison, école...). De nombreux paramètres tels le temps d'exposition, les niveaux d'ozone, les niveaux de concentration en formaldéhyde ont été testés et des paramètres tels la vitesse du vent a été identifié comme un facteur pouvant perturber la diffusion du formaldéhyde et entrainer une sur-estimation des concentrations mesurées.

Parallèlement à ces tests, un état des lieux des méthodes de mesure du formaldéhyde a été réalisé et des moyens de prélèvement et d'analyse, en particulier en continu, ont été testés. Parmi les dispositifs permettant une recherche de source, des travaux de thèse menés à l'EMD ont permis de développer et valider un échantillonneur passif spécifiquement adapté à la mesure in situ des taux d'émission en formaldéhyde des surfaces et matériaux présents dans les environnements intérieurs. Un programme complet d'évaluation de la méthode d'échantillonnage passif a été conduit au travers d'essais en laboratoire. Des performances satisfaisantes ont été obtenues : une limite de détection de 1,1 µg.m⁻².h⁻¹ pour une durée d'échantillonnage de 6 heures, une précision de la mesure de 7,2 % exprimée en coefficient de variation et une relation linéaire entre la réponse du capteur passif et le taux d'émission (50 points de comparaison sur 11 matériaux différents) a pu être établie. Un article présentant ces résultats est parue dans la revue Analytical Methods (Blondel et al., 2010a).

Une première application du capteur passif a été réalisée dans 24 logements d'étudiant. L'exploitation des données a permis de révéler sur site les matériaux responsables des niveaux élevés en formaldéhyde et de quantifier leur contribution respective à la concentration intérieure. Le modèle « simplifié » de type équilibre des masses a également

été testé avec succès pour l'estimation de la concentration intérieure en formaldéhyde dans ces espaces intérieurs de typologie simple.

Deux articles présentant ces résultats sont pour l'un en soumission dans la revue Indoor Air (Blondel et al. 2010b) et pour l'autre en préparation.

Travaux proposés pour 2011

Les travaux proposés pour l'année 2011 se déclinent selon trois volets :

1. Évaluer l'influence des niveaux de vent sur la mesure du formaldéhyde par tubes passifs : (Action INERIS)

Au cours des essais menés entre 2007 et 2009, des différences avaient été observées entre les résultats obtenus par prélèvement actif et passif, dans les pièces de maisons d'une part et dans le supermarché et la chambre d'exposition d'autre part. La différence entre ces deux types d'environnement réside en la vitesse du vent dans l'environnement d'exposition.

En effet, alors qu'une vitesse de vent est maintenue en permanence dans la chambre d'exposition pour assurer une homogénéisation correcte de l'atmosphère et qu'un système de ventilation était en fonctionnement au supermarché pour garantir un renouvellement correct de l'air, les mouvements d'air dans les pièces de mesure des maisons 1 et 2 ne sont dus qu'au mouvement des personnes y vivant. D'après les habitants des maisons, les fenêtres n'ont pas été ouvertes pendant la période d'exposition.

Ainsi, la vitesse du vent ou l'absence de celui-ci, pourrait expliquer les différences observées entre les essais réalisés dans les maisons et ceux réalisés en chambre et dans les supermarchés.

L'influence de la vitesse du vent sur le débit d'échantillonnage des tubes passifs en affectant le débit de diffusion a été démontré par plusieurs études portant notamment sur le prélèvement du NO₂ (Gair et al. 1995; Sekine et al. 2008) ou du benzène, toluène, éthylbenzène et xylène (Pennequin-Cardinal 2005).

Le transfert de masse du polluant considéré, en l'occurrence le formaldéhyde, peut être perturbé par les mouvements d'air à la surface du tube résultant en des artefacts négatifs lorsque la vitesse du vent est trop faible, positifs lorsqu'elle est trop forte.

Il serait par conséquent intéressant de tester l'influence de ce paramètre environnemental sur le débit de prélèvement du formaldéhyde sur le tube Radiello®. Des essais en chambre d'exposition sont proposés en faisant varier la vitesse du vent et en exposant des tubes avec et sans cage de protection : dans un premier temps, des modifications seront effectuées sur la chambre afin de mieux y simuler et contrôler la vitesse du vent (amélioration du système de génération du vent et acquisition d'appareil de mesure plus précis et plus sensible). Puis, des tests en faisant varier la vitesse du vent seront réalisés. Cette dernière ne pouvant être fixée à zéro pour maintenir l'homogénéisation de l'atmosphère dans la chambre, si les tests précédents ne sont pas concluants, des essais supplémentaires seront réalisés avec une cage de protection. Cette dernière pourrait permette d'isoler au maximum les tubes des mouvements d'air.

2. Panorama des techniques et d'approches disponibles pour la recherche des sources et/ou l'analyse en temps réel des aldéhydes

Un travail de veille sur les appareils de prélèvement et d'analyse en continu actif existant sur le marché et en développement est proposé. L'analyseur en continu Aerolaser ainsi que des capteurs développés par la société ETHERA ont été testés en 2009. Des techniques émergentes pourraient, de la même façon, être testées sur la chambre d'exposition de l'INERIS, dans les conditions représentatives des environnements intérieurs (25 µg m⁻³ de formaldéhyde, 50 % d'humidité et 20 °C).

Par ailleurs, des essais sur site sont également prévus (cartographies, recherches de sources). Ce volet est mené en lien avec la campagne pilote de surveillance de la qualité de l'air intérieur (QAI) dans les écoles et crèches (Fiche 8/1, volet 1.A.).

A. Continuité des travaux entamés avec ETHERA en 2010 (Action INERIS)

Le dispositif développé par ETHERA permettrait, entre autres, de réaliser des cartographies d'un site de façon simple. L'objectif est donc de tester leur dispositif sur site, afin d'évaluer la réponse obtenue.

B. Test de l'échantillonneur passif développé et validé par l'Ecole des Mines de Douai (EMD), spécifiquement adapté à la mesure in situ des taux d'émission en formaldéhyde des surfaces et matériaux présents dans les environnements intérieurs (Action EMD).

Ce dispositif sera déployé dans des établissements où la teneur en formaldéhyde dépassait ou avoisinait 50 µg.m⁻³. Dans ces établissements, l'EMD propose de réaliser un diagnostic approfondi des sources de formaldéhyde : par site, 15 à 20 échantillonneurs passifs seront répartis sur l'ensemble des surfaces (plafond, sol et murs) et des pièces d'ameublement de manière à déterminer leur taux d'émission en formaldéhyde (exprimés en µg.m⁻².h⁻¹). Un métrage des surfaces sera effectué et utilisé pour estimer l'ensemble des émissions de la pièce. La nature de chaque matériau échantillonné dans les pièces sera renseignée.

Parallèlement, trois prélèvements actifs sur cartouche de DNPH seront réalisés pour mesurer les concentrations en formaldéhyde à l'intérieur de la pièce, à l'extérieur (air ambiant) et dans la partie commune du bâtiment qui communique directement avec la pièce. Les différents prélèvements actifs et passifs seront faits simultanément sur une même période de 6 heures.

Pour chaque pièce échantillonnée, le taux de renouvellement d'air sera estimé par la méthode normalisée d'injection et de suivi de la décroissance du CO2. Des mesures complémentaires de taux de renouvellement d'air suivant différents cas limites seront réalisées si nécessaire pour quantifier les flux d'air entrant et sortant de la pièce. Un bilan quantifié des émissions, ainsi qu'une hiérarchisation des sources intérieures seront établis. Les données d'observations seront également utilisées pour appliquer un modèle d'équilibre des masses. Les concentrations intérieures estimées par ce modèle seront comparées à celles mesurées dans ces mêmes environnements intérieurs. De plus, l'estimation des composantes de l'équation informera sur les contributions (parts attribuables) des différentes sources aux concentrations intérieures observées. Sur la base de ces résultats, différents scénarii pourront être étudiés pour abaisser les niveaux de concentration en formaldéhyde dans ces environnements intérieurs (remplacement des matériaux les plus émissifs, ventilation....). Cette étude (partie opérationnelle et exploitation des données) se fera en partenariat avec des AASQA (Air Pays de Loire....) et comprendra plusieurs établissements d'intérêt pour ces AASQA. L'exploitation des résultats relatifs à ces tests seront réalisées par ľEMD.

L'ensemble des travaux de ce volet permettra de réaliser une synthèse sur les différentes méthodes de recherches de sources disponibles (cartographie, mesure de taux d'émissions in situ, suivi dynamique, ...). Les moyens métrologiques associés pour une application à la recherche de formaldéhyde seront détaillés. Ceux dédiés à la recherche du benzène feront l'objet d'une mise à jour ultérieure de cette synthèse.

3. Travaux de synthèse (Action INERIS)

Une synthèse sera réalisée sur le contenu des travaux sur les aldéhydes réalisés par le LCSQA ces dernières années et mettant en évidence les principaux résultats obtenu et enseignements tirés.

Collaborations souhaitées

- ETHERA
- CNRS-LMSPC (Strasbourg)
- AASQA (Air Pays de Loire, ...)

Renseignements synthétiques 2011

Titre de l'étude	Mesure du formaldéhyde		
Personne responsable de l'étude	Laura CHIAPPINI	(INERIS)	
Travaux	Pérennes		
Durée des travaux pluriannuels			
Collaboration AASQA	AASQA (Air Pays	de Loire,)	
Heures d'ingénieur	EMD : 300	INERIS:450	LNE
Heures de technicien	EMD : 600	INERIS: 450	LNE
Document de sortie attendu	Rapport		
Lien avec le tableau de suivi CPT	2) La métrologie Demande AASQA 2010		
Lien avec un groupe de travail			
Matériel à acquérir pour l'étude (consommable)	INERIS : consommable /matériel pour amélioration du système de génération du vent dans la chambre		