PARTICULES ULTRAFINES DANS L'ENVIRONNEMENT DOMESTIQUE : NIVEAUX, DETERMINANTS ET VARIABILITES – PROJET NANOP

X. Ji* (1), O. Le Bihan (1), O. Ramalho (2), R. Aujay (1), J. Garrigue (2), C. Mandin (1), L. Martinon (3), D. Bard (4) et J-C. Pairon (5)

(1) Institut national de l'environnement industriel et des risques (INERIS), Parc Technologique Alata, BP 2, 60550 Verneuil-en-Halatte. xiaolin.ji@ineris.fr

(2) Centre scientifique et technique du bâtiment (CSTB), Champs/Marne

(3) Laboratoire d'étude des particules inhalées (LEPI), Paris

(4) Ecole nationale de la santé publique (ENSP), Rennes

(5) INSERM U 841 et Université Paris 12, Créteil

TITLE

Measuring levels, assessing determinants and variabilities of nanoparticle concentrations in residential environment, The NANOP Project

ABSTRACT

NANOP project aims at assessing nanoparticles levels and their spatial and temporal variation in domestic environment simulated within an experimental house (MARIA) based at the Building Technical and Scientific Center (CSTB), i.e. a fully controlled domestic environment (as regards air exchange, heating…). Cooking, burning candles or incense, spraying air freshener … will be operated independently in MARIA as close as possible to real use. Secondly MARIA will be inhabited by volunteers for one week to simulate real life. Particulate matter (PM) analysers, condensation particle counters (CPC), scanning mobility particle sizer (SMPS), and specific surface analyser (AeroTrack) will be carried out in the kitchen, the living-room, the bedroom, and outdoors. Possible relations between different metrics such as particle number, mass, specific surface, size distribution should be identified. Respective contributions of indoor sources to exposure, but also from outdoor air will be determined.
Detailed measurement strategy and first results of the June 2007 campaign will be presented.

RESUME

La connaissance des expositions de la population générale aux particules ultrafines reste à ce jour embryonnaire. Dans ce contexte, le projet NANOP s'inscrit dans une perspective de caractérisation des niveaux de concentration en nanoparticules dans l'air, d'analyse de leur variabilité spatio-temporelle et d'identification de leurs déterminants. Un intérêt plus particulier est porté aux environnements intérieurs, notamment l'environnement domestique le plus fréquenté au regard du temps passé.

Après un travail de hiérarchisation des sources domestiques de particules ultrafines au regard de leur potentiel d'émission et de la prévalence de leur utilisation par la population française, plusieurs d'entre elles (cuisson, désodorisant d'ambiance, encens et bougie, grille-pain…) sont mises en œuvre en conditions réalistes dans la maison expérimentale MARIA du CSTB. Différents paramètres (nombre, surface, granulométrie, masse) sont mesurés dans les pièces de la maison afin d'en étudier l'évolution et les éventuelles corrélations.

Ces travaux bénéficient du soutien de l'Agence française de sécurité sanitaire de l'environnement et du travail (AFSSET).

Remerciements : les auteurs remercient le Dr. Michel Attoui de l'Université Paris XII pour la mise à disposition de matériel de mesure.

1. Introduction

On entend par nanoparticules les particules d'origine anthropique ou naturelle, présentes dans l'air ambiant, dont le diamètre est inférieur à 100 nm. Elles sont également plus communément dénommées « particules ultrafines » lorsqu'elles ne sont pas issues des nanomatériaux manufacturés dans lesquels elles sont intentionnellement utilisées.

Si l'exposition aux nanoparticules n'est pas nouvelle puisque des phénomènes naturels et des procédés industriels en ont toujours été émetteurs dans l'air ambiant, elle s'avère, abordée en terme de préoccupation sanitaire, éminemment récente. Indépendamment du contexte des nanoparticules manufacturées, qui suscitent également un vif intérêt de la communauté scientifique, les particules ultrafines dans l'air ambiant ont fait l'objet de premières études épidémiologiques semblant indiquer de potentiels effets respiratoires et cardiovasculaires (Penttinen P, 2001; Ibald-Mulli A, 2002; Timonen KL, 2004; Forastiere F, 2005; Delfino RJ, 2006).

Parallèlement, les modalités de caractérisation des expositions de la population aux nanoparticules sont mal définies. En effet, s'agissant des particules, la métrique de référence qu'est la masse n'est plus pertinente dans le cas des nanoparticules ; il convient dès lors d'identifier de nouvelles grandeurs repères qui pourraient être, par exemple, la concentration en nombre, la surface spécifique, le profil granulométrique… La connaissance des niveaux de concentration en nanoparticules dans l'air ambiant est très pauvre, voire inexistante dans certains lieux de vie.

2. Etat de l'art

Hormis la fumée de tabac, peu de données sont actuellement disponibles sur la caractérisation des sources de particules ultrafines dans les environnements intérieurs en termes de caractéristiques physiques, de composition chimique ou d'exposition (Ramalho O., 2006).

Deux projets ont porté sur l'étude individuelle des sources (Ramalho O., 2006; Afshari A., 2005).

Une équipe danoise a étudié treize sources de manière individuelle, en les plaçant tour à tour dans une chambre de 32 m^3 (Afshari A, 2005). Un changement rapide de la distribution en taille de particules a été observé pour les mesures de fumée de cigarette, de friture de viande, de spray désodorisant et de combustion de gaz (cuisinière).

En terme de dynamique, la plus haute concentration en particules ultrafines a été observée lors de la combustion de bougie ($2{,}41.10^5$ particules/cm^3).

S'agissant de l'émission de particules, le plus fort facteur d'émission a été relevé lors de l'utilisation d'un radiateur ($1{,}47.10^{10}$ particules/seconde). Le facteur d'émission le plus réduit parmi les treize sources sélectionnées, concerne l'utilisation d'un fer à repasser ($1{,}17.10^7$ particules/seconde).

Dans le cadre d'un projet français, vingt et une activités domestiques ont été sélectionnées et caractérisées en enceinte expérimentale (Ramalho O, 2006).

En ce qui concerne l'exposition humaine aux particules ultrafines, les travaux de Wallace et al ont été analysés (Wallace L, 2002; Wallace L, 2004). Des mesures en nombre ont été menées pendant 18 mois dans une grande habitation de non-fumeurs de la banlieue de Washington, l'objectif étant de mieux connaître l'influence des fluctuations journalières et saisonnières, des activités humaines (ouverture des fenêtres, l'utilisation de ventilateur …), et enfin des sources intérieures (cuisson, combustion de bougies …).

3. Le projet NANOP

Peu d'études sur les particules ultrafines sont mises en œuvre sur la caractérisation des sources domestiques. Cela limite la compréhension de l'exposition des populations, ainsi que l'évaluation et la gestion des risques sanitaires associés.

Dans ce contexte, le projet NANOP cherche à améliorer les connaissances sur les niveaux de concentration en particules ultrafines dans un environnement maîtrisé. Il vise à caractériser des niveaux de concentration en nanoparticules dans l'air ambiant, à analyser leur variabilité et à identifier leurs déterminants, en particulier dans l'environnement domestique, le plus fréquenté par les populations au regard du temps passé.

4. Matériels et Méthodes

Choix des sources et des conditions de leur mise en œuvre

Le choix des sources mises en œuvre dans le cadre du projet a été basé sur une revue de la littérature scientifique relative aux sources domestiques de nanoparticules (Afshari A, 2005; Ramalho O, 2006) et une réflexion sur les sources potentielles de nanoparticules dans l'environnement résidentiel. Une hiérarchisation des sources a été effectuée sur la base de leur potentiel émissif, de la prévalence de leur présence dans les habitats français, ainsi que de la fréquence et la durée de leur utilisation, de la proximité de l'utilisateur à la source lorsque celle-ci est utilisée, et de la toxicité connue ou suspectée des particules émises.

Les sources sélectionnées sont les suivantes : cuisson, tabac, bougie, encens, aspirateur, désodorisant (spray), laque (spray) et chauffage d'appoint.

La Maison Automatisée pour la Recherche Innovante de l'Air (MARIA)

La maison MARIA se situe sur le site du CSTB à Champs/Marne. Elle possède cinq pièces principales (3 chambres et un double séjour), ainsi que deux toilettes, une salle de douche et une salle de bain, réparties sur deux niveaux. Enfin, un sous-sol total complète ce logement, dont la superficie totale est de 214 m^2. MARIA est une maison individuelle comportant cinq pièces et une cuisine, avec ouverture des ouvrants automatisés, perméabilité contrôlée et ventilation modulable.

Campagnes de mesure

La phase expérimentale du projet comporte deux campagnes de mesure (à deux saisons différentes), chacune divisée en deux phases :

- la mise en œuvre successive de sources d'émission domestiques (appareil de cuisson, chauffage d'appoint, bougie, aspirateur, imprimante, cigarette…) sur des pas de temps cohérents avec un usage réel et dans des conditions diverses (été vs. hiver ; différents taux de renouvellement de l'air, fonctionnement ou non de la hotte aspirante…) ;
- la simulation d'une d'occupation réelle de la maison MARIA mettant en jeu simultanément les sources testées dès lors que cela est réaliste.

Les mesures de particules ultrafines ont été effectuées dans quatre pièces principales (séjour, cuisine, chambre et toilettes) de deux niveaux de la maison, ainsi qu'à l'extérieur. Différents paramètres (nombre, surface, granulométrie, concentration massique) ont été mesurés afin d'en étudier l'évolution et les éventuelles corrélations. Une vingtaine d'appareils a été utilisée lors de la campagne (Tableau 1).

Paramètre	**$PM_{2,5}$**		**Nombre de particules**			**Distribution en taille des particules**			**Surface**	**NO/NO_2**	**$T°/ CO_2/$ humidité**
Matériel	TEOM 50°C	TEOM-FDMS	P-Trak	CNC 3007	CNC eau	SMPS	ELPI	Compteur optique Grimm	AeroTrak	TEI	Q-Trak
Nombre d'appareils dans la campagne	1	2	1	2	1	1	1	6	1	2	5
Gamme en taille	< 2,5 µm	< 2,5 µm	20 nm - 1 µm	10 nm - 1 µm	5 nm - 3 µm	10 nm - 500 nm	7 nm - 10 µm	0.3 µm - 20 µm	10 nm - 1 µm	-	-
Pas de temps	1 minute	1 heure	1 minute	1 minute	1 minute	5 minutes	1 minute	1 minute	1 minute	1 minute	10 minutes

Tableau 1. Synoptique des appareils utilisés, paramètres mesurés, gamme de particules considérées

Protocoles de mise en œuvre

Seule la campagne « été » est décrite ci-après.

La phase de caractérisation des sources a été effectuée du 12 juin au 2 juillet 2007. Pour une source donnée, chaque test a été réalisé de façon identique, en respect du protocole établi. Tout écart à ce protocole a conduit à invalider le test. À l'exception de la cuisson et du grille-pain, toutes les sources ont été mises en œuvre dans la salle de séjour. Pour une source donnée et une configuration définie, le test a été renouvelé 3 fois.

La phase de simulation d'une occupation réelle a eu lieu du 3 au 6 juillet 2007. Une journée type week-end (présence des occupants au domicile toute la journée ou une grande partie de celle-ci) est reproduite en mettant en œuvre de façon réaliste les sources testées précédemment.

Configuration de la maison MARIA

En dehors du test visant à étudier l'influence de l'ouverture de la fenêtre de la cuisine d'une part, et de la période de simulation d'occupation réelle d'autre part, les fenêtres et portes extérieures sont maintenues fermées pendant les tests. L'entrée des personnes se fait par la porte qui communique avec le sous-sol. Aucun véhicule n'est stationné dans le sous-sol, qui est dédié au stockage de matériel (pas de contamination possible par des gaz d'échappement).

Concernant l'intérieur de MARIA, il est retenu de travailler « portes ouvertes » dans la maison. Ceci permet d'étudier une situation défavorable en termes de dispersion des particules dans l'habitat, tout en étant réaliste. Afin précisément d'être dans une situation réaliste, seule la porte des toilettes au rez-de-chaussée est maintenue fermée.

En situation d'ouverture des volets, la photochimie et l'augmentation de la température peuvent avoir une influence sur les phénomènes physico-chimiques dans l'environnement intérieur. Cependant, cette ouverture est représentative de la réalité ; elle est donc retenue lorsque les sources sont mises en œuvre. Pendant la période de simulation d'occupation réelle, les volets sont fermés pendant la nuit.

Pendant la campagne, la Ventilation Mécanique Contrôlée (VMC) est fixée, par défaut, au niveau 1 (environ 130 m^3/h). Afin d'étudier l'influence de la ventilation lors de la cuisson, la VMC est positionnée au niveau 2 (environ 170 m^3/h) pour certains essais (cf. Tableau 2).

La hotte aspirante de la cuisine est mise en route pour les tests dédiés à l'évaluation de son influence. Son débit lors des manipulations est 78 m^3/h.

Tableau 2. Configuration de ventilation pour les tests (chaque configuration est testée trois fois)

Sources	Fenêtre	Ventilation	Hotte
cuisson	Fermée	VMC niveau 1	à l'arrêt
	Fermée		en fonctionnement
	Fermée	VMC niveau 2	à l'arrêt
	Ouverture d'une fenêtre (entrebâillement de 7 cm)	VMC niveau 1	à l'arrêt
autres	Fermée	VMC niveau 1	à l'arrêt

Stratégie de prélèvement

Afin de représenter au mieux les expositions des occupants de la maison et d'assurer la comparabilité des données, le choix est fait de prélever au même endroit pour tous les appareils, à savoir :

- à hauteur des voies respiratoires de l'utilisateur de la source pour tous les appareils renseignant les concentrations au point de proximité ;
- à hauteur des voies respiratoires d'une personne allongée dans un lit pour les appareils renseignant les concentrations dans la chambre (environ 0,6 m) ;
- à hauteur des voies respiratoires d'une personne debout pour tous les appareils renseignant les concentrations au point de fond (environ 1,6 m).

5. Premiers résultats et discussion

Les premiers résultats de la campagne « été » sont présentés.

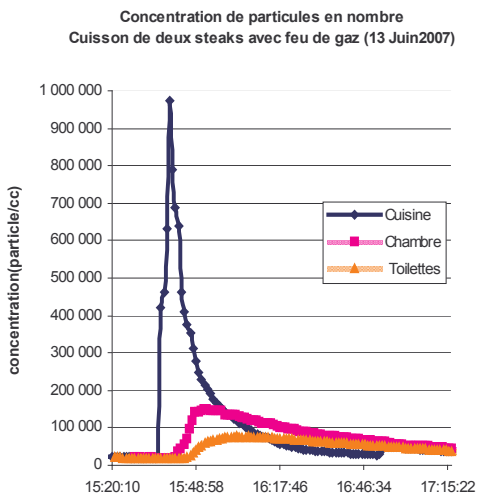


Figure 1.

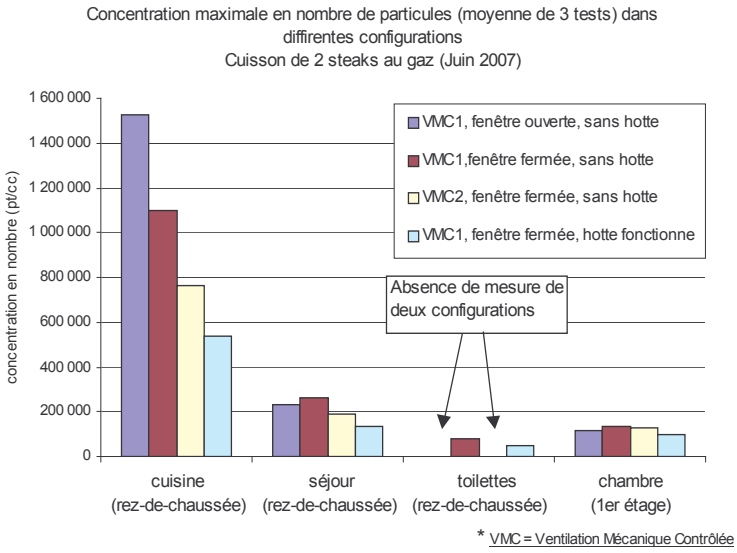


Figure 2.

La Figure 1 montre que la cuisson de steaks impacte immédiatement la concentration à proximité de la source, et impacte rapidement l'ensemble de la maison.

Cet impact dépend de la source : certaines sources génèrent des concentrations très élevées (exemple : cuisson, encens, grille-pain) ; à l'inverse, certaines sources, avérées, ont un impact plus réduit (sèche-cheveux, aspirateur, spray). Dans le cas du spray, l'impact est localisé et n'a aucune influence à l'étage (Tableau 3 et Figure 3) : aucun pic n'y a été observé.

Tableau 3. Concentration maximale en nombre de particules lors de l'utilisation de différentes sources (10^4 particules/cm^3)

	Cuisson	Spray désodorisant	Grille-pain	Cigarette	Encens	Bougie	Sèche cheveux	Aspirateur
point proximité	110	3,07	23,2	7,19	33,5	5,27	1,58	1,60
séjour (fond)	26,3	1,10	4,41	4,90	3,35	0,85	1,37	1,23
chambre (fond)	13,2	--	4,88	1,85	1,22	1,03	1,10	1,10

Le renouvellement de l'air apparaît être un paramètre fondamental dans la pièce où se situe la source (Figure 2 : cuisine)

Le passage d'un débit de ventilation de 130 m^3/h (VMC niveau 1) à 170 m^3/h (VMC niveau 2) entraîne une nette amélioration de la qualité de l'air (de $1{,}1.10^6$ particules/cm^3 à $7{,}7.10^5$ particules/cm^3). Le captage par la hotte à la source est efficace : la comparaison de la configuration VMC 1 avec et sans hotte (débit de 78 m^3/h) indique une baisse de plus de 50 % de la concentration maximale.

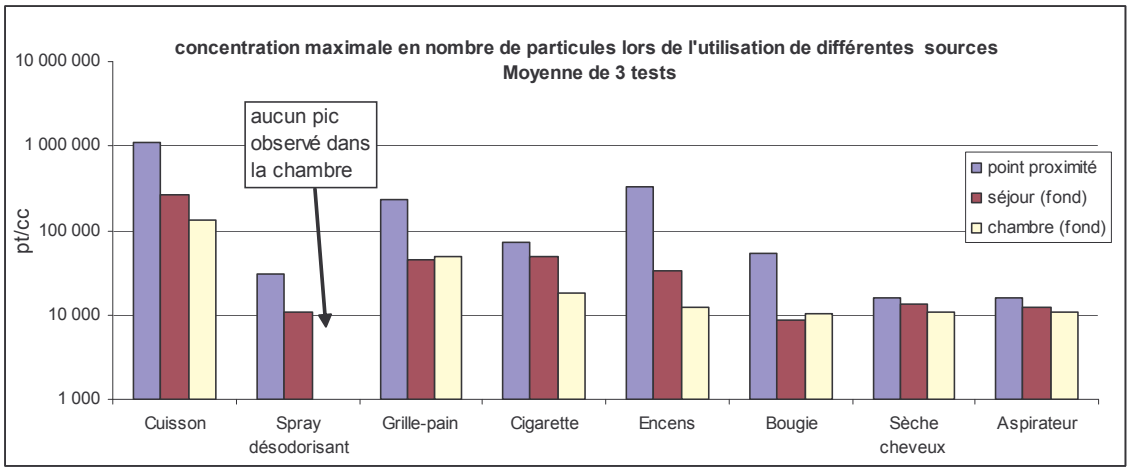


Figure 3.

6. Conclusion

Les premiers résultats montrent :

- un niveau élevé de concentration en particules près des sources ;
- un transfert rapide des particules ultrafines vers les autres pièces de la maison, y compris à l'étage, et des concentrations en nombre non négligeable atteintes dans les autres pièces ;
- une influence non négligeable de la ventilation mécanique contrôlée et de la hotte aspirante sur les niveaux de concentration dans la cuisine

La campagne « hiver » aura lieu du 7 janvier au 8 février 2008.

Références

Afshari A, Matson U, et al. (2005). "Characterization of indoor sources of fine and ultrafine particles: a study conducted in a full-scale chamber." *Indoor Air* 15(2): 141-150.

Delfino RJ, Sioutas C, et al. (2006). "Potential role of ultrafine particles in associations between airborne particle mass and cardiovascular health." *Environmental Health Perspectives* 113(8).(934-946).

Forastiere F, Staffoglia M, et al. (2005). "A case-cross-over analysis of out-of-hospital coronary deaths and pair pollution in Rome, Italy." *American Journal of Respiratory and Critical Care Medicine* 172.: 1549-1555.

Ibald-Mulli A, Wichmann HE, et al. (2002). " Epidemiological evidence on health effects of ultrafine particles." *Journal of Aerosol Medicine* 15: 189-201.

Penttinen P, Timonen KL, et al. (2001). "Ultrafine particles in urban air and respiratory health among adult asthmatics." *European Respiratory Journal, .* 17: 428-435.

Ramalho O, Bonneau E, et al. (2006). "Caractérisation des particules ultrafines émises par les activités domestiques." *Pollution Atmosphérique* N° 190: 143 - 150.

Timonen KL, Hoek G, et al. (2004). "Daily variation in fine and ultrafine particulate air pollution and urinary concentrations of lung Clara cell protein CC16." *Occupational and Environmental Medicine* 61: 908-914.

Wallace L (2002). "Continuous monitoring of ultrafine, fine, and coarse particles in a residence for 18 months in 1999-2000." *Journal of the Air & Waste Management Association* 52(7): 828-844.

Wallace L, Emmerich SJ, et al. (2004). "Source strengths of ultrafine and fine particles due to cooking with a gas stove." *Environmental Science & Technology* 38(8): 2304-2311.