N° d'ordre : 40764

THESE DE DOCTORAT

Présentée à l'Université Lille 1 Sciences et Technologies

par

Marion CARTERET

Pour l'obtention du grade de Docteur en Sciences

Spécialité : Optique et Lasers - Physico-Chimie - Atmosphère

Ecole Doctorale des Sciences de la Matière, du Rayonnement et de l'Environnement

---

EVALUATION DE L'EXPOSITION DES PERSONNES AUX POLLUANTS ISSUS DES CHAUFFAGES D'APPOINT AU PETROLE

Soutenue publiquement le 24 janvier 2012 devant la commission d'examen composée de :

Présidente :	LOCOGE Nadine	Professeur, Ecole des Mines de Douai
Rapporteurs :	BLONDEAU Patrice	Maître de conférences, Université de La Rochelle
	GRIMALDI Frédérique	Professeur, Université d'Aix-Marseille
Examinateurs :	DEROUBAIX Pierre	Ingénieur, ADEME
	HANOUNE Benjamin	Chargé de recherché, CNRS (co-encadrant de thèse)
	PAUWELS Jean-François	Professeur, Université Lille I (directeur de thèse)
	RAMALHO Olivier	Ingénieur, CSTB
	SCHADKOWSKI Corinne	Directrice, APPA Nord-Pas-de-Calais

ASSESSMENT OF INDIVIDUAL EXPOSURE TO AIR TOXICS FROM KEROSENE SPACE HEATERS

Thèse réalisée au sein du Laboratoire de PhysicoChimie des Processus de Combustion et de l'Atmosphère

PC2A – UMR 8522 CNRS/Université Lille 1

Bâtiment C11

Cité Scientifique

59655 – Villeneuve d'Ascq

A mes parents, pour le premier pied
que j'ai posé à l'Université,
plutôt que dans
un chausson
de Danse,

A Mimine, fière de sa doctorante,
qui n'a pas eu assez de vie
pour me voir Docteur,

REMERCIEMENTS

Ecrire les remerciements que j'adresse aux personnes à qui je dois en partie la réussite de ma thèse a une saveur particulière, puisque ce sont des lignes personnelles et non soumises à un code de rédaction scientifique. Ces remerciements seront rédigés à mon image : une partie sera conventionnelle et l'autre non. Je ne souhaite en effet pas froisser par trop d'originalité mes collaborateurs, ni les examinateurs de mon travail de thèse.

Je remercie vivement Jean-François PAUWELS, directeur du laboratoire PC2A et directeur de ma thèse, pour l'intérêt qu'il a porté à mon travail et pour m'avoir donné l'opportunité de participer à la vie du laboratoire. Merci pour la relecture assidue de l'intégralité de mon manuscrit de thèse.

Ce travail n'aurait probablement pas abouti sans l'aide de mon co-encadrant de thèse Benjamin HANOUNE. Pour adapter un proverbe russe à ma thèse, je dirais que poêle par poêle la barbe viendra. En effet, je te remercie très sincèrement pour ma formation expérimentale, relationnelle et rédactionnelle pendant ces trois années. Cinq rapports d'avancement, un manuscrit de thèse et un article publié, sans compter de nombreux résumés et la préparation de communications orales et par posters, correspondent à un investissement de ta part plutôt conséquent, qui n'a pas été et ne sera pas vain, et je tenais à te remercier du temps que tu m'as consacré, toujours dans la bonne humeur même en période de stress.

Je remercie Patrice BLONDEAU et Frédérique GRIMALDI, pour leurs regards critiques et constructifs sur mon travail de thèse, et pour avoir accepté d'en être les rapporteurs. Merci également à Olivier RAMAHLO pour l'échange de connaissances sur les poêles à pétrole. Ces trois ans ont été jalonnés de réunions avec Pierre DEROUBAIX que je remercie pour avoir suivi l'évolution de mon travail avec intérêt et sympathie. Corinne SCHADKOWSKI a joué un grand rôle dans la progression de ce projet et je l'en remercie vivement. Travailler en son agréable compagnie a été un réel plaisir, j'ai bénéficié de son expérience dans un domaine totalement nouveau pour moi. Cette dernière phrase correspond également parfaitement à ce que je souhaite dire de Nadine LOCOGE, qui a présidé mon jury de thèse, à ma plus grande joie.

Je remercie les membres du Département Chimie et Environnement de l'Ecole des Mines de Douai, en particulier Marie VERRIELE, Laurence DEPELCHIN et Thierry LEONARDIS pour les analyses de canisters et de tubes Tenax. Merci aux membres de l'Association pour la Prévention de la Pollution Atmosphérique (APPA) pour cette agréable collaboration, notamment grâce à Caroline CHAMBON et Aurore DECONINCK. Je tiens à mentionner ma gratitude à l'égard de Marc MARTEL, pour l'utilisation du matériel analytique de l'ATEM de Chimie de l'Université de Lille 1, pour sa gentillesse et ses compétences analytiques.

Pour reprendre et détourner une comparaison d'Alvin Straight dans *The Straight Story* réalisé par David Lynch (1999), casser une brindille c'est facile, mais rompre un fagot de brindilles attachées ensemble ça l'est

moins. Le fagot ce sont les membres du laboratoire. Je tiens à remercier chaque brindille pour ces trois années passées ensemble. Chacun à son niveau a contribué à ce projet, que ce soit par des conseils, des critiques, une aide technique, etc… Je souhaite néanmoins distinguer quelques brindilles sans vouloir offenser les autres, en particulier Denis PETITPREZ qui a été mon tuteur pendant mon monitorat. Un grand merci à Guillaume VANHOVE pour avoir éveillé ma curiosité à la combustion, pour son aide en chromatographie et ses conseils avisés. Je remercie Nicolas VISEZ pour les analyses de particules et pour m'avoir inspiré de l'intérêt pour ce champ d'étude. Pour la conception et le montage de mon enceinte expérimentale, j'adresse mes remerciements à Jean-Jacques LEDEE et Olivier HOMBERT. Merci à Sylvie GOSSELIN pour les analyses par HPLC, toujours faites efficacement et avec le sourire ; à Sébastien GERMAIN pour sa collaboration pendant la campagne de mesures ; ainsi qu'à Béatrice LECRENIER et Patrick BARTIER pour leurs services rendus et leur gentillesse, et à Valérie VILAIN pour m'avoir extirpée de la jungle administrative.

Lorsque la thèse devient un peu galère, il y fait bon ramer lorsque l'on a des compagnons de bureau formidables au point d'en rédiger une gazette (*La gazette du 108 – volume 1*, édition limitée et restreinte) avec Louise DECLERCK, Pauline DELCROIX et Maxence MENDEZ. Merci à Romain VANDEPUTTE et Sébastien GERMAIN pour nous avoir supportés avec patience et bonne humeur. Pour m'avoir transmis son bonheur d'habiter dans le Nord :-), je remercie particulièrement Pauline, et Maxence, je t'avoue que je suis incapable de te remercier à la hauteur (hors référentiel de mon siège) de ce que tu as pu m'apporter durant ces trois années. J'adresse également ma gratitude aux autres doctorants du laboratoire qui n'ont pas eu la chance de partager notre bureau, mais que j'ai pu côtoyer à diverses agréables reprises.

Nous abordons la partie non conventionnelle de ces remerciements que j'ai réservé aux personnes ayant contribué à cultiver le désir et la volonté nécessaires pour mener à terme ma thèse, certains pendant ces trois années et d'autres durant ces trois années (pour plus de précisions, cherchez la subtile différence dans le dictionnaire). Il est volontaire de ma part de ne pas expliciter outre mesure les raisons qui me poussent à remercier les personnes dont le prénom figure dans le dessin ci-dessous, puisque je ne maîtrise pas le pouvoir des mots. J'ai donc laissé parler mon instinct, à la façon d'un enfant qui offre un dessin pour les gens qu'il aime ou apprécie. Le jugement de mes lecteurs sera inévitable, mais ainsi que le dit Clamence dans *La Chute* d'Albert Camus, en parlant du verdict que les autres – confrères, amis, personnes connues ou inconnues – rendent sur chacun de nous : « Voilà ce qu'aucun homme (sinon ceux qui ne vivent pas, je veux dire les sages) ne peut supporter. La seule parade est dans la méchanceté. Les gens se dépêchent alors de juger pour ne pas l'être eux-même ».


Frédéric Laurence Jérémy Marine Hélène
Caroline Sylvain Camille Louis
Anne Cédric Miguel Estelle Charles
Marcel Jean Guillaume
Maxence Paul
Louise Nicolas Faustine David Jérémy Yveline
Mau Sonia
Simon Béatrice Olivier Corinne
Sandrine Thierry Joëlle
Eric Aline Stéphane Quentin Maxime Alex
Morgane Guillaume Claire Victoria
pour votre présence votre soutien et votre Amour
pour vos rires vos sourires et vos délires
MC-2012

RESUME

Les poêles à pétrole sont des appareils de chauffage dépourvus d'évacuation des gaz brûlés vers l'extérieur de la pièce. Ils ont été à l'origine de 49 cas d'intoxication aiguë au monoxyde de carbone en France en 2007. Ce type de chauffage est probablement responsable d'intoxications chroniques, mais celles-ci ne sont pas documentées. L'objectif de ce travail est d'une part la quantification en laboratoire des émissions gazeuses de poêles à pétrole récents et d'autre part l'élaboration de protocoles de mesure pour l'étude de la qualité de l'air à l'intérieur de logements du Nord-Pas-de-Calais.

Deux types de poêles à pétrole (à mèche et électronique) ont été étudiés dans une enceinte expérimentale instrumentée de 8 m^3. Ils émettent principalement NO, NO_2, CO, CO_2 et des particules. Trois COV préoccupants (formaldéhyde, benzène et 1,3-butadiène) ont également été quantifiés. Les facteurs d'émission dépendent du type de poêle et de la composition du carburant utilisé, en particulier de sa teneur en soufre et en esters méthyliques d'acides gras. L'accumulation de suies au cours de l'utilisation du poêle à mèche s'accompagne d'une forte augmentation des émissions de CO, qui peut conduire à des intoxications chroniques et aiguës.

Des mesures de terrain chez six volontaires ont permis de tester nos protocoles dans un milieu plus complexe que celui du laboratoire. Le rôle prépondérant des poêles à pétrole sur les niveaux de pollution dans les logements a été mis en évidence. Ce travail servira de base à une future étude épidémiologique portant sur la santé respiratoire des utilisateurs de tels appareils de chauffage.

Mots clef : Chauffage d'appoint à pétrole, chambre expérimentale, mesures de terrain, NO_x, CO_x, COV, particules, facteurs d'émission, facteurs influençant les émissions

ABSTRACT

Unvented kerosene space heaters were responsible for 49 cases of the acute carbon monoxide poisonings in France in 2007. This kind of heater may induce chronic intoxications, but no information on these is available. The goal of this thesis is the laboratory quantification of the gaseous emissions from recent models of kerosene space heaters and the preparation of an indoor air quality study in the Nord-Pas-de-Calais region.

Two types of kerosene heaters (wick and injector) were tested in an 8 m^3 instrumented environmental chamber. They emit mainly CO_2, CO, NO, NO_2, particles and some VOCs (especially formaldehyde, benzene, 1,3-butadiene). Emission factors depend upon the kind of heater and upon the type of fuel, and particularly on fatty acid methyl esters and sulphur content. The accumulation of soot on the wick heater during use leads to a high increase of the CO emission factor, and could be responsible for chronic and acute CO intoxications.

Field measurements were undertaken to assess the effective exposure of users to pollutants emitted by kerosene space heaters in a complex environment. Kerosene space heater emissions were found to be dominant. This work will be applied to an epidemiological study on respiratory diseases caused by these heaters.

Keywords : Kerosene space heater, chamber study, field study, NO_x, CO_x, VOC, particles, emission factors, parameters influencing emissions

VALORISATION DE LA THESE

A – Publications

Emission factors of gaseous pollutants from recent kerosene space heaters and fuels available in France in 2010. Carteret M., Hanoune B., Pauwels J.-F. *Indoor Air*, 2012, DOI: 10.1111/j.1600-0668.2011.00763.x.

Campagne pilote de mesure des émissions de polluants par les poêles à pétrole. Carteret M., Germain S., Hanoune B., Schadkowski C. et Deconinck A. *Pollution Atmosphérique*, 2012, en relecture.

B – Conférence internationale avec comité de lecture et publication des actes

A comparative study of kerosene space heaters gaseous pollutant emissions. 12th International Conference on Indoor Air Quality and Climate. Carteret M., Hanoune B. and Pauwels J.-F. June 5 – 10, 2011, Austin, Texas, USA.

C – Communications orales

Pollution par les poêles à pétrole actuels : Mesures en laboratoire et chez les utilisateurs. Carteret M., Hanoune B. et Pauwels J.-F. *Journée Interdisciplinaire sur la Qualité de l'Air*, février 2012, Villeneuve d'Ascq, France.

Emissions gazeuses et particulaires des chauffages d'appoint à pétrole. Carteret M., Hanoune B. et Pauwels J.-F. *Journées techniques RSEIN/OQAI sur les particules dans l'air intérieur.* 22 – 23 novembre 2010, Villeneuve d'Ascq, France.

Exposition des personnes aux polluants issus des chauffages d'appoint à pétrole. Carteret M., Hanoune B. et Pauwels J.-F. *Journée des doctorants Ecole des Mines-PC2A*, mai 2011, Douai, France.

Exposition des personnes aux polluants issus des chauffages d'appoint à pétrole. Carteret M., Hanoune B. et Pauwels J.-F. *Journée des doctorants de l'ADEME*, février 2010, Paris, France.

Exposition des personnes aux polluants issus des chauffages d'appoint à pétrole. Carteret M., Hanoune B. et Pauwels J.-F. *Journée des doctorants Ecole des Mines-PC2A*, mars 2009, Douai, France.

D – Posters

Exposition des personnes aux polluants issus des chauffages d'appoint à pétrole. Carteret M., Hanoune B. et Pauwels J.-F. *Journée Irepse*, mars 2012, Villeneuve d'Ascq, France.

Impact des chauffages au pétrole sur la qualité de l'air intérieur des logements. Carteret M., Deconinck A., Chambon C., Hanoune B., Schadkowski C., Pauwels J.-F. *Congrès de la Société Française de Santé Publique*, novembre 2011, Lille, France.

Exposition des personnes aux polluants issus des chauffages d'appoint à pétrole. Carteret M., Hanoune B. et Pauwels J.-F. *Journée IRENI*, juillet 2011, Douai, France.

Exposition des personnes aux polluants issus des chauffages d'appoint à pétrole. Carteret M., Hanoune B. et Pauwels J.-F. *Journée IRENI*, novembre 2010, Dunkerque, France.

Exposition des personnes aux polluants issus des chauffages d'appoint à pétrole. Carteret M., Hanoune B. et Pauwels J.-F. *Doctoriales*, juin 2010, Mons, Belgique.

Exposition des personnes aux polluants issus des chauffages d'appoint à pétrole. Carteret M., Hanoune B. et Pauwels J.-F. *Matinée des Chercheurs*, février 2010, Bruxelles, Belgique.

Exposition des personnes aux polluants issus des chauffages d'appoint à pétrole. Carteret M., Hanoune B. et Pauwels J.-F. *Journée Interdisciplinaire sur la Qualité de l'Air*, février 2010, Villeneuve d'Ascq, France.

« Placez votre main sur un poêle une minute et ça vous semble durer une heure.
Asseyez-vous auprès d'une jolie fille une heure et ça vous semble durer une minute.
C'est ça la relativité. »

Albert Einstein

SOMMAIRE

INTRODUCTION 27

APPROCHE REGLEMENTAIRE ET TECHNIQUE DES POELES A PETROLE 31

I.1. Les poêles à pétrole 31
I.1.1. La certification des poêles à pétrole 32
I.1.2. Description technique des poêles à pétrole à mèche 39
I.1.3. Description technique des poêles à pétrole électroniques 45

I.2. Les combustibles liquides 47

I.3. Conclusion 49

I.4. Références 49

ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE 51

II.1. Les dispositifs expérimentaux de laboratoire 51
II.1.1. Les dispositifs utilisant une hotte 52
II.1.2. Les enceintes expérimentales 54
II.1.3. Dispositif combiné 57
II.1.4. Conclusion 58

II.2. Les émissions des poêles à pétrole 60
II.2.1. Les oxydes d'azote 60
II.2.2. Le monoxyde de carbone 65
II.2.3. Le dioxyde de carbone 69
II.2.4. Le dioxyde de soufre 72
II.2.5. Les Composés Organiques Volatils 75
II.2.6. Les particules 84
II.2.7. Les Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques 89

II.3. Conclusion 95

II.4. Références 97

ECHANTILLONS, MATERIEL, TECHNIQUES DE PRELEVEMENT EN LABORATOIRE ET METHODES ANALYTIQUES 103

III.1. Les modèles de poêles étudiés au PC2A 103
III.1.1. Un modèle de poêle à mèche radiant : Tayosan 263 103
III.1.2. Un modèle de poêle électronique : Zibro SRE 25 E 105
III.1.3. Commentaires sur les poêles testés 107

III.2. Les combustibles liquides utilisés 109
III.2.1. Caractéristiques des carburants choisis 109
III.2.2. Composition des carburants 110
III.2.3. Pouvoir calorifique massique des carburants 112
III.2.4. Viscosité cinématique des carburants 113
III.2.5. Teneurs en carbone et en hydrogène des carburants 114
III.2.6. Conclusion sur la nature et la composition des carburants 115

III.3. L'enceinte expérimentale 117

III.4. Instrumentation et méthodes analytiques 120
III.4.1. Paramètres environnementaux mesurés en continu 121
III.4.2. Gaz mesurés en continu 122
III.4.3. Prélèvements de COV 122
III.4.4. Prélèvements de particules 124

III.5. Conclusion 126
III.6. Références 127
MESURE EN LABORATOIRE DES EMISSIONS DES POELES A PETROLE 129
IV.1. Facteurs d'émission de polluants gazeux 129
IV.1.1. Manuscrit de Indoor Air 129
IV.1.2. Mesures complémentaires 140
IV.1.3. Conclusion 144
IV.2. Emission de particules 145
IV.2.1. Résultats 146
IV.2.2. Discussion et conclusion 150
IV.3. Conclusion 151
IV.4. Références 153
ETUDE DES EMISSIONS DE POELES A PETROLE EN AIR INTERIEUR – CAMPAGNE DE MESURES 155
V.1. Matériel spécifique pour la campagne de mesure 156
V.1.1. Mesure en continu du monoxyde et du dioxyde de carbone, de l'humidité et de la température 156
V.1.2. Echantillonnage passif 157
V.1.3. Conclusion 167
V.2. Déroulement des mesures de terrain 167
V.3. Caractéristiques des logements échantillonnés 169
V.3.1. Sources de pollution des logements échantillonnés 170
V.3.2. Ventilation des logements 172
V.3.3. Caractérististiques des poêles à pétrole et des carburants 176
V.4. Résultats et discussion 178
V.4.1. Dioxyde de carbone 191
V.4.2. Monoxyde de carbone 192
V.4.3. Température et humidité 193
V.4.4. Oxydes d'azote et COV 194
V.4.5. Concentrations estimées et concentrations mesurées en logement 199
V.4.6. Comportement des utilisateurs de poêles à pétrole 202
V.4.7. Connaissances relatives aux risques d'utilisation de poêles à pétrole 203
V.5. Conclusion 204
V.6. Références 207
CONCLUSION GENERALE 211
ANNEXES 217

LISTE DES FIGURES

Figure 1. Schéma général d'un poêle à mèche 41
Figure 2. Schéma de la partie supérieure d'un brûleur à mèche 42
Figure 3. Photographie d'une mèche 42
Figure 4. Poêle radiant (RCA-37A) 43
Figure 5. Poêle à pétrole convectif (KS-47B) 43
Figure 6. Poêle à mèche à double combustion (DR-3000) 44
Figure 7. Poêle à mèche - réchaud (K-2E) 44
Figure 8. Schéma général d'un poêle à pétrole électronique 45
Figure 9. Dispositif expérimental de Yamanaka et al. [1979] 52
Figure 10. Dispositif expérimental de Woodring et al. [1985] 53
Figure 11. Dispositif expérimental de Oanh et al. [1999] 54
Figure 12. Dispositif expérimental de Traynor et al. [1982] 55
Figure 13. Chambre expérimentale de Keyanpour-Rad [2004] 56
Figure 14. Chambre expérimentale de Cote et al. [1974] 58
Figure 15. Poêle à mèche Tayosan 263 103
Figure 16. Poêle électronique Zibro SRE 25 E 105
Figure 17. Chromatogrammes de 4 carburants testés en laboratoire 111
Figure 18. Photographie de l'enceinte expérimentale du PC2A 118
Figure 19. Vitesse de l'air moyenne 119
Figure 20. Organisation générale du dispositif expérimental 120
Figure 21. Vue de dessus de l'enceinte expérimentale 121
Figure 22. Disposition des appareils pour la mesure de particules ultrafines 124
Figure 23. Disposition du compteur de particules dans la pièce 125
Figure 24. Vue éclatée du boîtier porte-filtre pour le prélèvement des particules sur filtre 125
Figure 25. Evolution de la consommation du poêle à mèche pendant son fonctionnement 140
Figure 26. Evolution de la consommation du poêle électronique pendant son fonctionnement 141
Figure 27. Evolution de la vitesse d'extraction pendant le fonctionnement du poêle à mèche 142
Figure 28. Evolution de la vitesse d'extraction pendant le fonctionnement du poêle électronique 142
Figure 29. Schémas de principe d'échantillonneurs de type diffusif (a) et à perméation (b) [Górecki et Namieśnik, 2002] 158
Figure 30. Vue éclatée d'un badge passif Ogawa NO_x/NO_2 159
Figure 31. Réaction chimique utilisée pour la mesure des nitrites utilisant le système réactif de Griess 160
Figure 32. Vue éclatée d'un badge G.A.B.I.E.™ 163
Figure 33. Badge G.A.B.I.E.™ et son positionnement par rapport au poêle à mèche lors du prélèvement. 164
Figure 34. Photo de l'UME^x 100 165
Figure 35. Vue éclatée du badge UME^x 100 165
Figure 36. Réaction de dérivation du formaldéhyde par la 2,4-DNPH. 166
Figure 37. Localisation géographique des logements échantillonnés 170
Figure 38. Volontaire H01 : Plan du logement et évolution hebdomadaire des niveaux de concentration de CO, CO_2, de la température et de l'humidité relative 180
Figure 39. Volontaire H02 : Plan du logement et évolution hebdomadaire des niveaux de concentration de CO, CO_2, de la température et de l'humidité relative 182
Figure 40. Volontaire H03 : Plan du logement et évolution hebdomadaire des niveaux de concentration de CO, CO_2, de la température et de l'humidité relative 184
Figure 41. Volontaire H04 : Plan du logement et évolution hebdomadaire des niveaux de concentration de CO, CO_2, de la température et de l'humidité relative 186
Figure 42. Volontaire H05 : Plan du logement et évolution des niveaux de concentration de CO, CO_2, de la température et de l'humidité relative 188

Figure 43. Volontaire H06 : Plan du logement et évolution hebdomadaire des niveaux de concentration de CO, CO_2, de la température et de l'humidité relative 190
Figure 44. Concentration moyenne hebdomadaire de CO_2 en fonction de la durée moyenne d'utilisation quotidienne du poêle à pétrole 192
Figure 45. Niveaux de concentration de NO_2 et NO_x en fonction de la durée moyenne d'utilisation quotidienne du poêle à pétrole 197
Figure 46. Prélèvements de composés carbonylés par pompage sur cartouche DNPH chez H01 198

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1. Caractéristiques législatives françaises et belges du pétrole lampant. 48
Tableau 2. Facteurs d'émission des NO_x relevés dans la littérature 63
Tableau 3. Concentrations de NO_2 mesurées en conditions réelles ou simulées d'utilisation de poêle à pétrole 64
Tableau 4. Concentrations de NO_2 moyennées sur deux semaines dans des logements avec ou sans gazinière et poêles à pétrole 65
Tableau 5. Facteurs d'émission de CO relevés dans la littérature 67
Tableau 6. Concentrations de monoxyde de carbone mesurées en conditions réelles d'utilisation des poêles à pétrole 68
Tableau 7. Facteurs d'émission de CO_2 relevés dans la littérature. 71
Tableau 8. Concentrations de CO_2 mesurées en environnements réels ou simulés 71
Tableau 9. Facteurs d'émission de SO_2 relevés dans la littérature. 74
Tableau 10. Concentrations de SO_2 mesurées en conditions réelles d'utilisation des poêles à pétrole 74
Tableau 11. Emissions de composés organiques [Mumford et al., 1992]. 77
Tableau 12. Facteurs d'émission de formaldéhyde relevés dans la littérature. 83
Tableau 13. Facteurs d'émission de particules 86
Tableau 14. Concentrations mesurées en hiver par Leaderer et al. [1999] 88
Tableau 15. Concentration de HAP en phase gazeuse [Ragland et al., 1985]. 91
Tableau 16. HAP présents dans un logement utilisant un poêle à pétrole [Mumford et al., 1991]. 92
Tableau 17. Concentrations moyennes ($ng.m^{-3}$) de HAP présents dans la fraction $PM_{2,5}$ [Ruiz et al., 2010]. 93
Tableau 18. Spécifications techniques du poêle Tayosan 263 104
Tableau 19. Spécifications techniques du poêle Zibro SRE 25 E 106
Tableau 20. Caractéristiques commerciales des carburants étudiés en laboratoire 109
Tableau 21. Teneurs règlementaires françaises et belges du pétrole lampant en soufre, benzène et composés aromatiques 110
Tableau 22. Composition des carburants utilisés 112
Tableau 23. PCI mesurés des carburants utilisés 113
Tableau 24. Viscosité cinématique à 20 °C des carburants utilisés au laboratoire 113
Tableau 25. Teneurs en carbone et hydrogène des carburants utilisés 114
Tableau 26. Propriétés des carburants utilisés 116
Tableau 27. Taux de renouvellement d'air dans l'enceinte expérimentale 118
Tableau 28. Facteurs d'émission d'eau en g par g de carburant 143
Tableau 29. HAP identifiés dans les émissions du poêle à mèche avec le carburant Zibro Bio 150
Tableau 30. Paramètres d'exposition des badges Ogawa en laboratoire 161
Tableau 31. Résultats d'analyse de NO_2 [Buzica et al., 2003] 161
Tableau 32. Comparaison des prélèvements actif et passif de formaldéhyde [Levin et al., 2007] 166
Tableau 33. Sources de pollution identifiées dans les logements, poêles à pétrole exceptés 171
Tableau 34. Ventilation des logements 174
Tableau 35. Caractéristiques des poêles et carburants par logement 177
Tableau 36. Concentrations de CO_2 mesurées dans les logements 191
Tableau 37. Moyennes glissantes des concentrations de CO mesurées dans les logements 192
Tableau 38. Température et humidité relative moyenne chez les volontaires 194
Tableau 39. Résultats des prélèvements passifs de NO_x, formaldéhyde et COV 195
Tableau 40. Concentration (en ppb) des composés prélevés sur cartouche DNPH chez H01 198
Tableau 41. Concentrations mesurées et estimées dans les logements (en ppm) 201

LISTE DES ANNEXES

Annexe 1. Analyse de composition des carburants 219
Annexe 2. Concentrations en COV mesurées dans l'enceinte expérimentale lors du fonctionnement des poêles à pétrole (échantillonnage sur 5 h, canisters de 6L, taux d'échantillonnage de 18 $mL.min^{-1}$, taux de renouvellement d'air de 6,6 h^{-1}) 249
Annexe 3. Protocole de prélèvement et d'analyse des badges Ogawa 251
Annexe 4. Ecarts relatifs calculés entre les mesures de NO_x par badges Ogawa et les mesures de l'analyseur à chimiluminescence en laboratoire 255
Annexe 5. Protocole de prélèvement et d'analyse des badges G.A.B.I.E.™ 259
Annexe 6. Protocole de prélèvement et d'analyse des badges UME^x 100 261
Annexe 7. Fiche d'information au volontaire 263
Annexe 8. Questionnaire "Cadre de vie" 267
Annexe 9. Fiche "Activités du logement" 279
Annexe 10. Fiche technique simplifiée du Dräger Pack III 281
Annexe 11. Questionnaire de fin d'exposition 283
Annexe 12. Questionnaire d'évaluation 285
Annexe 13. Questionnaire "Connaissance des risques" relatif au CO 287

INTRODUCTION

Le rôle de la pollution à l'intérieur des locaux sur la santé, notamment respiratoire, des personnes, a largement été mis en évidence [*Mølhave, 1991 ; Salome et al., 1996 ; Lanphear et al., 2001 ; Triche et al., 2002 ; Brunekreef, 2004*]. L'amélioration de la Qualité de l'Air Intérieur (QAI) des logements, locaux professionnels, et autres milieux confinés, est donc essentielle, au regard de l'importance du temps passé dans des environnements intérieurs. Les études de QAI, en plein essor depuis une trentaine d'années, requièrent principalement la connaissance des caractéristiques physiques (volume, ventilation, composition…) de l'environnement intérieur, des émissions polluantes caractéristiques des sources présentes, ponctuelles ou diffuses, de la réactivité de ces polluants entre eux et avec les surfaces, ainsi que de l'environnement extérieur.

Les principales sources de pollution identifiées dans les logements sont les matériaux mêmes des bâtiments, les produits d'aménagement (décoration, bricolage) et d'entretien, et surtout les phénomènes de combustion (cuisinières, chauffe-eau et radiateurs à gaz, poêles à bois et cheminées, poêles à pétrole lampant, fumée de tabac, …).

Une étude d'exposition individuelle des personnes aux NO_x, BTEX et CO a été menée par l'Association pour la Prévention de la Pollution Atmosphérique (APPA) en 2001-2002 sur 120 volontaires, habitant les villes de Dunkerque, Lille, Grenoble et Marseille [*Schadkowski, 2003*]. Elle a mis en évidence que les poêles à pétrole, dépourvus de conduit d'évacuation des gaz brûlés à l'extérieur, sont une source intérieure importante de monoxyde de carbone, émissions pouvant être à l'origine d'intoxications aiguës ou chroniques.

Si les intoxications aiguës font l'objet d'un recensement par les Centres Antipoison, qui indiquent qu'en 2007 les chauffages d'appoint à pétrole ont été la cause de 4,6 % des cas d'intoxication au monoxyde de carbone en France dus à des appareils domestiques, ce qui représente 49 cas [*Verrier et al., 2010*], aucune information n'est disponible sur les intoxications chroniques engendrées par l'utilisation de ces appareils.

Une étude spécifique [*Chambon et Schadkowski, 2004*] de 23 foyers de la Communauté Urbaine de Lille, utilisateurs de chauffages d'appoint à pétrole, a confirmé le lien entre poêles à pétrole et concentrations de CO. Cette étude a aussi mis en évidence que les poêles à pétrole sont souvent utilisés comme source principale de chauffage, alors qu'ils ne sont prévus que comme chauffages d'appoint, et que les utilisateurs méconnaissent le risque afférent. Il semble que ces appareils séduisent de plus en plus une population en difficulté économique, confrontée à la hausse des prix de l'énergie et à une offre marketing attractive.

Les émissions des poêles à pétrole ont été étudiées essentiellement dans les années 1980 – 1990, à l'étranger, et les quelques valeurs publiées ne reflètent donc ni l'évolution de la qualité des carburants ni les avancées technologiques des modèles de poêles disponibles en France. Ces études, menées aussi bien en laboratoire que dans des logements, avec des dispositifs expérimentaux très variés, ont mis en évidence que l'utilisation de ces

appareils de chauffage augmente les teneurs en polluants gazeux, tels que NO, NO_2, SO_2, CO, CO_2, et en polluants particulaires. Les poêles à pétrole émettent également des COV, incluant des hydrocarbures aliphatiques (de l'hexane au dodécane), des composés aromatiques (benzène, toluène, éthylbenzène, nitrobenzène, ortho-, méta-, para-xylènes, styrène et naphtalène) et des composés carbonylés. Certains poêles à pétrole produisent également des particules mutagéniques, en particulier des nitropyrènes.

Récemment un groupe de travail pluridisciplinaire a été constitué, associant plusieurs équipes de recherche (PC2A - Lille 1 - CNRS, Faculté des Sciences Pharmaceutiques et Biologiques de Lille - Lille 2, Ecole des Mines de Douai) et animé par l'APPA. Le projet MP3 (Mesure des Polluants des Poêles à Pétrole), dans lequel s'inscrit cette thèse, a pour but d'actualiser les données d'émission des poêles à pétrole, et de définir les protocoles d'une étude de plus grande ampleur en population (ESCAPE, Evaluation de l'impact Sanitaire des Chauffages d'Appoint au PEtrole) qui vise à mieux connaître l'exposition des jeunes enfants aux polluants de l'air intérieur émis par les poêles à pétrole et les effets de cette pollution sur leur santé respiratoire. Cette étude a bénéficié du soutien financier de l'Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie (ADEME) et de la Région Nord-Pas-de-Calais, aussi bien pour le projet de recherche que pour le financement de la thèse.

Une enceinte expérimentale de 8 m^3 a été construite au PC2A pour l'étude des émissions gazeuses de deux types de poêles à pétrole (à mèche et électronique), dans le but d'observer l'influence du type de poêle sur les facteurs d'émission des polluants. Cinq carburants, choisis pour leur composition très différente, ont été utilisés afin d'étudier le rôle de la composition chimique du combustible sur les facteurs d'émission.

Le dispositif expérimental est équipé pour la mesure de la température, de l'humidité relative ainsi que pour la mesure des polluants gazeux suivants : NO_x, CO_x, SO_2 et COV. Les mesures de particules ont été réalisées antérieurement à la construction de l'enceinte environnementale, dans deux pièces du laboratoire de grande taille (80 et 140 m^3). Quelques essais de prélèvement de particules sur filtre quartz ont été effectués dans l'enceinte de 8 m^3.

Nous avons mis en place une campagne de mesures pilote afin d'évaluer les niveaux d'exposition réels des utilisateurs de poêles à pétrole. Des mesures de NO_x, CO, CO_2 et COV dans six logements équipés de poêles à pétrole, situés dans un rayon de 30 km autour de Lille, ont été effectuées. Les mesures ont été complétées par des questionnaires, portant sur les caractéristiques du logement, du ou des poêles à pétrole, du carburant utilisé, mais également sur les habitudes d'utilisation et la connaissance des risques relatifs à leur emploi.

Le premier chapitre du manuscrit présente les différents types de poêles à pétrole, leurs principes techniques de fonctionnement ainsi que les combustibles liquides associés. Ce chapitre présente également les différents textes législatifs en vigueur concernant l'utilisation de ces appareils.

Les travaux précédemment publiés sur les émissions de polluants lors de l'utilisation de poêles à pétrole sont présentés dans le chapitre II. Dans un premier temps, nous présentons les dispositifs de laboratoire mis au point

pour ces études, et de manière plus générale pour l'étude des émissions polluantes d'appareils domestiques. Dans un second temps, nous répertorions, pour chaque catégorie de polluant émis par les poêles à pétrole, les sources, la toxicité et la règlementation en vigueur en air intérieur, les facteurs d'émission spécifiques par les poêles à pétrole, ainsi que les concentrations relevées dans les logements où ils sont utilisés.

Les deux poêles à pétrole que nous avons étudiés au laboratoire et les cinq combustibles liquides associés sont décrits dans le chapitre III, avec en particulier la composition des combustibles et certaines de leurs caractéristiques (pouvoir calorifique massique, viscosité, teneurs en carbone et en hydrogène). La description de l'enceinte expérimentale construite pour cette étude ainsi que l'instrumentation associée figurent également dans ce chapitre.

Le chapitre IV rassemble les résultats des expériences que nous avons menées, en laboratoire, sur les émissions gazeuses et particulaires des poêles à pétrole. Nous faisons ressortir tout particulièrement les facteurs d'émissions de polluants gazeux, et l'influence de l'entretien du poêle à mèche sur les émissions de CO.

Le dernier chapitre est consacré à la campagne de mesures pilote, réalisée en janvier et février 2011. Il comprend la description du matériel utilisé, le déroulement des mesures de terrain, les caractéristiques des logements échantillonnés et enfin les résultats des mesures. Sont présentées également les améliorations qui restent à apporter pour la réalisation d'une campagne de mesures à plus grande échelle, couplée à une évaluation de la santé respiratoire des utilisateurs de poêles à pétrole.

Références de l'introduction

Brunekreef B. (2004). The great indoor. *Thorax*, 59(9) : 729-730.

Chambon C. et Schadkowski C. (2004). Diagnostic de l'impact des feux à pétrole sur le monoxyde de carbone dans les logements. *Rapport APPA Nord-Pas-de-Calais*.

Lanphear B.P., Aligne C.A., Auinger P., Weitzman M. and Byrd R.S. (2001). Residential exposures associated with asthma in US children. *Pediatrics*, 107 : 505-511.

Mølhave L. (1991). Volatile organic compounds, indoor air quality and health. *Indoor Air*, 4 : 357-376.

Salome C.M., Brown N.J., Marks G.B., Woolcock A.J., Johnson G.M., Nancarrow P.C., Quigley S. and Tiong J. (1996). Effect of nitrogen dioxide and other combustion products on asthmatic subjects in a home-like environment. *Eur. Respir. J.*, 9 : 910-918.

Schadkowski C. (2003). Exposition individuelle aux oxydes d'azote et au monoxyde de carbone: premiers résultats de l'étude "Sentinelles de l'air" en région Nord-Pas-de-Calais. *Air pur*, 64 : 14-29.

Triche E.W., Belanger K., Beckett W.S., Bracken M.B., Holford T.R., Gent J., Jankun T., McSharry J-E. and Leaderer B.P. (2002). Infant respiratory symptoms associated with indoor heating sources. *Am.J. Respir. Crit. Care Med.,* 166 : 1105-1111.

CHAPITRE I

APPROCHE REGLEMENTAIRE ET TECHNIQUE DES POELES A PETROLE

I.1. LES POELES A PETROLE

Les poêles à pétrole sont des appareils mobiles de chauffage à combustible liquide, et dont le fonctionnement ne nécessite pas le raccordement à un conduit d'évacuation des fumées et des produits de combustion (article 1 du décret n° 2004-945 du 1er septembre 2004, J.O.R.F.[1] n° 209 du 1er septembre 2004; modifiant le décret n° 92-1280 du 10 décembre 1992, J.O.R.F. n° 288 du 11 décembre 1992). Ils ont été introduits en France en 1988.

La législation actuellement en vigueur en France impose un certain nombre d'exigences en matière de conception, de construction et d'équipements, figurant dans les annexes du décret n°2004-945. Le débit calorifique nominal des convecteurs à pétrole (ou puissance calorifique maximale) est en particulier limité à 4 650 W et un dispositif de contrôle d'atmosphère par mesure directe du dioxyde de carbone est obligatoire.

Les poêles à pétrole portant le sigle NF et commercialisés en France doivent être conformes à la norme française NF D 35-300 de décembre 1992. Elle concerne les appareils mobiles de chauffage d'appoint à usage domestique à fonctionnement intermittent à flammes utilisant du pétrole lampant obligatoirement désaromatisé, non raccordés à un conduit ou à un dispositif spécial d'évacuation des produits de combustion, et servant de support à la marque NF-Convecteurs à pétrole (NF 128, révision 13 - novembre 2010). La liste des produits certifiés NF par la société Certita (mandatée par l'AFNOR Certification) au 1er septembre 2011 comprend 117 produits classés en trois catégories (radiant, radiant soufflant et soufflant à régulation électronique), issus de 9 fabricants (4 japonais, 4 chinois et 1 sud-coréen). La puissance indiquée est comprise entre 740 et 4650 W pour les appareils de type soufflant à régulation électronique, et entre 2200 et 3000 W pour les poêles radiants. Il n'y a actuellement (novembre 2011) pas de poêle radiant soufflant portant la marque NF en vente en France.

Les documents traitant du fonctionnement des appareils mobiles de chauffage à combustible liquide, autres que les notices, sont peu nombreux. Ils ne sont en général pas fournis par le fabricant, mais peuvent être trouvés sur les sites Internet de revendeurs ou fabricants (www.toyotomi.jp par exemple) et de revendeurs (www.zibro.com, www.inverter.net). Ainsi, nous avons trouvé qu'il existe dans le commerce essentiellement deux types de chauffages d'appoint à pétrole qui diffèrent par le système d'injection du carburant dans la chambre de

[1] Journal Officiel de la République Française

combustion. De plus, les modèles de poêles à pétrole se distinguent par leur efficacité énergétique, leur confort d'utilisation (odeur, entretien…). La gamme de prix s'étend d'environ 90 à 250 euros pour les poêles à mèche, et de 170 à 1200 euros pour les poêles électroniques.

Les paragraphes suivants présentent les différents types de poêles à pétrole, les critères réglementaires de leur autorisation de mise sur le marché, ainsi que les principes généraux de fonctionnement de ces appareils.

I.1.1. LA CERTIFICATION DES POELES A PETROLE

I.1.1.1. CLASSIFICATION DES POELES A PETROLE SELON LA NORME FRANÇAISE NF-128

La norme française concernant les appareils mobiles de chauffage à combustible liquide (NF-128) classe les appareils par familles, selon le type, la nature du système de sécurité contre la viciation de l'atmosphère, la puissance nominale, le mode de combustion, et la forme de la carrosserie.

A l'intérieur d'une famille, le modèle est caractérisé par :

- son type générique :
  - radiant (R)
  - radiant soufflant (RS)
  - soufflant à régulation électronique (SRE)

- dans chaque type par son mode de combustion :

Pour R et RS :

- Avec brûleur à flammes (BF)
- Avec brûleur à flux laminaire nu ou avec accessoires (BL)
- Avec brûleur à flux laminaire à changement de section (BLCS)
- Le nombre de brûleurs par appareil
- L'association du brûleur avec une mèche particulière (diamètre, caractéristiques textiles, réglage d'usine sur l'appareil)

Pour SRE :

- Avec chambre de combustion à gazéification
- A gazéification
- A vaporisation sous pression
- A vaporisation type Bunsen

I.1.1.2. PRESCRIPTIONS DE SECURITE DU DECRET N° 2004-945 DU 1ER SEPTEMBRE 2004

Le décret n° 2004-945 du 1er septembre 2004, modifiant le décret n° 92-1280 du 10 décembre 1992 édicte les prescriptions de sécurité relatives aux appareils mobiles de chauffage à combustible liquide et à leurs pièces de rechange.

- Les poêles à pétrole doivent résister aux contraintes mécaniques et thermiques liées à leur utilisation.
- Leur puissance nominale doit être au plus égale à 4 650 W.
- Ils doivent être stables et résistants au renversement.
- L'allumage doit être obtenu par un dispositif sûr intégré à l'appareil.
- Toute flamme ou partie de flamme se développant hors d'une enceinte doit être isolée par un dispositif évitant toute possibilité de contact accidentel avec des personnes ou des objets.
- L'élévation de la température des côtés et de la façade, à l'exception des grilles de protection et des grilles de sortie d'air de convection, ne doit pas dépasser 60°C pour les parties métalliques peintes ou non, 65°C pour les parties métalliques émaillées, 80°C pour les parties en toute autre matière. La température des grilles de protection des appareils de type radiant ne doit pas dépasser 350°C. La température de l'air soufflé des appareils de type soufflant ne doit pas dépasser 100°C à un mètre du centre de la face avant ou de chacune des faces de sortie d'air de l'appareil. La température de dessus de tous les types d'appareils ne doit pas dépasser 105°C.
- La qualité de la combustion doit être telle qu'à tous les régimes prévus par le constructeur, la teneur en CO dans les produits neutres (produits de la combustion privés d'air et de vapeur d'eau) ne soit pas supérieure à 50 ppm. De plus, l'appareil étant placé en chambre étanche après mise hors service du dispositif de contrôle d'atmosphère, la teneur en CO doit être inférieure à 80 ppm lorsque la combustion s'est poursuivie jusqu'à ce que la teneur en CO_2 atteigne 2,3%.

Les appareils doivent posséder :

- Un dispositif interdisant tout débordement de combustible ou amorce de fonctionnement anormal en cas de renversement de l'appareil ;
- Un dispositif interdisant l'emballement du brûleur, notamment en cas de rallumage à chaud ;
- Un dispositif de contrôle d'atmosphère permettant la mesure directe de CO_2 ou tout autre procédé indépendant des conditions d'utilisation et assurant le même niveau de sécurité et permettant l'arrêt de l'appareil par extinction totale du brûleur avant que la teneur en CO_2 n'atteigne 0,8% (± 0,2%) ;
- Un dispositif interdisant de procéder au rallumage de l'appareil une fois arrêté, par déclenchement d'une sécurité tant que la cause ayant motivé cet arrêt n'a pas disparu ;

- Un dispositif assurant la mise hors fonctionnement de l'appareil, aussi bien en cas de défaillance de l'énergie auxiliaire nécessaire à l'alimentation des dispositifs assurant son fonctionnement et sa sécurité, qu'en cas de défaillance de ces dispositifs.

Les poêles à pétrole doivent être munis de plaques signalétiques et de mise en garde :

- La plaque signalétique doit être apparente et solidement fixée au poêle à pétrole. Elle doit mentionner : « Conforme aux exigences de sécurité » ; le nom et l'adresse du constructeur ou du responsable de la première mise sur le marché ; la désignation commerciale de l'appareil ; le type, le numéro d'ordre et l'année de fabrication ; la date de l'attestation de conformité ; la puissance (en Watt) ; la consommation maximale (en g/h) ; ainsi que la nature du combustible à utiliser.
- Les appareils doivent porter une deuxième plaque portant la mention suivante : « Attention : cet appareil dégage des produits de combustion. Il ne doit être utilisé que de façon intermittente. Un dispositif de sécurité arrête son fonctionnement si le local est mal aéré. Il convient de consulter la notice, notamment pour l'aération et l'entretien. Ne rien poser sur la partie supérieure ou sur la face avant de l'appareil. »
- Les appareils portent une troisième plaque apparente au niveau de la porte du réservoir et solidement fixée portant la mention suivante : « Attention : utiliser uniquement du combustible liquide pour appareils mobiles de chauffage conforme aux spécifications en vigueur. »

Une notice, rédigée en français, doit accompagner le poêle à pétrole et doit comporter les mentions suivantes :

- La nature du combustible à utiliser et les conditions dans lesquelles il doit être stocké ;
- Les indications nécessaires relatives à la source d'alimentation du dispositif d'allumage et à la mise en place ou au remplacement de cette source ;
- Les modes d'allumage, d'extinction et de réglage des différentes allures de chauffe ;
- Les règles d'utilisation de l'appareil, en rappelant l'obligation de n'utiliser l'appareil que dans des pièces ventilées, disposant d'une entrée d'air suffisante et d'une sortie d'air efficace et en précisant le volume minimal de chauffe auquel l'appareil est destiné ;
- Un avertissement concernant l'interdiction d'intervenir sur les dispositifs de sécurité, ce type d'intervention ne devant être effectué que par le constructeur ou un spécialiste qualifié ;
- Le mode d'emploi des différents dispositifs de commande.

I.1.1.3. ESSAIS DE CONFORMITE

Les poêles à pétrole certifiés NF mis sur le marché en France sont conformes à la norme NF D35-300 de décembre 1992, mais les différents tests pratiqués sur ces poêles avant l'apposition du sigle NF sont complétés ou modifiés par les règles de certification NF-128 de novembre 2010 (révision 13). La suite de ce paragraphe donne un aperçu des tests subis par les convecteurs à pétrole, permettant leur mise en vente en cas de succès. Les

essais portent sur un appareil prélevé tous les 3000 produits par ligne de production si le lot est supérieur à 3000 appareils, ou sur un appareil prélevé tous les 1000 si le lot est inférieur à 3000 appareils.

I.1.1.3.1. Dispositifs de sécurité

- Dispositif de contrôle de l'atmosphère

Malgré le fait que les intoxications soient principalement dues au monoxyde de carbone, les détecteurs de CO ne sont pas systématiquement intégrés aux modèles actuellement commercialisés (sauf dans les modèles de poêles électroniques vendus par Inverter). La teneur en CO pour laquelle l'appareil se coupe n'est pas précisée. Il semblerait judicieux de rendre obligatoire le contrôle de la teneur en CO pour tous les appareils.

Tous les appareils sont obligatoirement équipés d'un détecteur de CO_2. Avant son intégration au poêle à pétrole, il est vérifié que le détecteur de CO_2 réponde au cahier des charges. Il doit avoir un temps de réponse inférieur à 15 min.

Les essais sont ensuite réalisés pour deux températures initiales d'une pièce étanche de 17,5 m^3 : 5 ± 1 °C et 15 ± 1 °C. L'étanchéité est définie par la réduction horaire de la teneur en CO_2 après établissement d'une teneur homogène. La diminution de cette teneur deux heures plus tard après doit être inférieure à 0,1 %. L'appareil de chauffage doit s'arrêter complètement par extinction du brûleur avant que la teneur en CO_2 n'atteigne **0,8 ± 0,2 %** (soit 8000 ± 2000 ppm).

- Emballement du brûleur

L'emballement du brûleur, se traduisant par une augmentation de la consommation du combustible, ne doit pas se produire. Il est vérifié que la variation de la consommation du poêle sur 5 min n'excède par la consommation horaire avec une marge supérieure à 10 %.

- Energie auxiliaire

Une défaillance de l'énergie auxiliaire (piles ou prise secteur) doit entraîner la mise en sécurité de l'appareil.

- Essais de stabilité de l'appareil

Le dispositif antichoc est testé ainsi que le dispositif antirenversement. En cas de renversement, l'extinction de l'appareil doit se produire, et le poêle ne doit pas s'enflammer.

I.1.1.3.2. Sécurité contre les risques d'incendie

Des essais de sécurité contre les risques d'incendie sont effectués, en posant deux types de tissus [1] durant dix minutes sur la moitié du poêle en fonctionnement. Ils ne doivent pas s'enflammer. L'allumage et le rallumage à chaud de l'appareil, quelle que soit la température du brûleur, sont également testés.

I.1.1.3.3. Qualité de la combustion

Les prélèvements effectués dans le but d'évaluer les produits de la combustion se font de façon à représenter un fonctionnement en régime permanent de l'appareil, via un système de captation des fumées. Les oxydes de carbone sont détectés à l'aide d'analyseurs à absorption dans l'infrarouge. Les oxydes d'azote sont analysés par chimiluminescence.

- Emissions de monoxyde de carbone

Deux types de tests concernant les émissions de monoxyde de carbone CO sont menés.

Un premier test est **réalisé en local aéré**, avec une température de 23 ± 5 °C et une humidité relative comprise entre 30 et 90 %. Le contrôle de la combustion en local aéré nécessite la mesure de la teneur en monoxyde de carbone **$[CO]_N$**, qui ne doit pas excéder **50 ppm**. $[CO]_N$ est la teneur rapportée aux produits de la combustion privés d'air et de vapeur d'eau, c'est-à-dire en conditions de combustion neutre, combustion effectuée avec la quantité d'oxygène exactement et théoriquement nécessaire pour oxyder complètement le combustible. Cette teneur est calculée à partir de la formule suivante :

$$[CO]_N = [CO_2]_N \times \frac{[CO]_M}{[CO_2]_M} \quad (1)$$

Avec :

$[CO_2]_N$ = teneur en CO_2 dans les produits de combustion privés d'air et de vapeur d'eau, égale à 15 % pour le pétrole lampant désaromatisé, d'après la norme NF-128

$[CO]_M$ =concentration de CO mesurée dans l'échantillon moyen prélevé au cours de l'essai de combustion en local aéré

$[CO_2]_M$ =concentration de CO_2 mesurée dans l'échantillon moyen (le niveau de fond doit être soustrait)

[1] Un voilage composé de 91 % de polyester et 9 % de lin (masse surfacique 100 g.m^{-2} ± 10 %) et un tissu composé de 65% de polyester et 35 % de viscose (masse surfacique 110 g.m^{-2} ± 10 %).

Ainsi, pour une concentration de CO_2 mesurée dans l'échantillon moyen $[CO_2]_M$ = 3 000 ppm, la limite de la teneur en monoxyde de carbone $[CO]_N$ fixée à 0,005 % implique que la concentration de CO mesurée dans l'échantillon moyen $[CO]_M$ ne dépasse pas 1 ppm.

Le contrôle de la **qualité du brûleur en local faiblement ventilé** pour un fonctionnement de huit heures consécutives est réalisé dans un local de 39 ± 4 m^3 possédant un taux de renouvellement d'air de 0,4 ± 0,1 h^{-1}. Le dispositif de contrôle de l'atmosphère est préalablement mis hors service. La teneur horaire en CO, calculée en intégrant la concentration mesurée durant les huit heures de fonctionnement, ne doit pas excéder **10 ppm** (recommendation de l'OMS : 9 ppm pour 8 h d'exposition [*OMS, 2010*])**.**

- Emissions d'oxydes d'azote

En **local aéré**, un contrôle de la concentration d'oxydes d'azote doit être réalisé par un prélèvement au-dessus du brûleur du poêle à pétrole dans les gaz de combustion non dilués, dans une zone où la concentration de CO_2 est supérieure à 50 000 ppm.

Pour les poêles de type radiant et radiant soufflant, les concentrations mesurées ne doivent pas dépasser **30 ppm** pour le monoxyde d'azote NO et **3 ppm** pour le dioxyde d'azote NO_2.

Pour les poêles de type soufflant à régulation électronique, les concentrations ne doivent pas dépasser **100 ppm** pour NO et **4 ppm** pour NO_2, dans les conditions suivantes : le poêle est placé dans le local étanche de 17,5 m^3, refroidi à 15 °C, avec la porte ouverte. La température de l'appareil est programmée à 21 °C et maintenue pendant une heure en autorégulation. Les mesures de concentration sont également faites pendant une période maximale de dix minutes au cours de laquelle la teneur en CO_2 est supérieure à 5 %.

I.1.1.3.4. Autres critères et obligations

Après un fonctionnement de 250 heures (réparties sur 20 jours environ, avec des arrêts, des remises en route et des réapprovisionnements en carburant), le poêle à pétrole est de nouveau testé. Si la norme NF D35-300 précise que les essais doivent porter sur le dispositif de contrôle d'atmosphère, le contrôle de la combustion en local aéré (teneur en CO), le contrôle de la qualité du brûleur en local étanche et la concentration d'oxydes d'azote dans les gaz de combustion, la procédure NF-128 ne porte quant à elle que sur la mesure des débits de consommation du carburant, le contrôle de la combustion en local aéré (CO uniquement) et le dispositif de contrôle de l'atmosphère (CO_2).

D'autres paramètres, tels que la température des pièces susceptibles d'être manipulées, de l'habillage, et du support de l'appareil, sont testés. Suivant la nature des matériaux, leur température doit être comprise entre 35 et 80 °C au-dessus de la température ambiante. De plus, les réglages d'origine ne doivent pas pouvoir être modifiés

par l'usager. Chaque pièce amovible doit pouvoir être changée et remontée sans risque de se tromper en suivant les instructions du fabricant, afin de n'affecter ni la sécurité, ni le fonctionnement correct de l'appareil. Les opérations courantes de nettoyage doivent pouvoir être réalisées sans démontage ni outillage important.

Les notices fournies avec les poêles à pétrole doivent obligatoirement préciser que la pièce dans laquelle est utilisé l'appareil doit être munie d'une entrée d'air suffisante et d'une sortie d'air efficace (section minimale de 50 cm^2 pour chaque orifice). Elles doivent également traiter du remplacement de la mèche pour les poêles à mèche. Les utilisateurs sont supposés avoir lu la notice avant l'utilisation de leur appareil, ce qui n'est pas toujours le cas.

En plus des plaques signalétiques et de mise en garde rendues obligatoires par le décret n° 2004-945 du 1er septembre 2004 (cf. paragraphe I.1.1.2.), l'avertissement « chauffage d'appoint à fonctionnement intermittent » doit figurer sur les emballages des poêles à pétrole. La norme NF-D35-300 requiert l'apposition d'une plaque signalétique sur le poêle indiquant le type de carburant à utiliser : « Attention : utiliser uniquement un combustible liquide conforme aux arrêtés du 8 janvier 1998 et du 18 juillet 2002 ». Cette dernière mention est légèrement différente de celle mentionnée dans le décret n° 2004-945 (cf. paragraphe I.1.1.2.), obligeant l'emploi d'un combustible liquide « conforme aux spécifications en vigueur ».

I.1.1.4. CONCLUSION

Concernant les émissions polluantes des poêles à pétrole, les modèles de poêles actuellement sur le marché ne sont indirectement testés que pour le monoxyde de carbone et les oxydes d'azote. Aucune obligation ne concerne les particules ou d'autres produits de combustion, et le consommateur n'en est pas informé.

Il n'est pas expliqué la raison d'être de certaines conditions normatives de mesure, par exemple le choix des teneurs en CO_2 (supérieures à 5%) pour la mesure des oxydes d'azote en local aéré (cf. paragraphe I.1.1.3.3.). Il n'est pas non plus précisé pourquoi les limites de concentration d'oxydes d'azote des poêles électroniques sont supérieures à celles des poêles à mèche. Les mesures faites dans les gaz de combustion non dilués ne nous permettent pas d'estimer les limites de concentration que les poêles pourraient atteindre en conditions réelles d'utilisation. Ainsi, la cohérence entre les tests faits selon les protocoles de la règlementation NF-128 et l'utilisation en conditions réelles des poêles à pétrole n'est pas établie. En revanche, lors du test de la qualité du brûleur en local faiblement ventilé, la teneur moyenne maximale en monoxyde de carbone est de 10 ppm sur 8 h de fonctionnement, ce qui correspond presque à la recommandation de l'OMS [*2010*] en air intérieur de 9 ppm (8 h).

Certaines mesures ont été faites en local étanche de 17,5 m^3, ce qui correspond à une taille de pièce qui est loin de correspondre au volume minimum (en général une quarantaine de m^3) dans lequel utiliser un poêle à pétrole en conditions « réelles ». L'étanchéité est définie par la réduction horaire du dioxyde de carbone, mais l'apport en dioxygène pour l'entretien de la combustion n'est pas mentionné dans la description de la chambre étanche.

L'établissement de règles de certification est utile dans le sens où elles permettent d'une part de contrôler les produits disponibles à la vente et d'autre part d'éviter la présence de produits dangereux sur le marché, mais leur portée a des limites. Elles induisent en effet l'utilisateur en erreur en lui faisant croire à une utilisation inoffensive de son appareil de chauffage par manque d'informations de la part du fabricant. Par exemple, les plaques signalétiques figurant obligatoirement sur les appareils font mention de l'existence d'un dispositif de sécurité arrêtant le fonctionnement du poêle si la pièce est mal aérée. Les plaques indiquent également que le convecteur à pétrole doit être utilisé de façon intermittente, mais aucun organisme ou fabricant ne donne de durée d'utilisation maximale. Il est alors possible que les utilisateurs fassent entièrement confiance au dispositif de sécurité et n'aèrent qu'en cas d'extinction de leur appareil, surtout si le constructeur s'en sert comme d'un argument de vente… *[« Le détecteur de CO_2 assure une parfaite qualité de l'air. L'appareil vous prévient lorsque le taux de CO_2 augmente et s'arrête quand il est trop élevé », site Zibro.fr, 17/01/2011]*.

I.1.2. DESCRIPTION TECHNIQUE DES POELES A PETROLE A MECHE

Les poêles à mèche sont les modèles de convecteurs à pétrole les plus anciens et les moins sophistiqués.

I.1.2.1. PRINCIPE GENERAL DES POELES A MECHE

Les figures 1 et 2 représentent le schéma général de la partie intérieure d'un poêle à mèche et d'un brûleur (d'après US Patent 4,626,197). Le brûleur (1) du poêle à mèche comprend une partie permettant l'approvisionnement en carburant (2) par capillarité et une zone de combustion (3). L'approvisionnement en carburant depuis le réservoir principal (4) se fait grâce à un réservoir secondaire circulaire (5) rempli jusqu'à un niveau prédéterminé, dans lequel trempe la partie inférieure de la mèche en fibre de verre (6). La mèche est maintenue sur un support coulissant de façon verticale (7), faisant partie d'un mécanisme de réglage de sa position par l'intermédiaire de la rotation d'un bouton externe (8). La paroi du cylindre (9) et la paroi interne (10) constituent une zone de maintien de la mèche.

La chambre de combustion (11) est définie par les cylindres concentriques (12) et (13). Le cylindre interne (12) possède des trous à sa surface (14) et sur le dessus (15). Un déflecteur en forme d'entonnoir (16) dévie l'air

quittant le système par les ouvertures supérieures (15), pour permettre la combustion. Le débit d'air est limité par une plaque (17) munie de trous (18). Les trous (14) et (19) formés dans les cylindres (12) et (13) ont des diamètres variables suivant la hauteur à laquelle ils sont situés, plus larges en partie haute afin d'augmenter l'apport en oxygène dans cette partie du brûleur, et plus petits en partie basse, limitant ainsi la quantité d'air pénétrant dans la chambre de combustion. Ils jouent un rôle dans la régulation la position de la flamme et la température de la mèche. Dans le but d'améliorer le rendement de combustion du poêle à mèche, la zone de combustion se situe dans la partie supérieure de la chambre de combustion, la zone inférieure permettant le pré-mélange de l'air et des vapeurs de carburant.

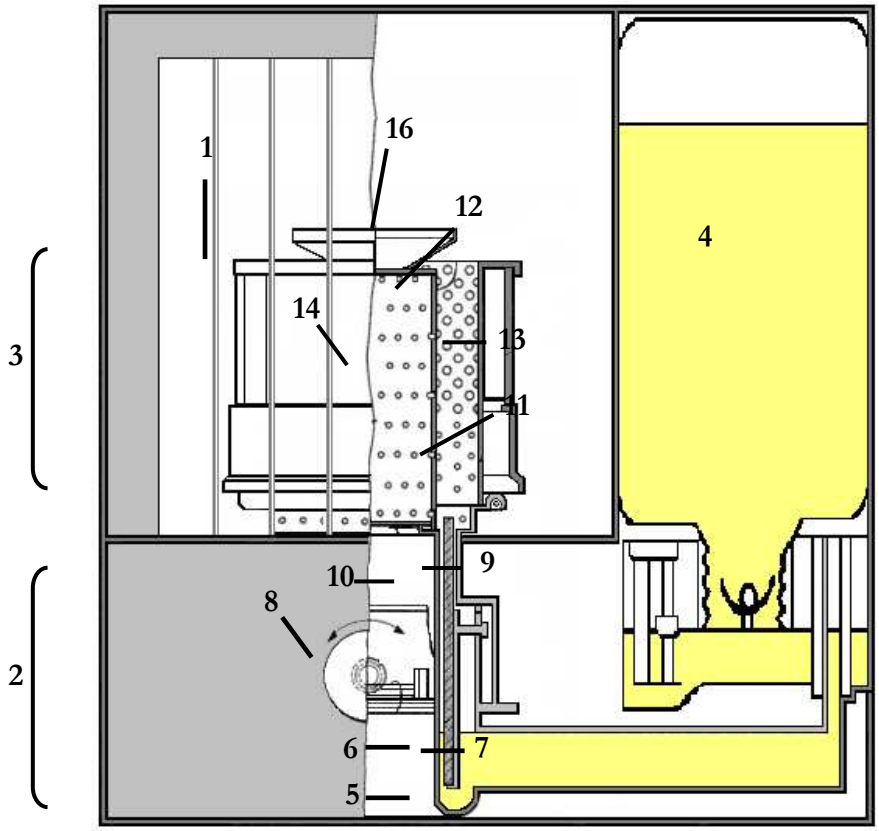


Figure 1. Schéma général d'un poêle à mèche

1 : Brûleur
2 : Approvisionnement en carburant
3 : Zone de combustion
4 : Réservoir principal
5 : Réservoir secondaire circulaire
6 : Mèche (fibre de verre)
7 : Support coulissant de la mèche
8 : Bouton de réglage de la hauteur de mèche
9 : Paroi circulaire externe
10 : Paroi circulaire interne
11 : Chambre de combustion
12 : Cylindre métallique interne
13 : Cylindre métallique externe
14 : Trou (paroi cylindrique)
16 : Déflecteur

La partie supérieure de la mèche (Figure 3), zone d'évaporation du pétrole lampant, est enflammée par un système d'allumage. La puissance calorifique du poêle peut être modifiée en ajustant la hauteur de mèche cylindrique présente dans la chambre de combustion. L'énergie générée par cette combustion chauffe la partie supérieure de la mèche et contribue à augmenter la quantité de carburant évaporée. Ainsi, la zone de combustion est graduellement étendue.

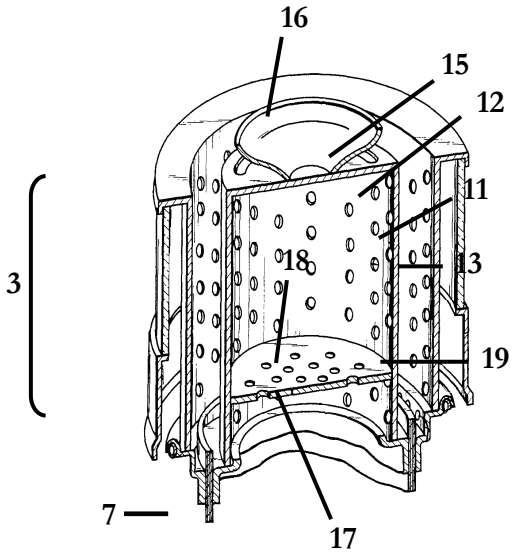


Figure 2. Schéma de la partie supérieure d'un brûleur à mèche

3 : Zone de combustion
7 : Mèche
11 : Chambre de combustion
12 : Cylindre métallique interne
13 : Cylindre métallique externe
15 : Trou (partie supérieure du brûleur)
16 : Déflecteur
17 : Plaque
18 : Trou (horizontaux)
19 : Trou (partie inférieure du brûleur)



Figure 3. Photographie d'une mèche

A l'usage, du goudron a tendance à adhérer aux bords de la mèche, impliquant une formation accrue de suies et de monoxyde de carbone ou l'entrave des mouvements verticaux de la mèche. De plus, si le carburant utilisé contient de l'eau, la mèche sera également détériorée et la combustion moins complète. Pour ces raisons, il est recommandé de changer la mèche (Figure 3), à une fréquence qui n'est pas forcément indiquée dans les notices d'utilisation. Le changement de mèche par un professionnel revient à environ 80 euros, ce qui représente 30 à 90 % du prix d'achat du poêle. Si l'usager souhaite changer la mèche de son convecteur lui-même, le prix sera de l'ordre d'une vingtaine d'euros (donc d'environ 8 à 20 % du coût initial du poêle) en l'achetant sur Internet, si la référence de mèche existe et si elle est toujours commercialisée.

L'appellation « poêle à mèche » englobe plusieurs sous-catégories détaillées dans les paragraphes suivants.

I.1.2.2. POELE A MECHE RADIANT

Dans ce type de poêle (Figure 4), commercialisé en France, le pétrole monte par capillarité dans un brûleur à flux laminaire grâce à la mèche de fibre de verre circulaire [*Lionel, 1986*], où il est consommé pour porter la chambre de combustion à environ 800°C. Ce type de brûleur produit principalement de la chaleur par rayonnement (70% de rayonnement, 30% de convection). Il est donc appelé poêle radiant. L'énergie auxiliaire utilisée pour l'allumage automatique de l'appareil est fournie par des piles. Les chauffages de type radiant ont une grille couvrant la mèche. La flamme est bleue et un réflecteur dégage la chaleur en dehors de l'appareil [*Ragland et al., 1985*].



Figure 4. Poêle radiant (RCA-37A)

I.1.2.3. POELE A MECHE CONVECTIF

Ce type de poêle (Figure 5) n'est pas commercialisé en France. Pendant la combustion, un apport d'oxygène dans la partie supérieure du brûleur à flamme permet d'obtenir une combustion presque complète (1200°C). Ce type de brûleur produit un rayonnement de 30 % et une convection de 70 %, d'où son adjectif « convectif », le contraire du type radiant précédemment cité. Grâce au brûleur à flamme, la chaleur se propage dans la pièce de manière uniforme. Selon les modèles, il s'allume manuellement (allumettes) ou automatiquement (piles nécessaires). Comparé aux poêles à mèche radiants à flux laminaire commercialisés en France, le brûleur à flamme permet de chauffer le même volume mais avec moins de puissance, en raison d'un meilleur rendement énergétique.



Figure 5. Poêle à pétrole convectif (KS-47B)

I.1.2.4. POELE A MECHE A DOUBLE COMBUSTION

Il existe également des systèmes à double combustion (Figure 6), vendus en France (notamment de la marque Zibro), plus performants en termes de chauffage. Avec une deuxième chambre de combustion, le pétrole

est quasiment brûlé en intégralité et les émissions de CO, CO_2 et NO_2 sont réduites (d'après le site www.toyotomi.jp consulté le 03/11/2011). Le système d'allumage automatique nécessite des piles.



Figure 6. Poêle à mèche à double combustion (DR-3000)

I.1.2.5. POELE A MECHE – RECHAUD

De façon anecdotique, il existe des réchauds à pétrole à allumage manuel, notamment utilisés à Mayotte, servant également de chauffage (Figure 7).



Figure 7. Poêle à mèche - réchaud (K-2E)

I.1.3. DESCRIPTION TECHNIQUE DES POELES A PETROLE ELECTRONIQUES

Les poêles électroniques (SRE) génèrent de la chaleur par combustion d'un carburant atomisé et vaporisé par une surface chauffée, après un mélange forcé avec de l'air primaire. Ils sont constitués d'un réservoir permettant l'approvisionnement en carburant, d'un dispositif pour la vaporisation et la combustion du carburant, et enfin d'un système d'approvisionnement d'air pour la combustion (Figure 8).

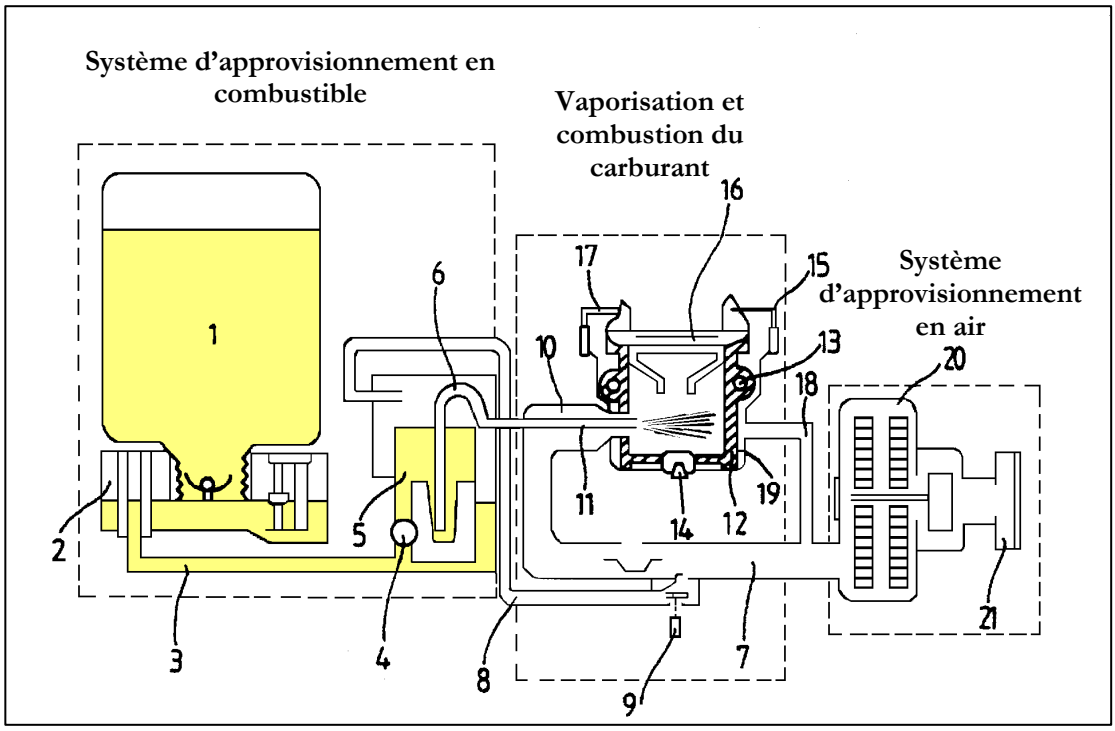


Figure 8. Schéma général d'un poêle à pétrole électronique

1 : Réservoir principal
2 : Réservoir doseur
3 : Conduit d'alimentation en carburant
4 : Pompe électronique
5 : Régulateur de niveau de carburant
6 : Orifice du système d'alimentation en carburant
7 : Apport d'air
8 : Tube pressurisant
9 : Solénoïde
10 : Embout
11 : Aiguille
12 : Carburateur
13 : Préchauffeur
14 : Thermistance du préchauffeur
15 : Bougie d'allumage
16 : Tête du brûleur
17 : Détecteur de flamme
18 : Tube de refroidissement
19 : Manchon de refroidissement
20 : Ventilateur
21 : Filtre

Un tuyau (3) permet le passage du carburant du réservoir amovible (1) à un réservoir interne (2). Une pompe électronique (4) permet l'aspiration du pétrole à travers le conduit d'alimentation en carburant, son débit constant étant régulé par un régulateur de niveau (5). Le carburant est acheminé du régulateur de niveau au système de combustion via un autre conduit (6).

Le système d'approvisionnement en air est relié au système de combustion (passage (7)). Un solénoïde (9) situé sur le passage de l'air peut permettre ou non l'apport d'air dans le régulateur de niveau de carburant grâce à un tube pressurisant (8). Un carburateur (12), connecté à l'embout (10), vaporise le carburant. La température de préchauffage du carburateur est contrôlée par une thermistance (14) située en dessous du carburateur. La chaleur est générée par le préchauffeur (13), situé près du carburateur. Une bougie (15) permet l'allumage du carburant vaporisé. La tête du brûleur (16) recouvre le haut du carburateur, et la flamme formée au niveau de la tête est détectée (17). Un manchon (19) entoure le carburateur pour le refroidir en utilisant le tube de refroidissement (18) connecté à l'arrivée d'air. L'embout (10) est connecté de façon tangentielle au carburateur afin de faire tourbillonner le carburant le long de la paroi interne et permettre une meilleure vaporisation du carburant. Le système d'approvisionnement en air comprend un ventilateur et un filtre permettant de retenir les plus grosses particules.

Lors de l'allumage du poêle la température du carburateur augmente, sous l'action du préchauffeur, jusqu'à une valeur fixée, contrôlée par une thermistance. Lorsque cette température est atteinte, le préchauffage du carburateur est stoppé. Pendant ce temps, le ventilateur souffle de l'air dans le carburateur afin de le nettoyer, environ 20 à 30 secondes avant l'allumage, et la pompe électronique fournit du carburant au régulateur de niveau de carburant à partir du réservoir doseur interne via le conduit d'alimentation en carburant. Un signal électrique déclenche ensuite l'ouverture du solénoïde, permettant ainsi le passage d'une partie de l'air (tuyau (7)) dans le régulateur de niveau grâce au tube pressurisant. Le carburant pressurisé monte alors dans le système d'alimentation en carburant par l'orifice (6). Il traverse l'aiguille (11) et il est introduit par vaporisation dans le carburateur où il est mélangé à l'air. Ce mélange s'échappe par le haut du carburateur à travers la tête du brûleur et il est enflammé par la bougie d'allumage. Un système de contrôle, composé notamment d'un détecteur de flamme, permet l'entretien de la combustion.

Il y a plusieurs inconvénients à ce système de combustion, explicités comme suit dans le brevet US Patent 5,628,628, sans plus de justifications scientifiques. Tout d'abord, il peut y avoir un problème de sécurité dû au système de combustion. En effet, si le carburant n'est pas entièrement vaporisé, il se forme une pellicule de pétrole sur les parois et le fond du carburateur, en raison d'un gradient de température. Les résidus de pétrole s'accumulant ainsi au fond du carburateur peuvent détériorer sa capacité de transfert thermique, et provoquer l'émission excessive de gaz imbrûlés à l'allumage et à l'extinction de l'appareil. De plus, le rendement de combustion est faible en raison de l'instabilité de la flamme car le carburant n'est pas suffisamment bien mélangé à l'air dans le carburateur.

Ces appareils électroniques permettent une régulation de la température et une programmation du chauffage. Ils se branchent sur le secteur et ont un système de ventilation qui améliore la diffusion de l'air chaud dans la pièce. Ils combinent deux technologies complémentaires :

- Le brûleur à injection électronique régule le fonctionnement du poêle. Une pompe située dans le réservoir aspire le combustible qui est ensuite injecté dans la chambre de combustion, fournissant la puissance nécessaire au maintien de la température de consigne réglée sur l'appareil de chauffage lors de l'allumage.
- L'air pulsé, soufflé par un mécanisme de ventilation, permet de chauffer la pièce rapidement et de réduire la consommation de pétrole, en brassant continuellement l'air de la pièce et en répartissant la chaleur générée par le poêle.

Ces appareils ont en général cinq vitesses de fonctionnement préréglées permettant une adaptation automatique de la puissance à la température de consigne. Ils peuvent être équipés d'un détecteur de mouvement dans le but de limiter la consommation énergétique du poêle [1].

I.2. LES COMBUSTIBLES LIQUIDES

Est dénommé « combustible liquide pour appareils mobiles de chauffage » un mélange d'hydrocarbures aliphatiques désaromatisé d'origine minérale ou de synthèse destiné à l'alimentation des appareils mobiles de chauffage conformes au décret du 10 décembre 1992 (article 1 de l'arrêté du 25 juin 2010, J.O.R.F. n° 193 du 21 août 2010 ; modifiant l'arrêté du 8 janvier 1998, J.O.R.F. n° 23 du 28 janvier 1998, relatif aux caractéristiques du combustible liquide pour appareils mobiles de chauffage).

Les poêles à pétrole émettent de la chaleur par combustion d'un combustible liquide, également appelé « pétrole blanc » ou « pétrole lampant » car il était autrefois utilisé pour le fonctionnement des lampes à pétrole. Le combustible liquide pour convecteurs peut être également l'appelé « kérosène ». Lors du raffinage du pétrole, le kérosène correspond à la fraction comprise entre 220 et 250°C ; il est constitué de composés organiques compris entre C_{10} et C_{14} [*Guibet, 1987*]. La composition du carburant dépendra du pétrole brut utilisé, dont les propriétés vont influer sur la composition du carburant.

La composition de ce type de carburant doit correspondre aux caractéristiques fixées par arrêté (arrêté du 25 juin 2010, J.O.R.F. n° 193 du 21 août 2010) et reportées dans le Tableau 1.

[1] Grâce au détecteur de présence, l'appareil diminue sa puissance automatiquement si aucun mouvement n'est détecté dans la pièce pendant 10 minutes. Il augmente sa puissance dès qu'une présence est à nouveau détectée. Cette option peut être désactivée pour chauffer une pièce vide.

Il existe un vaste choix commercial de combustibles liquides pour alimenter les chauffages d'appoint en pétrole. Le produit sera d'autant plus cher qu'il contient moins de soufre et de composés aromatiques. Actuellement, on trouve aussi dans le commerce des carburants « bio » contenant des esters méthyliques d'huiles végétales. De plus, des stations-service proposent du pétrole lampant à la pompe en Belgique, et de plus en plus en France. Il est important de souligner que la règlementation belge n'est pas la même qu'en France. En effet, la norme belge NBN T 52-707 (avril 2004) précise certaines caractéristiques figurant dans le Tableau 1 pour le pétrole lampant de type C (pour une utilisation domestique).

Caractéristiques	**Normes françaises** (arrêté 25 juin 2010, JORF n° 193 du 21 août 2010)	**Normes belges** (NBN T 52-707 avril 2004, pétrole type C)
Aspect	Clair et limpide à 20°C	Limpide, exempt d'eau et de matières en suspension
Couleur	Saybolt supérieure à +30 (NF M 07-003)	-
Masse volumique à 15°C ($kg.L^{-1}$)	-	0,780 – 0,820 (NBN EN ISO 3675)
Viscosité cinématique	≤ 2,00 $mm^2.s^{-1}$ (à 40°C) (NF EN ISO 3104)	-
Distillation	Point initial supérieur à 175°C et point final inférieur ou égal à 280°C (NF EN ISO 3405)	Volume condensé (%) : à 210°C ≤ 90 250°C ≥ 65 280°C ≥ 95 (NBN EN ISO 3405)
Teneur en soufre	≤ 5 $mg.kg^{-1}$ (NF EN 24 260)	≤ 100 $mg.kg^{-1}$ (NBN EN 24 260)
Teneur en benzène	≤ 0,10 % (en masse) (NF M 07-112)	-
Teneur en composés aromatiques	≤ 1,0 % (en masse) (NF M 07-073)	-
Essai à la lame de cuivre [1] (3h à 50°C)	Classe 1 (NF EN ISO 2160)	Max. classe 1 (NBN EN ISO 2160)
Point éclair [2] (°C)	≥ 61 (NF EN ISO 2719)	> 55 (en vase clos) (NBN EN ISO 2719)
Point de fumée [3] (mm)	-	≥ 23 (NBN ISO 3014)
Point d'écoulement [4]	≤ -15°C (NF T 60-105)	-
Traceur [5]	Solvent Yellow 124 : 6 à 9 $mg.L^{-1}$	
Gommes après vieillissement [6] (mg/100 mL)	-	≤ 800 (NBN T 52-128)

Tableau 1. Caractéristiques législatives françaises et belges du pétrole lampant.

[1] Correspond à la détermination de l'action corrosive du carburant.
[2] Correspond à la température minimale pour laquelle la concentration des vapeurs émises est suffisante pour produire une déflagration au contact d'une flamme, mais insuffisante pour produire la propagation de la combustion en l'absence de la flamme.
[3] Hauteur maximale possible de la flamme sans formation de fumée dans des conditions normalisées.
[4] Température à laquelle le produit commence à s'écouler. Permet de définir la faisabilité d'un pompage.
[5] Pour empêcher l'utilisation du carburant domestique à la place du carburant diesel (en raison d'une taxation moins importante), un agent traceur est incorporé au carburant domestique.
[6] Paramètre permettant d'évaluer les contaminants.

Le pétrole lampant belge n'est pas soumis à une règlementation particulière en ce qui concerne les teneurs en benzène et composés aromatiques. De plus, la teneur maximale en soufre dans le carburant belge est vingt fois plus élevée que celle du pétrole lampant français. On peut supposer que les émissions engendrées par l'utilisation de ce type de carburant dans les poêles à pétrole seront différentes de celles du carburant français, qui est, en théorie, le seul autorisé à être utilisé dans les poêles portant la marque NF. Par conséquent, le carburant belge ne correspond pas aux exigences françaises et il ne doit pas être utilisé pour alimenter les poêles à pétrole français.

I.3. CONCLUSION

Les « poêles à pétrole » regroupent sous une même dénomination plusieurs types d'appareils, se différenciant principalement par le système d'injection du carburant dans la chambre de combustion. Ils ne nécessitent pas d'installation particulière dans les logements, notamment de raccordement à un conduit d'évacuation des produits de combustion.

Les appareils commercialisés en France répondent aux critères de la norme NF-128 qui fixe des concentrations maximales pour l'émission de CO, CO_2 et NO_x, dans des conditions contrôlées de laboratoire. En conditions réelles, seule la teneur en CO_2 est contrôlée.

Le décret n° 2004-945 du 1er septembre 2004 impose l'usage de combustible français pour le fonctionnement de ces appareils de chauffage d'appoint. En raison de la proximité de la frontière belge, la population du Nord-Pas-de-Calais se fournit cependant en Belgique, où les normes applicables au combustible liquide sont différentes, notamment la teneur maximale en soufre et en composés aromatiques.

I.4. REFERENCES

Guibet J.C. (1987). *Carburants et moteurs*. Institut Français du Pétrole, Editions Technip, Gap; p. 65-73.

Lionel T., Martin J. and Brown N.J. (1986). A comparative study of combustion in kerosene heaters. *Environ. Sci. Technol.,* 20 : 78-85.

Ragland K.W., Andren A.W. and Manchester J.B. (1985). Emissions from unvented kerosene heaters. *The Science of the Total Environment*, 46 : 171-179.

OMS (2010). WHO guidelines for indoor air quality: Selected pollutants. Copenhagen, *WHO Regional Office for Europe,* 454 p.

CHAPITRE II

ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

En 1973, la promulgation d'une norme de qualité de l'air ambiant concernant NO_2 par l'Agence Environnementale du Japon (38,2 $\mu g.m^{-3}$, soit 0,02 ppm maximum en valeur moyenne sur 24h), a permis l'accroissement d'études en laboratoire sur les émissions de sources domestiques [*Yamanaka et al., 1979*]. Différents dispositifs expérimentaux sont présentés dans ce chapitre, permettant de calculer des facteurs d'émission spécifiques et/ou de simuler des conditions réelles d'utilisation de ces sources. Les informations recueillies dans la littérature concernant les émissions des poêles à pétrole, mesurées en laboratoire ou lors de campagnes de mesures, sont classées par composé. Sont également rapportées les données concernant les poêles à mèche de type convectif, bien que ceux-ci ne soient pas en vente en France ; il s'agit ici de mettre en évidence les différences de niveau d'émission suivant le type de modèle utilisé, car aucune information n'a été trouvée sur les émissions des poêles électroniques.

La difficulté majeure rencontrée est la comparaison des résultats de différents auteurs, en raison des différences entre les appareils étudiés, les protocoles (taille de la pièce, ventilation, type de prélèvement, méthodes analytiques, etc.), et entre les objectifs poursuivis (qualité de l'air intérieur, facteurs d'émission, etc.). De plus, les résultats publiés dans la littérature sont de différentes natures : concentrations mesurées en laboratoire, concentrations mesurées en conditions réelles, facteurs d'émission, ou mesures qualitatives.

II.1. LES DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX DE LABORATOIRE

Il existe de nombreux dispositifs décrits dans la littérature, pour un grand nombre d'applications (quantification des émissions de matériaux, caractérisation des émissions de systèmes de combustion, etc.). Parmi ces dispositifs, développés lors de travaux antérieurs aux nôtres, on peut distinguer deux types de systèmes : ceux où le prélèvement est réalisé dans le conduit de hottes aspirantes, et ceux avec prélèvement dans des pièces environnementales de taille très variable. Notons que les dispositifs expérimentaux utilisant un prélèvement dans le conduit d'extraction ne sont pas majoritaires par rapport aux enceintes environnementales.

Cette partie a pour but de justifier le choix du dispositif expérimental que nous avons développé pour l'étude des émissions de poêles à pétrole, en mettant en avant les avantages et les inconvénients des systèmes existants.

II.1.1. LES DISPOSITIFS UTILISANT UNE HOTTE

Le système de prélèvement des gaz de combustion mis au point par Yamanaka et al. [*1979*] consiste en une hotte aspirante (Figure 9), sous laquelle sont placés différents systèmes de combustion (poêle à pétrole, chauffage au gaz, brûleur de gazinière, etc.). L'extraction des gaz est contrôlée (extraction moyenne 242 ± 105 $m^3.h^{-1}$, soit environ 5,5 $m.s^{-1}$) afin d'empêcher une « combustion anormale » (les auteurs n'expliquent pas s'il s'agit d'une émission de CO) et de ne pas trop diluer les gaz de combustion pour rester dans des gammes de concentration détectables. La méthode utilisée pour vérifier que ce débit canalise toutes les émissions de l'appareil testé n'est pas précisée. Les prélèvements de NO_x, CO_2 et O_2 se font dans le conduit de la hotte (point (b) de la Figure 9). L'analyse des NO_x est réalisée par la méthode colorimétrique de Saltzman [*Saltzman, 1954*] en plus d'une détection par un analyseur à chimiluminescence. CO_2 et O_2 sont analysés par la méthode d'Orsat [*US EPA, Method 3B*].

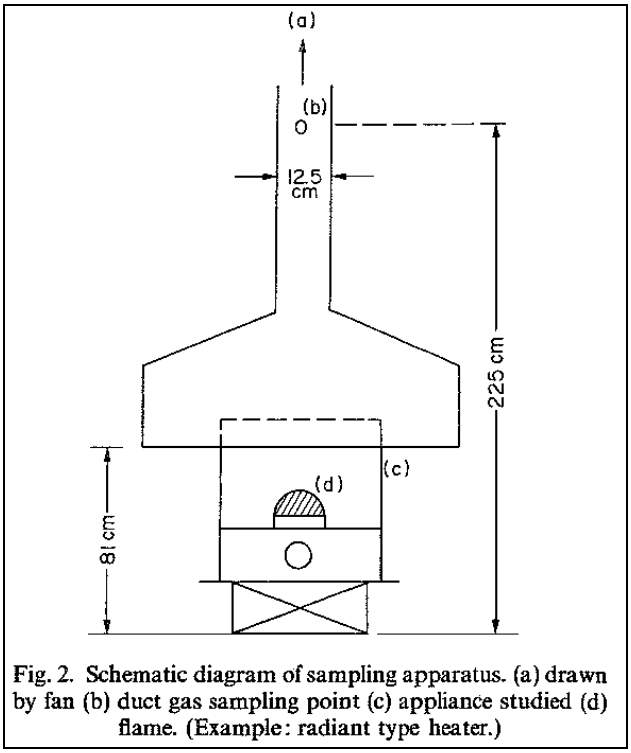


Fig. 2. Schematic diagram of sampling apparatus. (a) drawn by fan (b) duct gas sampling point (c) appliance studied (d) flame. (Example: radiant type heater.)

Figure 9. Dispositif expérimental de Yamanaka et al. [1979]

Woodring et al. [*1985*] ont également étudié les émissions de poêles à pétrole en plaçant les appareils sous une hotte (Figure 10) dans le conduit de laquelle sont réalisés les prélèvements de CO, NO_2, SO_2, du formaldéhyde et des particules. CO est mesuré à l'aide d'un analyseur à absorption dans l'infrarouge. Les autres gaz sont collectés par barbotage dans différents tubes de verre contenant des liquides spécifiques. NO_2 est piégé dans un compartiment contenant de l'acide sulfanilique et du N-1-(naphtyl)-éthylènediamine dihydrochloride, et il est ensuite analysé selon la méthode ASTM D1607-76 [*ASTM D1607-91, 2011*]. SO_2 est collecté dans un

compartiment contenant du tétrachloromercurate de sodium, et il est analysé selon la méthode ASTM D2914-70T [*ASTM D2914-01, 2007*]. Le formaldéhyde est piégé par une solution de 2,4-dinitrophénylhydrazine, et il est analysé par chromatographie en phase liquide. Les particules sont collectées par une piézobalance, et des mesures complémentaires sont réalisées à l'aide d'un analyseur électrique d'aérosols.

La ventilation utilisée n'est pas précisée, mais simplement qualifiée de « suffisante », ce qui est évidemment inexploitable si l'on souhaite reproduire ces expériences. Les mesures sont corrigées par les valeurs du niveau de fond.

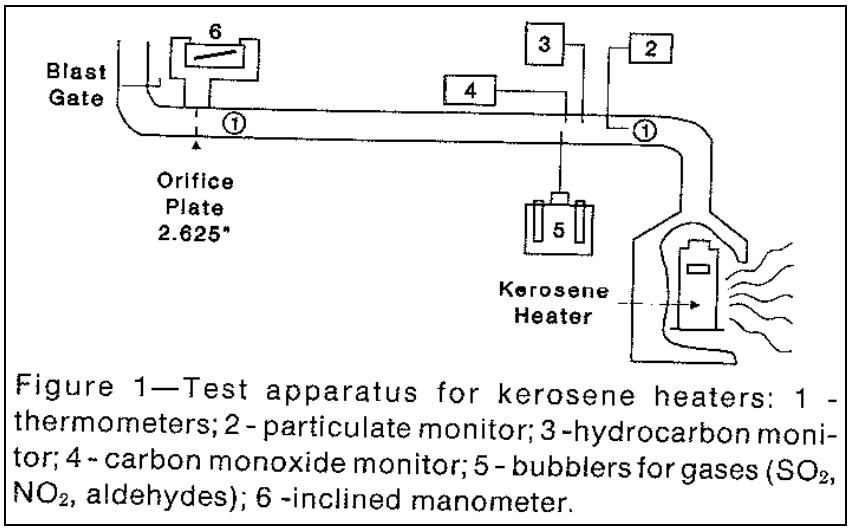


Figure 1—Test apparatus for kerosene heaters: 1 - thermometers; 2 - particulate monitor; 3 -hydrocarbon monitor; 4 - carbon monoxide monitor; 5 - bubblers for gases (SO_2, NO_2, aldehydes); 6 -inclined manometer.

Figure 10. Dispositif expérimental de Woodring et al. [1985]

Ragland et al. [*1985*] ont étudié les émissions de particules, d'hydrocarbures totaux et d'Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP) de poêles à pétrole dans une pièce de 216 m^3, dont les aérations ont été bouchées et dans laquelle de l'air filtré est injecté. Le poêle à pétrole est placé au sol, sous une hotte (à 75 cm au-dessus du sol). Les hydrocarbures totaux sont mesurés à l'aide d'un analyseur utilisant un détecteur à ionisation de flamme. Les HAP sont prélevés sur filtres en fibre de verre et sur résine XAD-2. Les analyses se font en GC-FID.

Le flux d'air de l'extraction est de l'ordre de 600 $L.min^{-1}$, jugé par les auteurs suffisamment faible pour ne pas perturber le flux d'air autour du poêle, mais suffisamment important pour pouvoir collecter les produits de combustion. Pour cela, le flux d'air autour de l'appareil de chauffage a été mesuré à l'aide d'un anémomètre. La vitesse de l'air au bas du poêle est inférieure à 1 $cm.s^{-1}$.

Oanh et al. [*1999*] ont étudié les émissions de HAP résultant de la combustion de bois, charbon de bois et briquettes de charbon dans des cuisinières asiatiques. Ces auteurs ont utilisé une hotte thermiquement isolée. Le prélèvement des particules pour l'étude des HAP se fait dans le conduit d'extraction de la hotte (Figure 11). Les particules sont piégées par barbotage et les HAP en phase gazeuse sont piégés sur résine XAD-2. Les analyses se

font par chromatographie en phase liquide couplée à un détecteur de fluorescence. Les gaz de combustion ne sont pas prélevés.

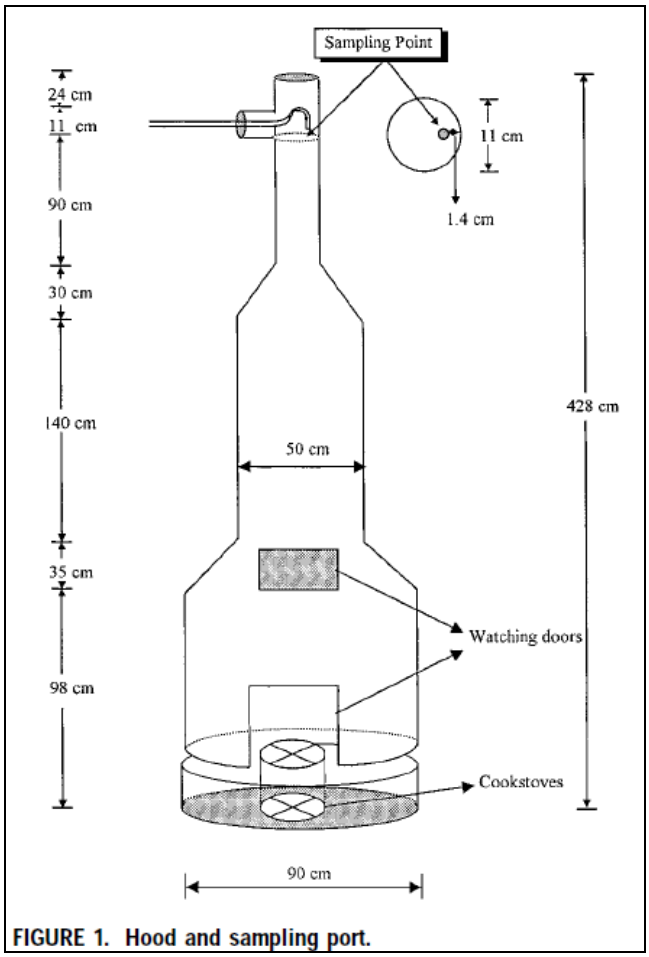


Figure 11. Dispositif expérimental de Oanh et al. [1999]

II.1.2. LES ENCEINTES EXPERIMENTALES

Les enceintes expérimentales utilisées en laboratoire pour l'étude de systèmes de combustion tels que les poêles à pétrole ou les gazinières, permettent à la fois de maîtriser la diffusion des produits de combustion, et/ou de reproduire des conditions plus réalistes d'utilisation, si les enceintes sont assez grandes.

Traynor et al. [*1982*] ont analysé les polluants émis par des cuisinières à gaz en utilisant une chambre environnementale de 27 m^3 (Figure 12), correspondant à la taille d'une cuisine. Le sol est en béton, les murs et le plafond sont en plâtre. La ventilation naturelle de la pièce varie entre 0,24 et 0,42 h^{-1}. Une hotte aspirante permet d'augmenter le taux de renouvellement d'air jusqu'à 7,0 h^{-1}. Aucun prélèvement n'est effectué dans le conduit d'évacuation de la hotte. Un ventilateur fonctionnant à faible vitesse est placé dans un coin de la pièce afin

d'homogénéiser l'air et les polluants. Toutes les sondes de prélèvement se situent au centre de la chambre, à 1,5 m du sol afin de permettre l'étude d'exposition.

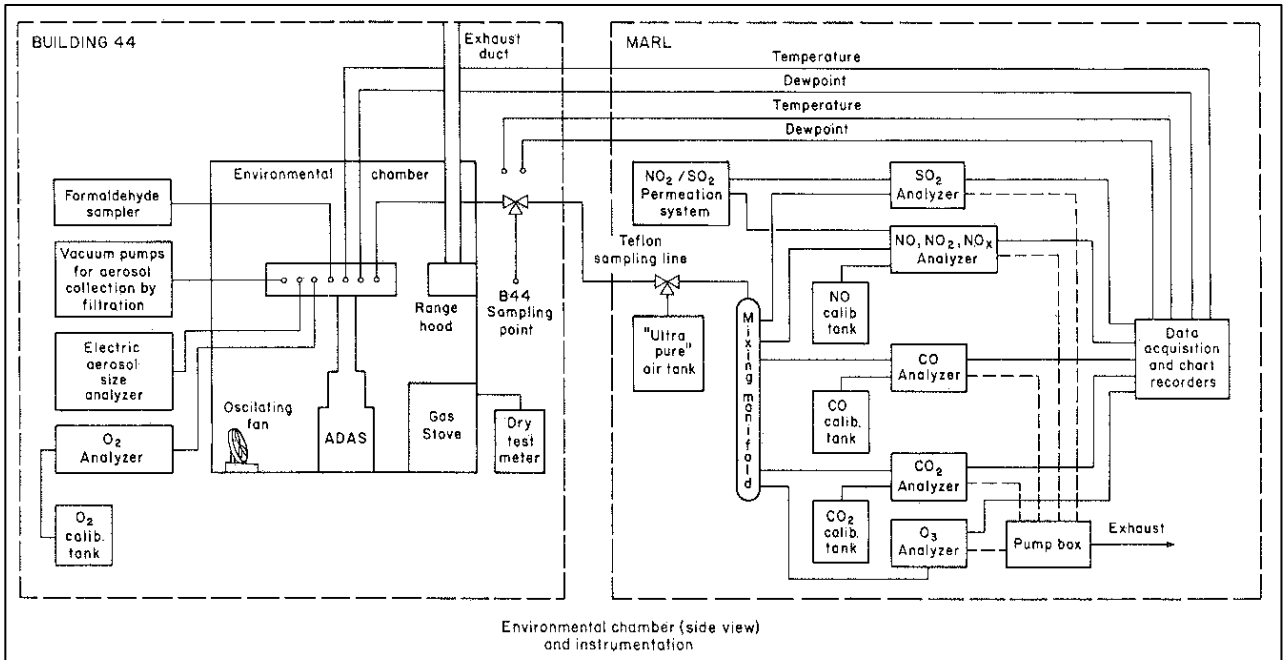


Fig. 1. Schematic of environmental chamber (side view) and instrumentation. Building 44 contains the 27-m^3 chamber (3.5 m × 3.5 m × 2.3 m) and the Mobile Atmospheric Research Laboratory (MARL) adjacent to Building 44 contains most of the instrumentation.

Figure 12. Dispositif expérimental de Traynor et al. [1982]

La même chambre environnementale a été ultérieurement utilisée pour l'étude des émissions de poêles à pétrole, avec un taux de renouvellement d'air de 0,40 ± 0,03 h^{-1} [*Traynor et al., 1983*] et 1,1 ± 0,1 h^{-1} [*Traynor et al., 1990*].

Tu et Hinchliffe [*1983*] ont étudié les émissions particulaires de poêles à pétrole dans deux pièces différentes : une pièce de 11 m^3 qualifiée d' « étanche » (dans laquelle de l'air filtré est introduit, d'une façon non précisée) et une pièce de 31 m^3 avec un taux de renouvellement d'air de 3 h^{-1}, sans plus de précision. La pièce de 11 m^3 est employée pour l'étude spécifique des concentrations et des facteurs d'émission particulaire, ainsi que de la taille, la morphologie et la composition chimique des particules. Pour caractériser les particules, les auteurs emploient un compteur à noyaux de condensation, un analyseur d'aérosols électrique, un spectromètre d'aérosols à diffusion active. Des prélèvements de particules se font sur filtre Téflon pour une analyse par microscopie électronique à balayage et par spectrométrie à rayons X.

La pièce de 31 m^3 fournit quant à elle des informations sur les émissions particulaires dans un environnement où d'autres sources sont présentes. Les caractéristiques techniques de l'enceinte expérimentale ne sont pas fournies.

Keyanpour-Rad [*2004*] a analysé les polluants organiques émis par un poêle à pétrole convectif dans une enceinte de 2,6 m^3 (1,2 x 1,2 x 1,8 m), dont le rapport d'aire des surfaces sur le volume est de 4,4 m^{-1}. La

chambre (Figure 13) est composée de parois métalliques recouvertes par 0,8 cm d'un matériau isolant (il n'est pas précisé lequel). L'air entre dans la chambre à travers le sol, grâce à un ventilateur et via un matériau poreux. Le ventilateur est placé au centre de la chambre. Des thermocouples mesurent la température à l'intérieur et à l'extérieur de la chambre. La température intérieure est maintenue inférieure à 45°C. L'air pollué passe ensuite dans le compartiment d'échantillonnage grâce à un ventilateur.

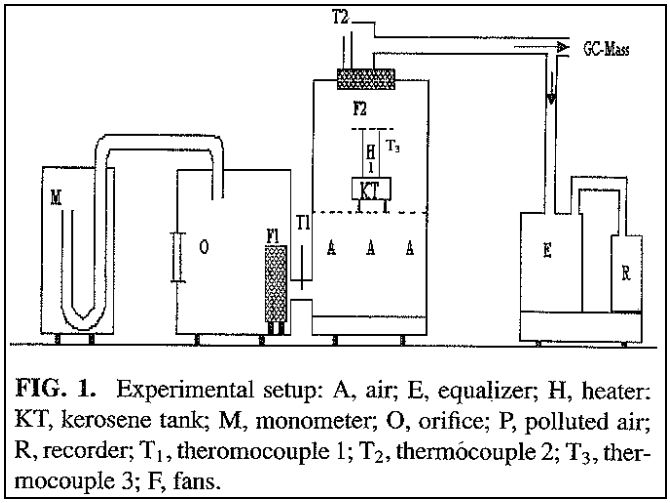


FIG. 1. Experimental setup: A, air; E, equalizer; H, heater: KT, kerosene tank; M, monometer; O, orifice; P, polluted air; R, recorder; T_1, theromocouple 1; T_2, thermócouple 2; T_3, thermocouple 3; F, fans.

Figure 13. Chambre expérimentale de Keyanpour-Rad [2004]

Au Danemark, Afshari et al. [*2005*] ont utilisé une chambre expérimentale de 32 m^3 avec un taux de renouvellement d'air de 1,7 ± 0,1 h^{-1}, afin d'étudier les particules émises par treize sources (comme la cigarette, différents types de bougies, des sprays désodorisants, des cuisinières, etc…). Les murs et le plafond de l'enceinte sont des panneaux de verre, montés sur une structure en aluminium. Le sol est en contreplaqué (high-density fiber - HDF). Ces matériaux ont été choisis afin de limiter les effets d'adsorption sur les parois et les sources de pollution au sein de l'enceinte expérimentale (par émission des matériaux). L'air pénétrant la chambre environnementale est préalablement filtré grâce à un ensemble de filtres : (1) un filtre F7 (correspondant à une efficacité moyenne, pour les particules de 0,4 µm de diamètre, comprise entre 80 et 90%, d'après la norme NF EN 779 de février 2003), (2) un filtre de charbon, (3) un deuxième filtre F7, et (4) un filtre à air à très haute efficacité (HEPA, correspondant à une efficacité moyenne supérieure ou égale à 99,5% pour des particules de 0,1 µm, d'après la norme NF EN 1822-1 de janvier 2010). L'enceinte expérimentale est située dans une pièce de 1800 m^3, ayant un taux de renouvellement d'air avec l'extérieur de 4 h^{-1}. Deux ventilateurs fonctionnent pendant toutes les expériences pour mélanger l'air de la chambre. Les mesures de concentration de particules se font au centre de la pièce à 1,2 m du sol, à l'aide d'un compteur à noyaux de condensation et d'un compteur optique de particules.

Les matériaux de construction des enceintes sont décrits plus en détails dans les publications plus récentes. Par exemple, les chambres dédiées à l'étude des émissions de COV et de particules par les équipements de

bureautique (imprimantes, photocopieuses) sont le plus souvent en acier inoxydable et en verre [*Leovic et al., 1998 ; Lee et al., 2001 ; Destaillats et al., 2008*], afin de minimiser les effets d'adsorption des COV sur les parois. Dans le même but, les surfaces peuvent également être recouvertes de Téflon. L'adsorption peut aussi être minimisée en diminuant le rapport surface/volume de l'enceinte, ou en augmentant le taux d'échange d'air, ce qui réduit le temps de contact [*Destaillats et al., 2008*].

La taille des enceintes expérimentales récemment décrites dans la littérature est adaptée aux sources d'émission étudiées. Elle peut être très réduite comme l'atteste l'enceinte de 0,02 m^3 employée pour l'étude des émissions de COV par de petits appareils électroniques, tels que les téléphones portables [*Funaki et al., 2003*], ou beaucoup plus grande, comme pour les essais de Wallace et al. [*2004*] visant à étudier les émissions de particules provenant d'une gazinière dans une maison de quatre pièces, réparties sur trois niveaux, pour un volume total de 400 m^3.

Il existe un grand nombre de dispositifs expérimentaux permettant l'étude des émissions, dont certains sont complexes, avec notamment des systèmes d'injection d'air purifié dans l'enceinte comme c'est le cas dans l'étude menée par Waring et al. [*2008*], nécessitant un investissement supplémentaire. Certains auteurs cherchent même à maîtriser totalement les paramètres environnementaux en plaçant leur enceinte expérimentale dans une autre chambre environnementale [*Salthammer et Mentese, 2008*].

II.1.3. DISPOSITIF COMBINE

Il existe, de façon anecdotique et dans le cadre de l'étude des émissions de produits de combustion, un système de prélèvement combinant des prélèvements dans l'enceinte expérimentale et des prélèvements dans le conduit d'extraction. Cote et al. [*1974*] ont réalisé des expériences dans une chambre de 8 m^3 (2,4 de long et 1,4 m de large ; 2,4 m de hauteur). Le rapport de l'aire des surfaces de la pièce sur son volume est d'environ 3 m^{-1}. Deux fenêtres permettent d'observer l'intérieur de l'enceinte. Les parois en plâtre sont recouvertes d'une peinture à base d'époxy afin de limiter l'adsorption des composés chimiques sur les murs. Les ouvertures sont colmatées avec des joints en silicone. L'arrivée d'air de la chambre (Figure 14) se fait par un conduit de 0,2 m de diamètre, en partie basse de la pièce, et elle est contrôlée par une vanne à clapet située dans le conduit. Une ventilation de 8,4 $m^3.min^{-1}$ est produite par un ventilateur, placé dans le conduit de sortie d'air de la chambre localisé au plafond. La cuisinière étudiée est placée sous une hotte possédant un conduit d'extraction de 0,15 m de diamètre.

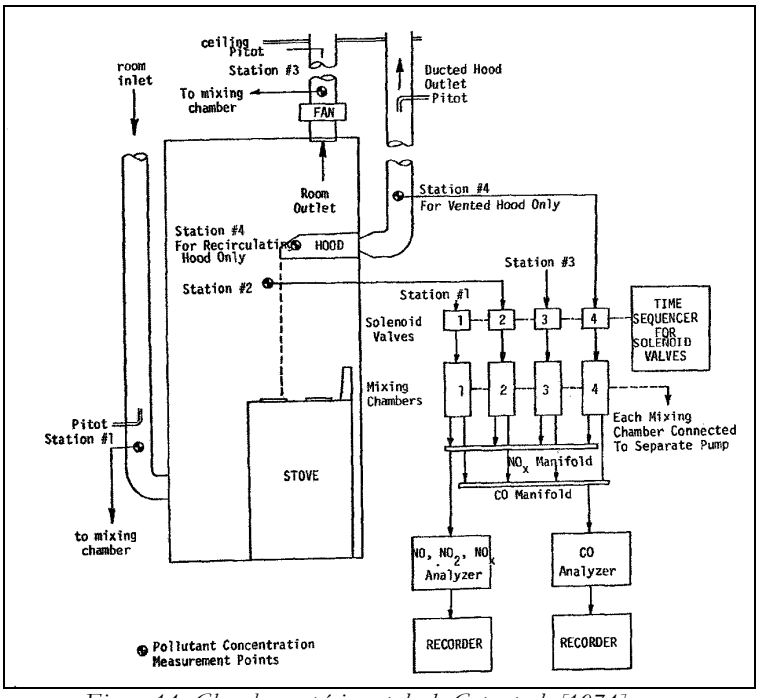


Figure 14. Chambre expérimentale de Cote et al. [1974]

II.1.4. CONCLUSION

L'examen de dispositifs expérimentaux existants indique tout d'abord que toutes les données nécessaires pour reproduire les expériences ne sont pas forcément disponibles. En particulier, il manque des informations concernant la construction du dispositif expérimental (matériaux utilisés, conditions de ventilation, etc.). Or, il est important de contrôler l'extraction du système de ventilation du dispositif, en particulier pour la quantification des émissions de sources. Il manque également des informations sur les systèmes de prélèvement avec hotte, en particulier une méthode permettant de vérifier que tous les produits de combustion passent à travers le conduit et que la combustion n'est pas perturbée par le débit d'air d'extraction.

L'utilisation d'une enceinte environnementale permet de simuler une pièce contenant un poêle à pétrole, et de contrôler les paramètres environnementaux tels que la température et l'humidité relative. Le volume de l'enceinte est connu, et sa conception peut permettre le contrôle visuel de la combustion des poêles à pétrole. Le niveau de fond de certains polluants peut être abaissé grâce à un dispositif de purification de l'air entrant. L'ajout d'une extraction à débit réglable permet de contrôler le taux de renouvellement d'air et de maîtriser la température dans l'enceinte. De plus, la diffusion des odeurs issues des poêles à pétrole est limitée par l'emploi d'une enceinte environnementale. L' « encrassement » de l'enceinte expérimentale à cause de l'utilisation répétée de ces appareils de chauffage est davantage visible par rapport à un conduit d'extraction de hotte, ce qui permet de supposer des effets en conditions réelles d'utilisation dans les logements. Enfin, l'enceinte permet l'utilisation

de badges passifs, bien que la répartition des polluants dans la chambre ne soit pas nécessairement parfaitement homogène.

Ces raisons justifient le choix que nous avons fait de travailler en local expérimental fermé plutôt qu'avec un dispositif sous hotte, d'autant plus que le système de prélèvement dans le conduit d'extraction ne permet pas l'utilisation de badges passifs. Ceci est un inconvénient dans notre cas, car ces badges doivent être utilisés lors des campagnes de mesures.

L'élaboration d'une chambre expérimentale nécessite d'identifier les éléments réellement nécessaires, et ceux dont on peut se passer, en minimisant les coûts de construction et de fonctionnement de l'enceinte. Le choix des matériaux de la chambre doit également se faire en fonction des composés à étudier, en utilisant des matériaux de construction qui interfèreront le moins possible avec les composés à analyser (émission de polluants par les matériaux, adsorption des polluants sur les surfaces…). Les caractéristiques de l'enceinte expérimentale que nous avons construite sont détaillées dans le chapitre III.

II.2. LES EMISSIONS DES POELES A PETROLE

Les émissions des poêles à pétrole ont été étudiées essentiellement dans les années 80 – 90, aussi bien en laboratoire que dans des logements où ce type d'appareil est utilisé.

Au sens du présent titre, on entend par polluant toute substance présente dans l'air ambiant et pouvant avoir des effets nocifs sur la santé humaine ou sur l'environnement dans son ensemble [*Code de l'Environnement, Livre II, Titre II, Chapitre 1, Section 1, article R221-1*]. Cette partie présente les différents polluants analysés, ainsi que le dioxyde de carbone, qui n'est pas un polluant *stricto sensu*. Les résultats publiés manquent parfois de précisions expérimentales, comme par exemple la valeur du taux de renouvellement d'air du lieu où sont mesurées les concentrations de polluants, ou encore le type de poêle à pétrole utilisé dans les logements échantillonnés. Les conditions opératoires (en particulier la taille de la pièce, le taux de renouvellement d'air, et la méthode de mesure utilisée) sont mentionnées quand elles sont connues.

II.2.1. LES OXYDES D'AZOTE

Le monoxyde d'azote NO et le dioxyde d'azote NO_2 sont les deux principaux oxydes d'azote émis pas les sources de combustion.

II.2.1.1. SOURCES HABITUELLES

Le trafic routier en est la principale source en air extérieur. En environnement intérieur, la fumée de tabac, les appareils domestiques fonctionnant par combustion de gaz, bois, pétrole, charbon (tels que des appareils de chauffage, cheminées, gazinières) sont responsables de la production de NO_x.

Les NO_x sont principalement produits au cours d'une combustion à haute température, où ils sont formés par réaction entre l'azote de l'air et l'oxygène. NO est partiellement oxydé et reconverti en NO_2, oxydant fort, corrosif et peu soluble dans l'eau [*HSDB, 2011*]. Les NO_x réagissent avec d'autres polluants tels que l'ozone et les hydrocarbures au cours de processus photochimiques [*Weschler, 2000*]. Au contact de la vapeur d'eau, des particules de l'atmosphère ou des muqueuses, les NO_x forment de l'acide nitreux HNO_2 et de l'acide nitrique HNO_3 [*Weschler et Shields, 1994*].

Les concentrations de NO_2 en air intérieur dépendent de plusieurs facteurs tels que :

- la présence de sources,
- l'influence de sources extérieures par infiltration (industries, trafic routier),
- le comportement des habitants (utilisation de sources, aération),
- les caractéristiques de l'habitation (taille, taux de renouvellement d'air, distance à la route, humidité intérieure et caractéristiques des surfaces).

II.2.1.2. TOXICITE DES OXYDES D'AZOTE

Les oxydes d'azote ne sont pas classés cancérogènes pour l'homme. En dépit des nombreuses études cliniques et épidémiologiques réalisées, les effets du dioxyde d'azote sur la santé humaine ne sont pas très bien compris. Néanmoins, NO_2 est considéré comme un irritant respiratoire. Il peut particulièrement affecter les enfants ou individus souffrant de maladies respiratoires comme l'asthme [*Samoli et al., 2006*]. Une exposition prolongée peut entraîner une augmentation du risque d'affection respiratoire [*Dutton et al., 2001*] et favoriser le déclenchement des crises d'asthme. De plus, il semblerait que NO_2 soit potentiellement génotoxique pour l'être humain [*Koehler et al., 2010*].

Environ 80-90% du NO_2 présent dans les poumons est absorbé. Sa distribution est relativement uniforme dans les voies respiratoires, avec un dépôt majeur dans les bronchioles terminales. La toxicité pulmonaire de NO_2 entraîne des perturbations de la micro-architecture membranaire, pouvant conduire à une altération de la membranaire pulmonaire, et à différents effets des radicaux libres sur la structure et le fonctionnement des poumons [*Sandström, 1995 ; Samoli et al., 2006*]. L'exposition à NO_2 a été associée à des affections telles que l'otite moyenne, l'eczéma, les infections du nez et de la gorge, et la sensibilisation aux allergies alimentaires [*OMS, 2010*].

II.2.1.3. NORMES

Les recommandations de l'OMS [*OMS, 2010*] en air intérieur sont de **200 µg.m^{-3}** en moyenne horaire (soit 105 ppb), et de **40 µg.m^{-3}** en moyenne annuelle (soit 21 ppb). En France, il n'existe pas encore de Valeur Guide en Air Intérieur (VGAI).

II.2.1.4. ETUDES EN LABORATOIRE

Toutes les études sur les émissions des poêles à pétrole, qu'ils soient de type radiant ou convectif, ont mis en évidence une production de NO_x pendant leur fonctionnement, principalement de NO_2 et dans une moindre mesure de NO [*Leaderer 1982, Cáceres et al., 1983 ; Traynor et al., 1983 ; Kinouchi et al., 1988 ; Chen et al., 1996 ; Zhou et Cheng, 2000*].

Quel que soit le poêle, la concentration de NO_x augmente à l'allumage pour atteindre un niveau maximum au bout d'un temps qui dépend de la taille de la pièce et de la ventilation. Cette concentration diminue ensuite à l'extinction du poêle pour revenir au niveau de fond initial, au bout d'un temps qui dépend également des

conditions d'utilisation [*Arashidani et al., 1996*]. La concentration de NO_2 dépend du taux d'humidité, des matériaux de construction et d'ameublement [*Leaderer et al., 1986*]. Ni les variations de consommation de combustible [*Leaderer, 1982*] ni la composition des combustibles [*Woodring et al., 1985 ; Zhou et Cheng, 2000*] n'ont d'effet notable sur les émissions de NO_x.

La production de NO_x est toujours plus importante dans le cas de l'utilisation d'un poêle à mèche convectif par rapport à un poêle à mèche radiant [*Traynor et al., 1983 ; Lionel et al., 1986 ; Zhou et Cheng, 2000*]. Woodring et al. [*1985*] ont mesuré une différence d'un facteur 3 entre ces deux types de poêles à mèche, Yamanaka et al. [*1979*] un facteur 6, et Traynor et al. [*1983*] un facteur 10. Il n'y a pas de données dans la littérature sur les émissions induites par les poêles à injection électronique.

Le Tableau 2 rassemble les facteurs d'émission d'oxydes d'azote produits lors de l'utilisation de poêles à pétrole radiants et convectifs. Pour les poêles radiants, les auteurs trouvent des facteurs d'émission compris entre **3,5 et 160 µg.g^{-1}** (µg par g de carburant consommé) pour NO et compris entre **111,1 et 308,9 µg.g^{-1}** pour NO_2. Pour les poêles convectifs, ces facteurs d'émissions sont compris entre **352,4 et 1063,6 µg.g^{-1}** pour NO et entre **129,6 et 900,5 µg.g^{-1}** pour NO_2.

Auteurs	Commentaire	Facteurs d'émission Poêle radiant (µg.g^{-1})				Facteurs d'émission Poêle convectif (µg.g^{-1})			
		n	NO	n	NO_2	n	NO	n	NO_2
Leaderer, 1982	Flamme « normale »	3	3,5 ± 2,0	3	217,0 ± 10,0	3	508,0 ± 26,0	3	631,0 ± 14,0
	Flamme haute	3	19,7 ± 2.0	3	192,0 ± 8,0	3	719,0 ± 13,0	3	303,0 ± 19,0
Traynor et al., 1983	Poêle neuf, allumé dans la chambre	1	60,9	1	226,2	2	1063,6 ± 46,1	2	578,6 ± 49,2
	Poêle neuf, 10 min allumage	1	52,2	1	178,4	2	1050,5 ± 40,0	2	545,9 ± 21,5
	Poêle utilisé pendant 1 an, 10 min allumage	1	91,4	1	221,9				
Cáceres et al., 1983	-	3 3 3	25,9 55,6 160	3 3 3	111,1 170,4 150				
Woodring et al., 1985	Carburant 1-K [1]			2 3	256,7 ± 4,4 165,3 ± 65,3			3	900,5 ± 226,2
	Carburant 2-K [2]			4 2 4	174,0 ± 74,0 308,9 ± 21,8 261,0 ± 60,9			2	674,3 ± 108,8
Lionel et al., 1986	-		60,5 ± 30,2		159,8 ± 43,2		669,6 ± 21,6		129,6 ± 34,6
Traynor et al., 1990	-	5	30,0 ± 8,7	5	212,3 ± 12,2	2	935,3± 65,3	2	287,1 ± 74,0
Zhou et Cheng, 2000	Carburant 1-K	n.i.	94,0			n.i. n.i.	404,1 352,4		
	Carburant JA-1 *	n.i.	117,5			n.i. n.i.	425,4 577,2		
	Carburant JP-8 *	n.i.	121,4			n.i. n.i.	531,1 424,6		

* La formulation de ces carburants diffère de $C_{10.9}H_{20.9}$ à $C_{12}H_2$ [*Dagaut et Cathonnet, 2006*]

Tableau 2. Facteurs d'émission des NO_x relevés dans la littérature
(n : nombre de mesures ; n.i. : non indiqué)

II.2.1.5. CONCENTRATIONS RELEVEES EN CONDITIONS REELLES D'UTILISATION

Le Tableau 3 rassemble les résultats des études réalisées dans des logements réels [L*eaderer et al. 1984 ; Leaderer et al., 1986 ; Kawamoto et al., 1993 ; Ruiz et al., 2010*] ou dans des conditions simulées (logement non habité ou maison témoin) [*Traynor et al., 1987 ; Tamura, 1987*]. Ces études fournissent d'une part des données sur les niveaux de concentration de NO_x mesurés en conditions réelles, et sur les éventuels dépassement des normes de

[1] Carburant caractérisé par une teneur en soufre inférieure à 0,04 %
[2] Carburant caractérisé par une teneur en soufre inférieure à 0,3 %

qualité de l'air intérieur (sur 17 logements, 2 cas de dépassements de la norme quotidienne de 60 ppb ont été relevés par Kawamoto et al. [*1993*]).

Auteur	Commentaire	Technique utilisée	Durée (jours)	n	[NO_2] (ppb)
Leaderer et al., 1984	Concentration max dans des logements avec poêle à pétrole	analyseur à chimiluminescence	2-7	14	440
Leaderer et al., 1986	Moyenne dans des logements avec poêle à pétrole	tubes Palmes	14	95	19,2 ± 17,2
	Moyenne en air extérieur			95	6,7 ± 2,4
Traynor et al., 1987	Valeur maximale dans une chambre de 31 m^3, porte et fenêtre closes, 0,4 h^{-1}	n.i.	30 min	1	520
Tamura, 1987	Valeur stable en chambre de 39 m^3, porte et fenêtre closes, 0,25 h^{-1}	analyseur à chimiluminescence	1 h	1	225
	Valeur stable en chambre de 39m^3, porte grande ouverte, fenêtre fermée				75
Kawamoto et al., 1993	Résultats donnés par classes de concentration moyenne	badges Advantec	7	17	13 cas ≤ 40 ppb 2 cas entre 40 et 60 ppb 2 cas > 60 ppb
Ruiz et al., 2010	Moyenne dans des logements avec poêle à pétrole	badges Ogawa	9	6	65,4 ± 15,9
	Moyenne dans des logements de contrôle			4	26,2 ± 6,2
	Moyenne en air extérieur			4	41,4 ± 9,3

Tableau 3. Concentrations de NO_2 mesurées en conditions réelles ou simulées d'utilisation de poêle à pétrole (n : nombre de logements étudiés, n.i. : non indiqué).

Ces études confirment que les poêles à mèche convectifs engendrent une plus grande concentration de NO_x que les poêles radiants [*Leaderer et al., 1986*]. Cette dernière étude montre également l'importance respective des différentes sources de NO_x à l'intérieur des logements. Ceci est illustré dans le Tableau 4 qui résume les concentrations de NO_2 mesurées en fonction du nombre de poêles à pétrole et de la présence d'une cuisinière à gaz. On constate que la concentration moyenne de NO_2 engendrée par l'utilisation d'un poêle à pétrole est du même ordre de grandeur que celle induite par l'utilisation d'une gazinière, avec un effet cumulatif lorsque les deux sources sont présentes simultanément.

Nombre de poêles à pétrole	Gazinière		n	Moyenne ± S.D. (ppb)
0	non	Extérieur	144	6,9 ± 2,8
		Moyenne du logement	145	3,9 ± 2,2
1	non	Extérieur	95	6,7 ± 2,4
		Moyenne du logement	95	19,2 ± 17,2
0	oui	Extérieur	42	7,7 ± 2,2
		Moyenne du logement	42	17,9 ± 13,7
1	oui	Extérieur	18	7,6 ± 2,7
		Moyenne du logement	18	34,9 ± 23,0
2	non	Extérieur	13	8,6 ± 4,9
		Moyenne du logement	13	36,3 ± 19,9
2	oui	Extérieur	3	11,6 ± 3,2
		Moyenne du logement	3	44,9 ± 12,8

Tableau 4. Concentrations de NO_2 moyennées sur deux semaines dans des logements avec ou sans gazinière et poêles à pétrole [Leaderer et al., 1986]

II.2.1.6. CONCLUSION

Les émissions de NO_x dépendent du type de poêle utilisé, mais l'influence du combustible n'est pas établie. Les poêles de type convectif émettent entre 3 et 10 fois plus de NO_x que les poêles de type radiant. Les recommandations de l'OMS en air intérieur sont de **200 µg.m^{-3}** en moyenne horaire (soit 105 ppb), et de **40 µg.m^{-3}** en moyenne annuelle (soit 21 ppb). Le niveau de concentration de NO_2 en milieu résidentiel, où un poêle à pétrole est utilisé, est généralement de l'ordre de 20 à 60 ppb, mais il peut varier si d'autres sources de combustion sont présentes (gazinière…).

II.2.2. LE MONOXYDE DE CARBONE

II.2.2.1. SOURCES HABITUELLES

Le monoxyde de carbone est formé lors de la combustion incomplète de matière organique telle que le bois, le pétrole, le charbon, le gaz naturel. En air intérieur, il provient de sources de combustion utilisées pour le chauffage ou la cuisine, de la fumée du tabac, ainsi que de sources extérieures (trafic routier) par infiltration.

II.2.2.2. TOXICITE DU MONOXYDE DE CARBONE

Le monoxyde de carbone est principalement un poison sanguin par action sur l'hémoglobine. Il agit également sur d'autres molécules biologiques à structure héminique (ex : myoglobine musculaire). Ce gaz pénètre dans le corps humain par inhalation. Faiblement hydrosoluble, il atteint facilement les alvéoles pulmonaires et diffuse à travers la membrane alvéolocapillaire. Il passe dans le sang, mais se fixe très rapidement à l'hémoglobine pour former la carboxyhémoglobine. Dans le cas d'une intoxication au monoxyde de carbone, il empêche le transport d'oxygène vers les tissus en raison d'une affinité pour l'hémoglobine 245 fois supérieure à celle de l'oxygène [*OMS, 2010*]. Cela entraîne une hypoxémie conduisant à une asphyxie progressive, touchant le cerveau et le cœur. Chez un sujet sain, le niveau de base de saturation de la carboxyhémoglobine est de l'ordre de 1 %, en raison du monoxyde de carbone endogène, tandis que le niveau de saturation de la carboxyhémoglobine chez un sujet intoxiqué est supérieur à 10 %. La mort se produit en moyenne aux alentours de 53-55 % [*OMS, 2010*].

Néanmoins la fixation de CO sur l'hémoglobine est réversible et l'oxygène peut agir sur la carboxyhémoglobine comme c'est le cas lors du traitement par oxygénothérapie des intoxications oxycarbonées.

II.2.2.3. NORMES

Les recommandations de l'OMS [*2010*] en air intérieur dépendent de la durée de l'exposition :

- 15 minutes: **100 mg.m^{-3}** (soit 86 ppm)
- 1 heure : **35 mg.m^{-3}** (soit 30 ppm)
- 8 heures : **10 mg.m^{-3}** (soit 9 ppm)
- 24 heures : **7 mg.m^{-3}** (soit 6 ppm)

Les valeurs guides en air intérieur (VGAI) recommandées par l'ANSES (anciennement AFSSET) en 2007 [*ANSES, 2007*] sont identiques, à l'exception de la VGAI pour 1 heure d'exposition, fixée à 30 mg.m^{-3} (25,8 ppm).

II.2.2.4. ETUDES EN LABORATOIRE

CO est émis de façon continue lors de la combustion, avec un pic transitoire à l'allumage. En effet, en raison d'une combustion incomplète en début de fonctionnement de l'appareil, la concentration de CO augmente brutalement et atteint au bout d'environ dix minutes un maximum, jusque 58,2 mg.m^{-3} (50 ppm) [*Woodring et al., 1985*]. La concentration de CO diminue ensuite pendant le fonctionnement du poêle et se stabilise [*Zhou et Cheng, 2000*]. Un pic de CO peut également apparaître à l'extinction [*Woodring et al., 1985*].

Les études montrent que les appareils de chauffage de type radiant produisent davantage de monoxyde de carbone que les appareils de type convectif ou à double combustion [*Leaderer, 1982 ; Lionel et al., 1986 ; Traynor et al., 1987*]. Ceci semble lié à la température de combustion plus faible dans le cas du chauffage radiant, entraînant une combustion moins efficace [*Leaderer, 1982 ; Traynor et al., 1983*]. Le taux de production de CO dépend du carburant utilisé [*Woodring et al., 1985 ; Zhou et Cheng, 2000*].

Les facteurs d'émission de monoxyde de carbone par les poêles à pétrole radiants et convectifs sont regroupés dans le Tableau 5. Les auteurs trouvent des facteurs d'émission compris entre **0,5 et 9,6 mg.g^{-1} pour les poêles radiants** étudiés et entre **0,1 et 9,3 mg.g^{-1} pour les poêles convectifs**.

Auteurs	Commentaire	Facteurs d'émission Poêle radiant (mg.g^{-1})		Facteurs d'émission Poêle convectif (mg.g^{-1})	
		n	CO	n	CO
Leaderer, 1982	Flamme « normale »	3	2,53 ± 0,22	3	0,97 ± 0,07
	Flamme haute	3	1,85 ± 0,11	3	0,44 ± 0,18
Traynor et al., 1983	Poêle neuf, allumé dans la chambre	1	2,61	2	0,54 ± 0,13
	Poêle neuf, 10 min allumage	1	3,12	2	0,40 ± 0,00
	Poêle utilisé pendant 1 an, 10 min allumage	1	2,35		
Cáceres et al., 1983	-	3	3,70		
		3	1,85		
		3	0,50		
Woodring et al., 1985	Carburant 1-K	2	3,29 ± 0,56	3	5,34 ± 0,56
		3	4,14 ± 1,78		
	Carburant 2-K	4	6.94 ± 1,07		
		2	7,44 ± 0,44	2	9,26 ± 1,84
		5	9,63 ± 2,09		
Traynor et al., 1990	Moyenne sur 1h	10	3,66 ± 0,19	4	0,87 ± 0,09
Zhou et Cheng, 2000	Carburant 1-K	n.i.	0,90		
	Carburant JA-1	n.i.	1,39	n.i.	0,12
				n.i.	0,18
	Carburant JP-8	n.i.	1,24		
Fan et Zhang, 2001	Carburant 1-K	3	1,57 ± 0,70		

Tableau 5. Facteurs d'émission de CO relevés dans la littérature (n : nombre de mesures ; n.i. : non indiqué).

II.2.2.5. CONCENTRATIONS RELEVEES EN CONDITIONS REELLES D'UTILISATION

Le Tableau 6 rassemble les résultats des mesures de CO réalisées dans des logements réels [*Leaderer et al., 1984 ; Cooper et Alberti, 1984 ; Tamura, 1987 ; Amitai et al., 1998 ; Chambon et Schadkowski, 2004*] ou dans des conditions simulées [*Traynor et al., 1987 ; Setiani, 1994 ; Zhou et Cheng, 2000 ; Fan et Zhang, 2001*].

Auteur	Commentaire	Technique utilisée	Durée (en jours)	n	[CO] (ppm)
Leaderer et al., 1984	Concentration maximale dans les logements	Détecteur électrochimique	14	14	18
Cooper et Alberti, 1984	Moyenne dans les logements avec poêle à pétrole	Tube dosimètre (MSA 465519)	1	14	6,8 ± 5,9
	Moyenne dans les logements poêle à pétrole éteint			14	0,1 ± 0,5
	Moyenne en air extérieur			10	0,4
Tamura, 1987	Valeur max au bout de 3 h en chambre de 39 m^3, porte et fenêtre closes, 0,25 h^{-1}	Analyseur infrarouge	1 h	1	40
	Valeur stable en chambre de 39 m^3, porte grande ouverte, fenêtre fermée				10
Traynor et al., 1987	Valeur maximale dans une chambre de 31 m^3, porte et fenêtre closes, 0,4 h^{-1}	n.i.	50 min	1	17,6
Setiani, 1994	Valeur stable dans un appartement de 80 m^3 (2 pièces)	Tube colorimétrique (Kitagawa 106 G)	1 h	1	3
Amitai et al., 1998	Moyenne dans les logements avec poêle à pétrole	Détecteur portable (Compur Dosidox, Bayer Diagnostics)	1,5-2,5 h	45	61 ± 24
Zhou et Cheng, 2000	Valeur maximale dans une tente de 106 m^3, taux de renouvellement d'air 1,4 h^{-1}	Analyseur infrarouge	1 h	1	5
Fan et Zhang, 2001	Pièce de 19 m^3, taux de renouvellement d'air 4 h^{-1}	Détecteur électrochimique	1 – 2,5 h	3	1 - 3
Chambon et Schadkowski, 2004	Moyenne dans les logements avec poêle à pétrole	Détecteur portable (Dräger)	7	23	2,1

Tableau 6. Concentrations de monoxyde de carbone mesurées en conditions réelles d'utilisation des poêles à pétrole.

Ces études mettent en évidence que les poêles à pétrole peuvent être à l'origine de concentrations de CO dans l'air des logements supérieures aux normes. Amitai et al. [*1998*] ont ainsi mesuré dans une résidence universitaire de Jérusalem des concentrations de CO jusqu'à 100 ppm. Dans leur étude sur 23 logements de la région Nord-Pas-de-Calais, Chambon et Schadkowski [*2004*] ont observé 4 dépassements du seuil de 10 ppm de CO en moyenne sur 8 heures, même si aucun dépassement de la recommandation de 30 ppm en moyenne sur 8 heures n'a été noté. **Cette dernière étude a également montré que dans plus de 80% des logements équipés d'un poêle à pétrole, celui-ci est utilisé comme mode de chauffage principal (durée d'utilisation supérieure à 6 heures par jour) et non comme chauffage d'appoint.**

II.2.2.6. CONCLUSION

Les émissions de monoxyde de carbone dépendent du carburant (nature et taux de consommation), et du type de poêle utilisé, avec une plus grande émission du poêle radiant. En plus d'une production continue pendant le fonctionnement du poêle, on note une surproduction transitoire à l'allumage et parfois à l'extinction du poêle. L'OMS recommande de ne pas dépasser **10 mg.m^{-3}** (9 ppm) sur 8 heures. Cette recommandation semble dépassée lors de l'utilisation de poêles à pétrole comme mode de chauffage principal dans les petits logements où la ventilation et/ou le volume de la pièce sont insuffisants.

II.2.3. LE DIOXYDE DE CARBONE

II.2.3.1. SOURCES HABITUELLES

Le dioxyde de carbone CO_2 est le principal gaz à effet de serre visé par la directive européenne 2009/29/CE du 23 avril 2009. Ses sources naturelles sont très nombreuses : respiration des êtres vivants, décomposition de matière organique, feux de forêt, éruptions volcaniques… CO_2 est également produit par le trafic routier, l'agriculture, et lors de tous les processus de combustion. En milieu résidentiel, la principale source de CO_2 après les sources de combustion est la respiration. Les quantités mesurées en air intérieur dépendront donc du nombre de personnes présentes, du volume de la pièce et de la qualité de la ventilation.

II.2.3.2. TOXICITE DU DIOXYDE DE CARBONE

Le dioxyde de carbone n'est pas considéré comme un gaz dangereux pour la santé humaine, mais une augmentation de sa concentration dans l'organisme conduit à une modification du pH (acidification) et à des effets sur le métabolisme cellulaire. Aucun effet nocif n'a été associé à une exposition de courte durée à des concentrations inférieures à 2 % (20 000 ppm). A des concentrations plus élevées (5 – 10 %), CO_2 peut entraver la fonction respiratoire, causer des maux de tête et affecter la vue. Le risque mortel apparaît pour des concentrations supérieures à 20 % [*INRS, 2005*].

II.2.3.3. NORMES

Il n'existe pas de valeur guide en air intérieur pour CO_2. Néanmoins, on admet couramment une recommandation de 1000 ppm (soit 0,1 % ou 1,8 $g.m^{-3}$) [*Setiani, 1994 ; Déoux, 2004*], également recommandée par l'ASHRAE (ANSI-ASHRAE 62-1989, section 6.1.3, valeur révisée en 2002 à 700 ppm). Il ne s'agit que d'une valeur de confort, où CO_2 est utilisé comme un indicateur de la gêne olfactive engendrée par les bioeffluents humains.

En France, pour les poêles à pétrole, la teneur en CO_2 dans l'atmosphère est utilisée comme indicateur de saturation de l'air en gaz de combustion. Un détecteur de CO_2 est obligatoirement intégré aux poêles à pétrole, et l'arrêt de l'appareil est automatique lorsque la teneur en CO_2 dans l'air atteint 0,8 ± 0,2 % (8000 ± 2000 ppm).

II.2.3.4. ETUDES EN LABORATOIRE

Lors des études menées sur les émissions de poêles à pétrole, la mesure de la concentration de CO_2 sert essentiellement d'indicateur environnemental, pour calculer le taux de renouvellement d'air de la pièce, à partir de la cinétique de décroissance de sa concentration à l'extinction de l'appareil [*Tichenor et al., 1990 ; Leaderer et Boone, 1990*]. Cette méthode est en effet moins contraignante que l'emploi de SF_6 comme gaz traceur, méthode qui était utilisée dans les études antérieures [*Dietz et Cote, 1982*].

Si on suppose que la combustion est complète, alors le rejet théorique de CO_2 est de l'ordre de 3000 $mg.g^{-1}$. En effet, considérant la réaction suivante :

$$C_nH_{(2n+2)} + \frac{3n+1}{2} O_2 \rightarrow n\,CO_2 + (n+1)\,H_2O$$

et assimilant le pétrole lampant au undécane (n = 11), le rejet de CO_2 est estimé à :

$\frac{n \times M_{CO_2}}{M_{undécane}} = \frac{11 \times 44}{156} = 3{,}1$ g par g de carburant.

Les facteurs d'émission de CO_2 déterminés dans les études antérieures sont regroupés dans le Tableau 7. Les valeurs mesurées sont en bon accord avec la valeur attendue, à l'exception du résultat de Fan et Zhang [*2001*], qu'on ne sait pas expliquer.

Auteurs	Commentaire	Facteurs d'émission	Facteurs d'émission

		Poêle radiant (mg.g^{-1})		Poêle convectif (mg.g^{-1})	
		n	**CO_2**	**n**	**CO_2**
Leaderer, 1982	Flamme « normale »	3	2918 ± 100	3	3115 ± 37
	Flamme haute	3	3092 ± 62	3	2994 ± 44
Traynor et al., 1983	Poêle neuf, allumé dans la chambre	1	3060	2	3102 ± 74
	Poêle neuf, 10 min allumage	1	2980	2	3069 ± 9
	Poêle utilisé pendant 1 an, 10 min allumage	1	2880		
Fan et Zhang, 2001		3	1794 ± 690		

Tableau 7. Facteurs d'émission de CO_2 relevés dans la littérature.

II.2.3.5. CONCENTRATIONS RELEVEES EN CONDITIONS REELLES D'UTILISATION

Leaderer et al. [*1984*] ont mesuré la concentration de CO_2 dans 14 logements pendant deux semaines. Le maximum atteint est de 7800 ppm. La concentration de CO_2 mesurée par Tamura [*1987*] dans une maison à deux étages, lors de l'utilisation d'un poêle, radiant ou convectif, pendant une heure dans un salon, est de l'ordre de 2700 ppm, en revanche la concentration maximale mesurée dans une chambre est équivalente à celle de Leaderer et al. [*1984*] (Tableau 8), mettant en évidence l'importance du volume et de l'aération de la pièce sur les niveaux de concentration mesurés.

Les valeurs maximales et les niveaux stables, mesurés en laboratoire ou dans des environnements simulés [*Leaderer et al., 1984 ; Tamura, 1987 ; Traynor et al., 1987 ; Setiani, 1994 ; Fan et Zhang, 2001*], sont répertoriées dans le Tableau 8.

Auteur	**Commentaire**	**Technique utilisée**	**Durée (en jours)**	**n**	**[CO_2] (ppm)**
Leaderer et al., 1984	Concentration maximale dans les logements	n.i.	14	14	7800
Tamura, 1987	Valeur max au bout de 3 h en chambre de 39 m^3, porte et fenêtre closes, 0,25 h^{-1} Valeur stable en chambre de 39 m^3, porte grande ouverte, fenêtre fermée	Analyseur infrarouge	1 h	1	8000 3000
Traynor et al., 1987	Valeur maximale dans une chambre de 31 m^3, porte et fenêtre closes, 0,4 h^{-1}	n.i.	50 min	1	4400
Setiani, 1994	Valeur stable dans un appartement de 80 m^3 (2 pièces)	Tube colorimétique (Kitagawa 126 B)	1 h	1	1600
Fan et Zhang, 2001	Pièce de 19 m^3, mesures toutes les 5 à 10 min	Sac Tedlar,GC-FID	1 h	3	600 - 2600

Tableau 8. Concentrations de CO_2 mesurées en environnements réels ou simulés
(n.i. : non indiqué)

II.2.3.6. CONCLUSION

Le dioxyde de carbone n'est pas un gaz dangereux pour la santé humaine. La teneur de 1000 ppm fréquemment citée correspond à un seuil de confort. Le type de poêle à pétrole utilisé n'a pas d'incidence sur les concentrations de CO_2 mesurées, qui sont de l'ordre de 3000 ppm.

II.2.4. LE DIOXYDE DE SOUFRE

II.2.4.1. SOURCES HABITUELLES

Le dioxyde de soufre SO_2 est émis naturellement par les volcans, ainsi que par des bactéries (oxydation du diméthylsulfure dans les eaux côtières ou décomposition des acides aminés soufrés). SO_2 provient surtout de sources anthropiques, principalement par l'oxydation des impuretés soufrées présentes dans les combustibles fossiles (charbon, pétrole). Il est ainsi rejeté lors de la combustion du charbon, par les véhicules automobiles, les chaufferies urbaines et les centrales de production électrique, ainsi que par certaines industries (raffineries de pétrole, métallurgie des métaux non ferreux, production d'acide sulfurique, …).

En 15 ans, les émissions de SO_2 ont fortement diminué (baisse de 60 %), en raison d'une part de l'amélioration des combustibles et carburants, et d'autre part de la mise en place de systèmes de traitement des rejets, incluant la désulfurisation des fumées issues des installations de combustion (centrales thermiques, incinérateurs d'ordures ménagères…) [*Elichegaray et al., 2010*].

II.2.4.2. TOXICITE DU DIOXYDE DE SOUFRE

SO_2 a été classé par le CIRC (Centre International de Recherche sur le Cancer) en 1992 dans le groupe 3 (c'est-à-dire qu'il ne peut pas être classé pour sa cancérigénicité pour l'homme), et non classé cancérogène par l'Union Européenne en 2001. C'est un irritant respiratoire, de la peau et des muqueuses. Une exposition de quatre heures à ce gaz engendre une augmentation de l'inflammation des cellules des voies respiratoires [*Sandström, 1995*]. Les sujets sains peuvent réagir à partir de 26,6 $mg.m^{-3}$ (10 ppm), tandis que les asthmatiques révèlent des symptômes de l'asthme et une constriction bronchique à partir d'une concentration de SO_2 comprise entre 0,66 et 1,3 $mg.m^{-3}$ (soit entre 0,25 et 0,5 ppm).

La principale voie d'absorption du SO_2 est l'inhalation. Plus de 98% du SO_2 inhalé est absorbé au niveau du naso-pharynx et une petite partie par le mucus bronchique. Seule une faible quantité atteint les alvéoles pulmonaires (notamment si SO_2 est associé à des particules). En milieu aqueux, SO_2 se dissocie rapidement pour former des ions hydrogène, sulfure (S^{2-}) et bisulfure, et les effets toxiques pourraient être attribués à ces ions. Il se forme également des sulfites (SO_3^{2-}) qui vont réagir avec les protéines plasmatiques (pour former des S-sulfonates), et avec l'ADN. Une fois absorbé, SO_2 passe dans le sang et est distribué dans tout l'organisme. La détoxification se fait essentiellement au niveau hépatique par oxydation des sulfites en sulfates, puis par élimination urinaire [*Bisson et al., 2011*].

II.2.4.3. NORMES

Il n'y a pas de valeur guide en air intérieur pour cette substance, mais l'Organisation Mondiale de la Santé recommande de ne pas dépasser une concentration de SO_2 en air extérieur de **500 µg.m^{-3}** (environ 190 ppb) au-delà d'une durée moyenne de dix minutes [*OMS, 2005*]. A long terme, l'OMS définit une ligne directrice sur 24 heures fixée à **20 µg.m^{-3}** (7,7 ppb). La directive 2008/50/CE du Parlement Européen et du Conseil du 21 mai 2008, concernant « la qualité de l'air ambiant et un air pur pour l'Europe », fixe le seuil d'alerte pour une exposition au SO_2 en air extérieur à **400 µg.m^{-3}** (150 ppb) sur trois heures consécutives.

II.2.4.4. ETUDES EN LABORATOIRE

Lors du fonctionnement d'un poêle à pétrole, les émissions de SO_2 suivent la même évolution temporelle que les émissions d'oxydes d'azote, avec une concentration maximale atteinte quand la température de combustion est maximale, suivie par une décroissance très rapide après l'extinction du poêle à pétrole [*Zhou et Cheng, 2000*]. Les niveaux de concentration mesurés sont corrélés au nombre d'heures d'utilisation du poêle à pétrole et à la teneur en soufre du carburant [*Leaderer et al. 1986*], confirmant les résultats de Woodring et al. [*1985*] qui ont montré que l'utilisation de kérosène de type 2-K (teneur massique maximale en soufre fixée à 0,3 %) engendre des émissions sulfurées environ sept fois plus importantes que lors de l'utilisation de carburant de qualité 1-K (teneur maximale en soufre de 0,04 %). Le dioxyde de soufre est davantage émis par les poêles de type convectif plutôt que par les poêles de type radiant [*Zhou et Cheng, 2000*].

Les facteurs d'émission de SO_2 déterminés lors des études précédentes sont regroupés dans le Tableau 9. Ils sont compris entre 0,2 et 2,0 mg.g^{-1} pour les poêles radiants, et entre 0,2 et 1,9 mg.g^{-1} pour les poêles convectifs.

Auteurs	Commentaire	Facteurs d'émission Poêle radiant (mg.g^{-1})		Facteurs d'émission Poêle convectif (mg.g^{-1})	
		n	SO_2	n	SO_2
Leaderer, 1982	Flamme « normale »	3	0,70 ± 0,25	3	0,70 ± 0,04
	Flamme haute	3	0,73 ± 0,02	3	0,66 ± 0,01
Cáceres et al., 1983	Carburant 1*	3	0,7**		
	Carburant 2*	3	2,0**		
Woodring et al., 1985	Carburant 1-K	2	0,20 ± 0,02	3	0,17 ± 0,06
		3	0,34 ± 0,10		
	Carburant 2-K	4	2,03 ± 0,97		
		2	1,71 ± 0,57	1	1,44
		4	1,50 ± 0,20		
Zhou et Cheng, 2000		n.i.	1,44 (carb. JP-8)	n.i.	1,09 (carb. 1-K)
				n.i.	1,90(carb. JA-1)

* : caractéristiques du carburant non précisées par les auteurs
** : résultats donnés pour les oxydes de soufre (SO_2 et SO_3)

Tableau 9. Facteurs d'émission de SO_2 relevés dans la littérature.

II.2.4.5. CONCENTRATIONS RELEVEES EN CONDITIONS REELLES D'UTILISATION

Les concentrations en SO_2 relevées lors de mesures de terrain, ainsi que dans une étude de laboratoire, sont regroupées dans le Tableau 10.

Auteur	Commentaire	Technique utilisée	Durée (en jours)	n	[SO_2] (ppb)
Cáceres et al., 1983	Pièce de 21 m^3, porte partiellement ouverte, 0,7 h^{-1}	Méthode de West et Gaeke	n.i.	n.i.	800*
Cooper et Alberti, 1984	Moyenne dans les logements avec poêle à pétrole	Tube dosimètre (MSA 469388)	1	14	400 ± 400
	Moyenne dans les logements poêle à pétrole éteint			14	indétectable
Leaderer et al., 1984	Concentration maximale dans les logements	Tube à perméation (REAL)	14	14	430
	Moyenne dans les logements				> 30 ppb pour 20 % des logements
Leaderer et al., 1986	Moyenne dans les logements avec poêle à pétrole, sans gazinière	Tube à perméation (REAL)	14	25	25,7 ± 32,6
Ruiz et al., 2010	Moyenne dans les logements avec poêle à pétrole	Badges Ogawa	9	6	5,4 ± 5,9 **
	Moyenne dans les logements de contrôle			4	-0,1 ± 0,1 **
	Moyenne en air extérieur			4	0,2 ± 0,1 **

* Niveau de SO_x ; ** En raison d'un biais de la méthode, les mesures sont probablement sous-estimées et ne doivent être considérées que comme des mesures qualitatives pour une comparaison entre les différents logements

Tableau 10. Concentrations de SO_2 mesurées en conditions réelles d'utilisation des poêles à pétrole

Cáceres et al. [*1983*] attribuent clairement le haut niveau de concentration de SO_x (SO_2 et SO_3) mesuré à la teneur en soufre du carburant chilien utilisé (teneur non fournie). Leaderer et al. [*1986*] ont analysé la teneur en soufre du carburant utilisé dans 49 foyers. La teneur en soufre moyenne est de 0,038 % (dans une gamme allant de 0,020 à 0,084 %) et 45% des carburants analysés ne sont pas « carburant 1-K » (teneur en soufre inférieure à 0,040 %). On constate une diminution des concentrations moyennes de SO_2 relevées, attribuable à la désulfurisation du combustible.

II.2.4.6. CONCLUSION

Les concentrations de SO_2 dans l'air sont liées principalement à la teneur en soufre du combustible utilisé, très variable suivant le pays et la date de la campagne de mesures. Ces concentrations dépendent de la durée de fonctionnement du poêle à pétrole. Ce gaz est un irritant respiratoire. Il n'existe pas de recommandation en air intérieur, même si l'OMS définit une ligne directrice sur 24 heures fixée à **20 µg.m^{-3}** (7,7 ppb).

II.2.5. LES COMPOSES ORGANIQUES VOLATILS

II.2.5.1. DEFINITION

La Directive 2010/75/UE du Parlement Européen et du Conseil du 24 novembre 2010 relative aux émissions industrielles définit un composé organique volatil comme *tout composé organique ainsi que la fraction de créosote [1] ayant une pression de vapeur de 0,01 kPa ou plus à une température de 293,15 K ou ayant une volatilité correspondante dans les conditions d'utilisation particulières*. La pression de vapeur saturante est la pression de la phase gazeuse d'un composé se trouvant en équilibre au-dessus de sa phase liquide à une température donnée (20 °C dans la directive). Plus cette pression de vapeur saturante est élevée, plus le composé est volatil.

Les COV sont des composés organiques, c'est-à-dire contenant au moins l'élément carbone et un ou plusieurs des éléments suivants: hydrogène, halogènes, oxygène, soufre, phosphore, silicium ou azote, à l'exception des oxydes de carbone et des carbonates et bicarbonates inorganiques (Directive 2010/75/UE).

Les COV peuvent également être classés sur la base de leur température d'ébullition, ce qui est plus facile à appréhender en chimie analytique. La température d'ébullition d'un composé correspond à la température à laquelle le changement d'état liquide-gaz se produit. Plus le composé a une température d'ébullition basse, plus celui-ci est volatil. La norme ISO 16000-3 (2004) les classe ainsi en trois catégories :

[1] Liquide incolore, d'odeur forte, caustique, extrait du goudron par distillation, et utilisé pour la désinfection, la conservation du bois, etc.

- Les composés organiques très volatils (COTV/VVOC) : composés dont le point d'ébullition est inférieur à 50 - 100 °C,
- Les composés organiques volatils (COV/VOC) : composés dont le point d'ébullition est compris entre 50 - 100 °C et 240 - 260 °C,
- Les composés organiques semi-volatils (COSV/SVOC) : composés dont le point d'ébullition est compris entre 240 - 260 °C et 380 - 400 °C.

Les COV se retrouvent dans différentes familles chimiques telles que les hydrocarbures (alcanes, alcènes, alcynes, hydrocarbures aromatiques), les alcools, les aldéhydes, les cétones, les acides carboxyliques, les esters, les éthers, les dérivés chlorés, nitrés, aminés, etc…

Dans l'atmosphère, les COV peuvent subir des transformations chimiques conduisant à la formation et à l'accumulation dans l'environnement d'autres composés nocifs, tels que l'ozone [*Jenkin et al., 1997*].

II.2.5.2. SOURCES HABITUELLES

Les sources de COV peuvent être naturelles (émissions de terpènes et d'isoprène par les végétaux) ou anthropiques. Ces dernières peuvent être d'origine industrielle (procédés nécessitant l'utilisation de solvant : chimie de base et chimie fine, parachimie, dégraissage des métaux, application de peinture, imprimerie, colles et adhésifs, caoutchouc … ; ou procédés n'impliquant pas de solvant : raffinage du pétrole, utilisation de chlorofluorocarbures, production de boissons alcoolisées, …), ou d'origine domestique (peinture, produits d'entretien, parfums, cosmétiques, journaux, tabac…) [*Kim et al., 2001 ; Khan et Ghoshal, 2000*].

II.2.5.3. TOXICITE DES COV

Les effets de chacun des COV sur la santé ne sont pas connus. De plus, en air intérieur, les occupants sont le plus souvent sujets à une exposition combinée de polluants, d'où une complexité supplémentaire pour étudier ces effets. Néanmoins, il est avéré que les COV ont des effets aigus sur la santé humaine lors d'une exposition à forte dose sur une courte période, ainsi que des effets chroniques par exposition à de faibles doses sur le long terme, tels que des effets cancérigènes ou toxiques pour la reproduction et le développement de l'homme. On leur attribue, suivant les composés, des irritations de la peau, des muqueuses et du système respiratoire, des nausées, maux de tête et vomissements [*Ware et al., 1993*]. Quelques composés, comme par exemple le benzène ou le chloroéthène, sont associés à des leucémies ou à des cancers (dans le cas d'exposition professionnelle). D'autres, comme les éthers de glycol [2-éthoxyéthanol, 2-butoxyéthanol, 1-méthoxy-2-propanol], sont suspectés d'atteintes à la reproduction.

II.2.5.4. NORMES

Il n'y a pas de valeur guide en air intérieur concernant les COV dans leur globalité, mais il existe des normes concernant les teneurs en COV particulièrement toxiques, comme le benzène et le formaldéhyde, qui sont données dans les paragraphes qui suivent concernant ces composés.

II.2.5.5. ETUDES EN LABORATOIRE

Peu d'études ont été réalisées en laboratoire sur les émissions de COV par les poêles à pétrole. Dong et al. [*1988*] ont mesuré un facteur d'émission d'hydrocarbures totaux de 355 $\mu g.g^{-1}$ (équivalent méthane) dans le cas d'un poêle radiant, avec un analyseur portable (Model 550, Analytical Instrument Development, Inc.).

Les résultats de Mumford et al. [*1992*] dans une pièce de 27 m^3 avec un taux de renouvellement d'air de 1 h^{-1}, pour deux types de poêle, par prélèvement sur résine XAD-2 pendant 8 h et analyse par GC-MS, sont rapportés dans le Tableau 11.

Type de poêle	**COSV ($T_{éb} > 300°C$) ($\mu g.m^{-3}$)**	**COV+COSV ($100 \leq T_{éb} \leq 400°C$) ($\mu g.m^{-3}$)**
Radiant	440	2100
Convectif mal réglé	500	1200
Niveau de fond	72	500

Tableau 11. Emissions de composés organiques [Mumford et al., 1992].

Le travail de Keyanpour-Rad [*2004*], sur un poêle à mèche convectif placé dans une enceinte de 2,6 m^3 par prélèvement pendant 8 h sur résine XAD-2 et analyse par GC-MS, a mis en évidence les composés ou familles de composés suivants : hydrocarbures aliphatiques, alcools aliphatiques, amines aliphatiques, cyclohexane, acides aromatiques, alkylbenzène, pentachlorophénol, cétones aliphatiques, phtalates, décahydronaphtalène, naphtalène, 1-nitronaphtalène et phénanthrène. Ces espèces ont été identifiées mais non quantifiées.

II.2.5.6. CONCENTRATIONS RELEVEES EN CONDITIONS REELLES D'UTILISATION

Dans une pièce de 216 m^3, Ragland et al. [*1985*] ont mesuré une concentration d'hydrocarbures totaux (à l'aide d'un analyseur avec détecteur à ionisation de flamme) inférieure à 20 ppb dans le conduit d'extraction de la hotte, placée au-dessus du poêle en fonctionnement. Une augmentation jusqu'à 200 ppb a été mesurée pendant les trois minutes qui ont suivi l'extinction du poêle.

Une augmentation rapide du niveau de concentration d'hydrocarbures totaux jusqu'à 2,1 ppm lors de l'allumage d'un poêle radiant a été observée par Dong et al. [*1988*] dans une pièce de 52 m^3 (taux de

renouvellement d'air non indiqué). Cette augmentation est suivie par une stabilisation des concentrations après environ un quart d'heure. Les mêmes mesures réalisées dans une pièce plus grande (135 m^3) conduisent au même résultat, avec une concentration en régime stable de 0,8 ppm (valeur palier).

Les mesures réalisées par Bozzelli et al. (1995) dans deux logements, différenciés par leur taille et leur taux de renouvellement d'air (respectivement 24 m^3 et 2,7 h^{-1}; et 80 m^3 et 0,7 h^{-1}), où fonctionne un poêle à pétrole radiant, indiquent l'émission d'hydrocarbures aliphatiques (de l'hexane au dodécane, ainsi que de cyclohexane) et de composés aromatiques et polyaromatiques (benzène, toluène, éthylbenzène, nitrobenzène, ortho-, méta-, para-xylènes, styrène et naphtalène), dans une gamme de concentration comprise entre 1 et 100 ppb. La concentration des COV ciblés est multipliée par six par rapport au niveau de fond et elle décroît ensuite d'approximativement 40 %, 15 min après l'extinction du poêle. Les concentrations mesurées dans la plus petite pièce sont au minimum le double de celles mesurées dans la plus grande, en raison des différences de volume et de ventilation.

II.2.5.7. COMPOSES ORGANIQUES VOLATILS PARTICULIERS

Le benzène et le formaldéhyde ont fait l'objet d'études spécifiques, en raison de leur toxicité reconnue. Ils sont présentés dans ce paragraphe.

II.2.5.7.1. Le benzène

II.2.5.7.1.1. Sources habituelles

Le benzène C_6H_6 est un composé aromatique provenant, en air intérieur, des matériaux de construction, des meubles, des photocopieuses et imprimantes, de garages attenants au logement, du stockage de solvants, de la fumée de tabac, des systèmes de chauffage et de cuisson, ainsi que des échanges avec l'air extérieur, en particulier à proximité du trafic routier, de stations-service et de certaines industries (charbon, huile, gaz naturel, industries chimiques et sidérurgiques).

II.2.5.7.1.2. Toxicité du benzène et de ses homologues supérieurs

La principale voie d'exposition au benzène est l'inhalation (95 à 99 %). La quantité absorbée est d'environ 50 % chez l'être humain [*OMS, 2010*]. Le benzène est ensuite distribué dans le corps, préférentiellement dans les tissus adipeux, en raison de sa nature lipophile, et dans la moelle osseuse. Le benzène est également capable de traverser la barrière hémato-encéphalique et le placenta. Il est ensuite principalement métabolisé par le foie, mais aussi dans la moelle osseuse [*OMS, 2010*]. Les métabolites responsables de l'hématotoxicité et de l'induction de

leucémie sont la benzoquinone, l'oxyde de benzène et le muconaldéhyde. Ces métabolites sont génotoxiques, et induisent des aberrations chromosomiques.

Les intoxications aiguës au benzène sont rares et surtout accidentelles. Les intoxications chroniques peuvent se manifester par des troubles neuropsychiques : irritabilité, baisse des capacités de concentration et de mémorisation, syndrome dépressif, troubles du sommeil [*Viala et al., 2005*].

Les principaux homologues supérieurs du benzène (toluène, xylènes, éthylbenzène, cumène et styrène) ont des métabolismes différents de celui du benzène, d'où l'absence d'activité myélotoxique et hématologique. La pénétration de ces hydrocarbures dans l'organisme se fait le plus souvent par voie pulmonaire. Les composés les plus légers sont éliminés en proportion importante par voie pulmonaire (20 à 50 % pour le toluène), le reste est métabolisé et excrété par voie urinaire. Pour les composés moins volatils, l'élimination pulmonaire est beaucoup plus faible (2 à 5 % pour le styrène). Ces hydrocarbures subissent, essentiellement au niveau du foie, un métabolisme oxydatif, portant surtout sur la chaîne latérale fixée au noyau aromatique. L'oxydation en phénols est minime, contrairement au benzène.

Les homologues supérieurs du benzène sont des irritants pour la peau et les muqueuses (oculaires, respiratoires, etc) et sont des dépresseurs du système nerveux central. Ils peuvent également, lors d'une intoxication aiguë, entraîner des troubles de l'excitabilité cardiaque. L'intoxication chronique se caractérise par l'asthénie (fatigue de l'organisme), des céphalées, de la nervosité, des irritations (nasales, bronchiques…), des dermatoses. Ces solvants traversent la barrière placentaire : ils sont toxiques pour le fœtus mais non tératogènes [*Viala et al., 2005*].

II.2.5.7.1.3. Normes

Le benzène est classé cancérigène par le Centre International de Recherche sur le Cancer (groupe I) [*OMS, 2010*]. D'après l'OMS, **il n'y a pas de niveau sécuritaire d'exposition au benzène** : quelle que soit la concentration à laquelle une personne est exposée, il existe un risque cancérigène. L'excès de risque unitaire pour une leucémie due à une exposition au benzène est de 6.10^{-6}. Il s'agit de l'excès attendu de cas d'une pathologie donnée, consécutive à l'exposition continue, sur une vie entière (70 ans), à une concentration de 1 $\mu g.m^{-3}$ de benzène [*OMS, 2010*]. Autrement dit, sur une population de un million de personnes, on observera en moyenne six cas de leucémie en relation avec cette exposition.

Les valeurs guides en air intérieur proposées en France par l'ANSES [*2008*] sont les suivants :

- Exposition à court terme (1 – 14 jours) : 3**0 $\mu g.m^{-3}$** (soit 9,3 ppb)
- Exposition intermédiaire (14 j – 1 an) : **20 $\mu g.m^{-3}$** (soit 6,2 ppb)

- Exposition à long terme (> 1 an) : **10 µg.m^{-3}** (soit 3,1 ppb)
- Exposition à long terme (vie entière, niveau de risque de 10^{-6}) : **0,2 µg.m^{-3}** (soit 0,06 ppb)
- Exposition à long terme (vie entière, niveau de risque de 10^{-5}) : **2 µg.m^{-3}** (soit 0,6 ppb)

Le Haut Conseil de la Santé Publique [*2010*] fixe les valeurs repères d'aide à la gestion pour le benzène dans les espaces clos suivantes :

- Valeur cible à atteindre en 5 ans : **2 µg.m^{-3}** (soit 0,6 ppb)
- Valeur repère de qualité d'air en dessous de laquelle aucune action corrective spécifique n'est préconisée aujurd'hui : **5 µg.m^{-3}** (soit 1,5 ppb)
- Valeur d'action rapide au-delà de laquelle les sources en cause doivent être rapidement identifiées et neutralisées : **10 µg.m^{-3}** (soit 6 ppb)

II.2.5.7.1.4. Concentrations relevées en conditions réelles d'utilisation

Les données bibliographiques contiennent très peu d'informations sur la mesure des émissions de benzène par les poêles à pétrole.

Bozzelli et al. [*1995*] ont effectué des prélèvements sur tubes Tenax, ensuite analysés par GC-FID après thermodésorption, dans une pièce de 24 m^3 avec un taux de renouvellement d'air de 2,7 h^{-1}, équipée d'un poêle à mèche radiant. Le niveau de benzène mesuré à 0,9 m du poêle et 2 m du sol, attribuable au fonctionnement du poêle à pétrole, est de 347 µg.m^{-3} (107 ppb), soit une augmentation de 2000 % par rapport au niveau de fond. En revanche, la concentration de benzène mesurée au cours de la même étude dans une pièce plus grande (80 m^3, 0,7 h^{-1}, prélèvement à 5,5 m du poêle radiant) s'élève à 23 µg.m^{-3} (7 ppb).

Inversement, il n'a pas été mis en évidence d'augmentation des concentrations de benzène dans l'air, imputable à l'usage de poêles à pétrole lors de l'étude réalisée par Ruiz et al. [*2010*] dans 16 logements de Santiago (Chili). Il est possible que l'évolution des carburants soit à l'origine de ce changement, comme précédemment noté dans le cas de SO_2.

II.2.5.7.1.5. Conclusion

Il n'y a pas de niveau sécuritaire d'exposition au benzène, car c'est un composé cancérigène sans seuil. Le benzène émis par les poêles à pétrole a été peu étudié. Les concentrations mesurées en laboratoire varient entre 7 et 107 ppb, mais ce composé n'a pas été mesuré de façon significative lors d'une campagne de mesures réalisée en 2010 chez des utilisateurs de poêles à pétrole chiliens.

II.2.5.7.2. Le formaldéhyde

Le formaldéhyde (H_2CO) est classé cancérigène par le Centre International de Recherche sur le Cancer (groupe I) depuis 2004 [*IARC, 2004*]. Le formaldéhyde est incolore, irritant et âcre à l'odeur. Il peut être détecté par la plupart des gens à des niveaux inférieurs à 100 $\mu g.m^{-3}$, soit environ 80 ppb [*Hollowell et Miksch, 1981*].

II.2.5.7.2.1. Sources habituelles

Le formaldéhyde est produit à grande échelle dans le monde et il est utilisé comme désinfectant et agent de conservation. Il est aussi destiné à l'achèvement des textiles et à la fabrication de résines servant d'adhésifs et de liants dans les produits du bois, le papier, la laine de verre et la laine de pierre, de même que dans certains plastiques, revêtements, peintures, vernis et produits chimiques industriels. Le formaldéhyde est émis par certaines activités humaines comme le tabagisme, la combustion de carburants pour automobiles, etc., mais il est aussi produit par des sources naturelles (végétation, feux de forêt, …)

En air intérieur, le formaldéhyde est libéré par de nombreux produits (meubles, matériaux de construction faits d'aggloméré de bois, de panneaux de fibres à densité moyenne et de certains plastiques moulés; produits de consommation, notamment certaines peintures au latex, des papiers peints, des articles en carton et en papier, des détergents à vaisselle, des assouplissants, des produits pour les chaussures, des nettoyeurs pour tapis, des colles, des adhésifs, des vernis-laques et certains produits cosmétiques comme le vernis à ongles et les durcisseurs d'ongles; certains tissus infroissables…). Parce qu'il est libéré par ces sources, le formaldéhyde est présent à de faibles concentrations (quelques dizaines de ppb) dans tous les bâtiments. Cette teneur peut être plus importante si des sources de combustion sont présentes dans le logement (bougies, encens, chauffage, gazinière).

II.2.5.7.2.2. Toxicité du formaldéhyde

Les voies d'exposition au formaldéhyde sont l'inhalation, l'absorption orale et l'exposition dermique. Plus de 90% du formaldéhyde inhalé est absorbé et métabolisé en formiate dans les voies respiratoires supérieures par les érythrocytes (globules rouges), en raison de sa grande solubilité dans l'eau [*OMS, 2010*]. Des oxydations successives peuvent se poursuivre et conduire à la formation de dioxyde de carbone, ensuite éliminé par désorption pulmonaire. Le formaldéhyde est électrophile et peut réagir avec des macromolécules comme l'ADN, l'ARN et les protéines pour former des adduits réversibles ou des liaisons transversales (protéines-ADN) irréversibles.

Le formaldéhyde présent dans l'air est très irritant pour les yeux, le nez et la gorge à des concentrations de l'ordre de 0,2 à 2,0 $mg.m^{-3}$ (0,2 à 1,6 ppm). Ces symptômes apparaissent dans la plupart des cas lors d'une exposition à des concentrations de 0,2 - 0,4 $mg.m^{-3}$ (0,2 à 0,3 ppm). L'irritation oculaire peut apparaître avant que

l'odeur ne soit perçue. Le formaldéhyde peut également avoir des effets sur les poumons, comme l'asthme ou des réactions allergiques, et causer de l'eczéma [*OMS, 2010*]. Il a été montré que cette substance peut induire un cancer nasopharyngé, une leucémie myéloïde, et probablement un cancer des sinus [*OMS, 2010*]. La sensibilité exacerbée des enfants au formaldéhyde a été décrite dans une étude comparative, qui a permis d'observer une diminution de la fonction respiratoire d'enfants exposés à des concentrations faibles de 37,5 $\mu g.m^{-3}$ (30 ppb) de formaldéhyde de façon chronique, sans effet sur celle des adultes [*Krzyzanowski et al., 1990*]. Cette étude fait également état d'une augmentation de la fréquence d'apparition de l'asthme et de bronchites chez les enfants vivant dans des logements présentant des concentrations moyennes de formaldéhyde supérieures à 75 $\mu g.m^{-3}$ (60 ppb). De plus, une corrélation entre l'exposition au formaldéhyde et la baisse des performances à une batterie de tests alliant dextérité, mémoire et coordination, a pu être établie [*Kilburn et al., 1985*].

II.2.5.7.2.3. Normes

L'OMS préconise une valeur guide en air intérieur à court terme de **0,1 mg.m^{-3}**, soit 80 ppb (concentration moyenne sur 30 minutes), visant à prévenir les effets sur la fonction pulmonaire et les effets à long terme tels que le cancer naso-pharyngé et la leucémie myéloïde [*OMS, 2010*].

Les valeurs guides en air intérieur établies en 2007 par l'ANSES sont de **50 µg.m^{-3}** (40 ppb) pour une exposition de 2 h, et de **10 µg.m^{-3}** (8 ppb) pour une exposition à long terme (< 1 an).

Le Haut Conseil de Santé Publique [*2009*] fixe des valeurs repères d'aide à la gestion dans l'air des espaces clos pour les bâtiments privés et publics. Les valeurs suivantes sont représentatives d'une exposition sur le long terme :

- Valeur cible à atteindre en 10 ans : **10 µg.m^{-3}** (8 ppb)
- Valeur repère de qualité d'air en dessous de laquelle, en 2009, aucune action corrective spécifique n'est préconisée : **30 µg.m^{-3}** (24 ppb)
- Valeur d'information et de recommandation (valeur maximale admissible pour une exposition de longue durée) : 5**0 µg.m^{-3}** (40 ppb)
- Valeur d'action rapide, nécessitant l'identification et la neutralisation des sources en cause dans le mois suivant la mesure : **100 µg.m^{-3}** (80 ppb)

Dans le cas des bâtiments neufs livrés à partir de 2012, ceux-ci devront présenter des teneurs moyennes inférieures à 10 $\mu g.m^{-3}$ avant livraison aux occupants. Il en est de même pour ceux faisant l'objet de rénovation de grande ampleur.

II.2.5.7.2.4. Etudes en laboratoire

Les facteurs d'émission des poêles à pétrole à mèche pour le formaldéhyde sont regroupés dans le Tableau 12. Ils sont compris entre 2,0 et 27,4 $\mu g.g^{-1}$ pour les poêles radiants et entre 2,0 et 19,6 $\mu g.g^{-1}$ pour les poêles convectifs.

Auteurs	Commentaire	Facteurs d'émission Poêle radiant ($\mu g.g^{-1}$)		Facteurs d'émission Poêle convectif ($\mu g.g^{-1}$)	
		n	Formaldéhyde	n	Formaldéhyde
Traynor et al., 1983	Poêle neuf, allumé dans la chambre	1	27,4	2	2,0 ± 2,2
	Poêle neuf, 10 min allumage	1	21,3	2	7,0 ± 1,2
	Poêle utilisé pendant 1 an, 10 min allumage	1	4,4		
Cáceres et al., 1983	-	3	3,7		
		3	3,3		
		3	2,0		
Woodring et al., 1985	Carburant 1-K ; moyenne horaire	2	20,4 ± 1,7	3	19,6 ± 5,3
		2	7,8 ± 1,7		
	Carburant 2-K ; moyenne horaire	1	23,0		

Tableau 12. Facteurs d'émission de formaldéhyde relevés dans la littérature.

II.2.5.7.2.5. Concentrations relevées en conditions réelles d'utilisation

Seulement Leaderer et al. [*1986*], lors d'une étude portant sur 55 logements du Connecticut, ont cherché si les poêles à pétrole constituaient une source significative de formaldéhyde dans l'air intérieur. Ils n'ont cependant pas constaté d'augmentation du niveau de formaldéhyde concomitant à l'usage de poêles à pétrole. La concentration moyenne mesurée est faible : 27,5 ± 17,5 $\mu g.m^{-3}$ (22 ± 14 ppb).

II.2.5.7.2.6. Conclusion

Le formaldéhyde est un composé ayant de nombreux effets sur la santé. La teneur limite en air intérieur préconisée par l'OMS pour une exposition à court terme (30 min) est de 0,1 $mg.m^{-3}$ (80 ppb). A cause de la multiplicité des sources de formaldéhyde présentes dans les logements, il n'a pas été mis en évidence que les poêles à pétrole étaient des émetteurs significatifs de formaldéhyde.

II.2.6. LES PARTICULES

II.2.6.1. SOURCES HABITUELLES

Depuis l'épisode du brouillard mortel d'Engis et Flemalle de 1930 en Belgique et à la suite de travaux sur le London smog (1952), les particules d'aérosol sont connues en Europe pour leur effet délétère. Elles peuvent être d'origine naturelle ou anthropique.

Les particules d'origine naturelle sont formées par action mécanique (eau, gel, vent sur les roches, les sols ou les sables), par évaporation de particules liquides (sels marins), lors de processus de combustion (éruptions volcaniques, feux de biomasse), ou lors de processus biologiques (pollens, débris végétaux). L'oxydation de composés en phase gazeuse et nucléation ou adsorption sur des particules préexistantes est également une source de particules [*Delmas et al., 2005*].

Les principales sources anthropiques sont les installations fixes ou mobiles de combustion (biomasse, pétrole ou produits dérivés) et les procédés industriels ayant lieu à haute température tels que l'extraction de minéraux, la cimenterie, l'aciérie, la fonderie, la verrerie, l'industrie plâtrière, la chimie fine, etc.

La taille des particules présentes en atmosphère urbaine est généralement comprise entre 0,02 et 100 μm de diamètre [*Nemmar et al., 2002*]. Leur composition est très variable.

II.2.6.2. TOXICITE DES PARTICULES

Le dépôt de particules dans l'appareil respiratoire dépend essentiellement de leur diamètre aérodynamique. Les particules fines (de diamètre aérodynamique inférieur à 1 μm) peuvent atteindre la région alvéolaire et rester dans le poumon. Les mécanismes d'action au niveau du poumon ont été partiellement élucidés. Ils montrent clairement que les particules induisent un stress oxydant à l'origine d'une réponse inflammatoire. Celle-ci pourrait expliquer le déclenchement ou l'accentuation de troubles respiratoires chez les populations sensibles. Les plus petites particules peuvent passer dans la circulation générale [*Nemmar et al., 2002*] ou diffuser à travers l'épithélium pulmonaire [*Marano et al., 2004*] et se retrouver dans le sang, d'autant plus facilement qu'elles sont hydrosolubles et de masse molaire inférieure à 10 000 $g.mol^{-1}$ [*Viala, 1998*].

Les particules plus grosses se déposent sur la muqueuse nasale et sont éliminées par les sécrétions nasales ou absorbées au niveau du tractus gastro-intestinal. Les particules de taille moyenne peuvent se déposer dans la

trachée, les bronches ou les bronchioles, être remontées par les mécanismes mucociliaires, puis éliminées par la toux ou réingérées. D'autres sont phagocytées par les macrophages et absorbées dans les voies lymphatiques.

Les particules solides servent de vecteur à différentes substances inflammatoires, allergisantes, toxiques voire cancérigènes ou mutagènes (métaux lourds, HAP, ...) et restent de ce fait un sujet important de préoccupation, en particulier concernant les asthmatiques. Elles peuvent en effet provoquer chez ces personnes une réponse à des niveaux d'exposition plus faibles aux allergènes auxquels elles sont sensibilisées. Il reste cependant des incertitudes sur les propriétés physicochimiques responsables de ces effets, en particulier sur les rôles respectifs des composés organiques, des métaux, de la réactivité de surface et de la taille des particules dans la réponse biologique [*Marano et al., 2004*].

Les données expérimentales sur les effets systémiques des particules, en particulier cardiovasculaires, sont encore partielles.

II.2.6.3. NORMES

Il n'existe pas de valeur guide en air intérieur concernant la France, car en raison des données toxicologiques et épidémiologiques, il ne peut pas être établi de seuil en deçà duquel aucun effet sanitaire néfaste n'est attendu à l'échelle de la population [*ANSES, 2009 b*]. L'OMS signale dans une mise à jour de ses valeurs guide [*OMS, 2005*] que malgré l'évidence des effets sanitaires liés à l'exposition par inhalation aux particules ultrafines, les connaissances scientifiques sont actuellement insuffisantes pour établir une relation de dose à effet, et donc une valeur guide de qualité de l'air. Les valeurs guides néanmoins proposées par l'OMS pour des critères de gestion sont les suivantes :

Pour une exposition par inhalation, et concernant une exposition aiguë (24 h) :
25 µg.m^{-3} pour les **$PM_{2,5}$** et **50 µg.m^{-3}** pour les **PM_{10}**.

Pour une exposition chronique (1 an), ces valeurs sont de **10** et **20 µg.m^{-3}** respectivement.

Le Canada [*Santé Canada, 1987*] a proposé des valeurs guides en air intérieur pour les logements. Les valeurs suivantes concernent les **$PM_{2,5}$** :

- **100 µg.m^{-3}** en exposition aiguë (1 h)
- **40 µg.m^{-3}** en exposition chronique.

II.2.6.4. ETUDES EN LABORATOIRE

Il est difficile de comparer les résultats des études sur les particules émises par les poêles à pétrole. Les conditions opératoires sont en effet très différentes, notamment en ce qui concerne les modèles de poêles et de carburants utilisés, les caractéristiques de l'enceinte d'étude (taux de renouvellement d'air, taille de la pièce, revêtement des parois…), les tailles de particules échantillonnées, la technique de prélèvement et d'analyse, l'expression des résultats en masse ou en nombre de particules…

Les facteurs d'émission particulaires relevés dans la littérature (Tableau 13) sont compris entre 8,7 et 147,9 $\mu g.g^{-1}$ pour les poêles radiants et entre 1,7 et 169,7 $\mu g.g^{-1}$ pour les poêles convectifs.

Auteurs	**Taille des particules**	**Facteur d'émission Poêle radiant ($\mu g.g^{-1}$)**	**Facteur d'émission Poêle convectif ($\mu g.g^{-1}$)**
Traynor et al., 1983	5-400 nm	8,7	<1,7
Tu et Hinchliffe, 1983	7 nm – 3 µm	63,5	-
Ragland et al., 1985	Particules totales en suspension	17,9 – 25,3	11,8 – 21,4
Woodring et al., 1985	Particules respirables	56,5 – 147,9	169,7
White et al., 1987	PM_{10}	25 - 80	20 - 59
Tichenor et al., 1990	PM_{10}	45 - 58	38 - 55
Zhou et Cheng, 2000	Particules totales en suspension	30,9	10,4

Tableau 13. Facteurs d'émission de particules

Il ressort de ces études que les émissions de particules imputables au fonctionnement d'un poêle à pétrole dépendent des facteurs suivants :

- Type de chauffage

L'influence du type de chauffage (radiant ou convectif) sur la production de particules est controversée. En effet, d'après les expériences menées par Traynor et al. [*1983*] ainsi que par Zhou et Cheng [*2000*], la production de particules est plus importante pour le type radiant, tandis que Mumford et al. [*1992*] rapportent que le type convecteur produit deux fois plus de particules que le type radiant. Ni Arashidani et al. [*1996*] ni White et al. [*1987*] ne relèvent de différence dans le nombre de particules émises par les divers types de poêles à pétrole.

L'influence de la puissance du poêle utilisé sur la production particulaire est également controversée. D'après les facteurs d'émission particulaires mesurés par Ragland et al. [*1985*], les chauffages de forte puissance émettraient moins de particules, tandis que White et al. [*1987*] n'ont pas pu mettre en évidence cette relation.

L'âge du poêle ne semble pas influencer les émissions particulaires [*White et al., 1987*], néanmoins l'âge de la mèche affecte la combustion et les taux d'émission de polluants [*Lionel et al., 1986*].

- Nature du carburant

La nature du carburant est susceptible d'influencer les émissions particulaires des poêles à pétrole, même si peu d'études ont été faites sur le sujet [*Zhou et Cheng, 2000*]. Plus le taux de cendres [1] du carburant est élevé, plus le poêle émet des particules [*White et al., 1987*].

- Allumage du chauffage

La plus grande production de particules, en masse, a lieu lors de l'allumage, avec des concentrations totales comprises entre 73 et 721 $\mu g.m^{-3}$ [*Tichenor et al., 1990*]. Cela correspond également aux observations faites par Zhou et Cheng [*2000*], qui ont montré que le taux de génération de particules augmente rapidement lors de l'allumage du chauffage et atteint un maximum au bout de dix minutes, pour ensuite décroître rapidement.

- Conditions opératoires

La hauteur de mèche semble influencer les quantités de particules émises par le poêle [*Mumford et al. 1992 ; Traynor et al. 1983*]. Un poêle convectif mal réglé conduit à des concentrations totales en particules de 5300 $\mu g.m^{-3}$, alors que dans les mêmes conditions opératoires (pièce de 27 m^3, taux d'échange d'air de 1 h^{-1}) un poêle à mèche ne produit que 20 $\mu g.m^{-3}$ [*Mumford et al. 1992*]

La taille des particules émises augmente avec l'humidité relative de la pièce. La présence de gradients de température et les réactions hétérogènes aux parois influent aussi sur la distribution en taille et le nombre des particules [*Tu et Hinchliffe, 1983*]. Chen et al. [*1996*] ont mesuré les émissions particulaires d'un poêle radiant dans une enceinte de 1,3 m^3 (taux de renouvellement d'air non fourni) et ont obtenu une concentration moyenne de 69 $\mu g.m^{-3}$ pour trois heures de fonctionnement, avec un nombre de particules de $2{,}7.10^5$ par cm^3, pour un diamètre médian de 82 nm ; elles sont composées à 42 % en masse de sulfate. Cette même proportion de sulfate (45-62 %) dans les particules a été mesurée par Leaderer et Boone [*1990*] dans une pièce de 34 m^3 avec un taux d'échange d'air de 1,4 h^{-1}. Arashidani et al. [*1996*] ont trouvé que 90 % des particules en suspension dans une pièce de 45 m^3 (taux de renouvellement d'air de $0{,}7 \pm 0{,}4$ h^{-1}) ont une gamme de taille comprise entre 0,3 et 0,5 μm.

[1] Les cendres résultent de la pyrolyse des impuretés minérales des composés organiques. Le taux de cendres est mesuré d'après la masse du résidu solide obtenu après combustion du composé organique dans des conditions normalisées.

II.2.6.5. CONCENTRATIONS RELEVEES EN CONDITIONS REELLES D'UTILISATION

Les résultats de Mumford et al. [*1991*] portant sur les mesures de PM_{10} dans huit mobile homes ne montrent pas d'incidence significative de l'utilisation d'un poêle à pétrole sur cette gamme de taille particulaire. La concentration moyenne sur 45 échantillonnages est de 73,7 ± 7,3 $\mu g.m^{-3}$.

Koutrakis et Briggs [*1992*] ont trouvé lors de leur campagne de mesures portant sur 394 logements que les cigarettes sont des sources d'émission de particules plus importantes que les poêles à pétrole, ce qui est en contradiction avec les mesures en laboratoire réalisées par Tu et Hinchliffe [*1983*].

Les résultats de l'étude de Leaderer et al. [*1999*] dans 74 résidences sont reportés dans le Tableau 14. Ils mettent en évidence des différences significatives de concentration de particules et de leur composition entre les maisons équipées de poêles à pétrole et les maisons sans poêle à pétrole.

Polluant	Site	n	Moyenne	Minimum	Maximum
PM_{10} ($\mu g.m^{-3}$)	Air extérieur	53	23,93 ± 22,21	4,73	112,84
	Maisons avec poêle à pétrole	42	44,36 ± 30,37	6,45	141,41
	Maisons sans poêle à pétrole	84	25,71 ± 21,12	2,82	181,75
$PM_{2.5}$ ($\mu g.m^{-3}$)	Air extérieur	48	12,56 ± 7,27	3,21	43,47
	Maisons avec poêle à pétrole	71	29,97 ± 23,58	2,13	114,58
	Maisons sans poêle à pétrole	145	17,43 ± 23,63	1,72	207,54
SO_4^{2-} ($\mu g.m^{-3}$)	Air extérieur	52	2,94 ± 1,43	0	6,36
	Maisons avec poêle à pétrole	74	7,94 ± 7,32	0,59	36,44
	Maisons sans poêle à pétrole	149	2,07 ± 0,32	0	14,06
H^+ ($\mu g.m^{-3}$)	Air extérieur	52	6,5 ± 9,8	0	50,3
	Maisons avec poêle à pétrole	74	5,7 ± 6,9	0	38,5
	Maisons sans poêle à pétrole	149	3,11 ± 5,00	0	21,9
NH_4^+ ($\mu g.m^{-3}$)	Air extérieur	52	1,16 ± 0,70	0,04	3,38
	Maisons avec poêle à pétrole	74	2,27 ± 2,79	0,01	14,34
	Maisons sans poêle à pétrole	147	0,17 ± 0,39	0	2,25
NO_3^- ($\mu g.m^{-3}$)	Air extérieur	52	1,27 ± 1,36	0,11	6,27
	Maisons avec poêle à pétrole	74	0,53 ± 0,58	0,02	4,17
	Maisons sans poêle à pétrole	149	0,39 ± 0,56	0,02	4,91

Tableau 14. Concentrations mesurées en hiver par Leaderer et al. [1999].

Ruiz et al. [*2010*] ont mis en évidence que les poêles à pétrole induisent une augmentation de la concentration de $PM_{2.5}$ de 46 $\mu g.m^{-3}$ par rapport aux maisons témoins.

II.2.6.6. CONCLUSION

Les particules émises par les poêles à pétrole sont des particules sphériques, des clusters et des agrégats de chaînes carbonées dans un intervalle de taille allant de 0,1 à plusieurs µm [*Fan et Zhang, 2001*], une large majorité de particules ayant un diamètre d'environ 0,2 µm. On y trouve également des traces de chrome et de nickel. Selon Chen et al. [*1996*], la majorité des particules émises par un chauffage de type radiant est composée de sulfates, d'un diamètre médian de 0,082 µm. La quantité de sulfates produite est proportionnelle à la quantité de particules émises [*Leaderer et Boone, 1990*]. En raison de la teneur en soufre des pétroles lampants utilisés il y a quelques années, les principales formes associées à l'utilisation de poêles à pétrole sont le sulfate d'ammonium (corrosif) et le bisulfate d'ammonium (utilisé comme herbicide) [*Leaderer et Boone, 1990*].

Les poêles à pétrole émettent des aérosols acides, mais les mesures peuvent être sous-estimées en raison d'une neutralisation par l'ammoniac [*Leaderer et al., 1999*]. Ces aérosols peuvent diminuer la fonction pulmonaire, ou engendrer de l'asthme. [*Sue et al., 1992*]

Il n'existe pas de valeur guide en air intérieur en France, mais les valeurs proposées pour les **$PM_{2,5}$** par Santé Canada sont de **100 µg.m^{-3}** sur une heure et de **40 µg.m^{-3}** en exposition chronique, tandis que les valeurs limites données par l'OMS pour des critères de gestion sont de **25 µg.m^{-3}** et **50 µg.m^{-3}** pour une exposition aiguë (24h) aux $PM_{2,5}$ et PM_{10} respectivement, et de **10** et **20 µg.m^{-3}** pour une exposition chronique (1 an).

II.2.7. LES HYDROCARBURES AROMATIQUES POLYCYCLIQUES

II.2.7.1. DEFINITION

Les Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP) sont des molécules composées uniquement d'atomes d'hydrogène et de carbone, et contenant au moins 2 cycles aromatiques. Les HAP de faible poids moléculaire (2 à 3 cycles) se retrouvent essentiellement en phase gazeuse, tandis que ceux contenant 5 cycles ou plus sont adsorbés sur des particules d'aérosol. Les composés de poids intermédiaire (4 cycles) sont présents à la fois en phase gazeuse et en phase particulaire [*OMS, 2010*], avec une répartition dépendant de la température et de la pression.

II.2.7.2. SOURCES HABITUELLES

Les HAP sont des polluants formés lors de la combustion de composés carbonés à haute température. En air extérieur, ils sont principalement émis par les véhicules motorisés, mais aussi par les industries (incinérateurs de déchets, centrales électriques, …). Ils sont présents en air intérieur en raison des échanges avec l'air extérieur (infiltration), mais ils proviennent également de sources de combustion telles que les feux de cheminée, le chauffage, la fumée du tabac, l'encens, les bougies et les activités de cuisine.

II.2.7.3. TOXICITE DES HAP

Les voies d'exposition de l'être humain aux HAP sont l'inhalation et la consommation d'eau et de nourriture contaminées. Leur toxicocinétique dépend de leurs propriétés physico-chimiques. Après dépôt dans les voies aériennes, la structure, les dimensions et la nature chimique des HAP déterminent leur devenir dans l'organisme. Ils peuvent se dissocier des particules sur lesquelles ils sont adsorbés, rester liés à celles-ci et être évacués, ou rester dans les poumons. Il n'y a pas de données quantitatives disponibles sur l'absorption des HAP par les poumons chez l'homme. Néanmoins, étant très lipophiles, ces composés traversent aisément les barrières biologiques, et sont ainsi distribués dans tout le corps.

Les HAP ne s'accumulent pas dans l'organisme, ils subissent une clairance hépatobiliaire, une élimination majoritaire par voie fécale pour les composés les plus lourds, et par voie urinaire pour les plus légers [*OMS, 2010*]. Les intermédiaires réactionnels et les métabolites sont responsables de la toxicité et de la carcinogénicité des HAP. Trois voies métaboliques principales entrent en jeu, au niveau du foie, des poumons, du mucus intestinal, de la peau et des reins, avec la formation d'époxydes dihydrodiol (formation d'adduits à l'ADN), la formation de cations radicaux (phénols), et de o-quinones (formant à leur tour des espèces oxygénées réactives associées à une carcinogénèse). Le risque majoritaire d'une exposition aux HAP en air intérieur est le cancer du poumon.

II.2.7.4. NORMES

Le benzo(a)pyrène (B(a)P) est le composé le plus cancérigène parmi les HAP, et il a été choisi comme marqueur des HAP en raison de la difficulté à développer des valeurs guides pour un mélange de ces composés. **Aucun seuil n'a pu être déterminé par l'OMS : toute concentration de HAP en air intérieur peut potentiellement porter atteinte à la santé.** L'excès de risque unitaire pour un cancer en rapport avec une exposition au benzo(a)pyrène de 1 ng.m^{-3} est de 8,7.10^{-5} [*OMS, 2010*]. Autrement dit, sur une population de 100 000 personnes, on observera en moyenne 8,7 cas de cancers en relation avec cette exposition.

Depuis 2009, il existe en France une valeur guide en air intérieur de l'ANSES [*2009 a*] concernant le naphtalène pour une exposition à long terme (> 1 an) : **10 µg.m^{-3}**.

II.2.7.5. ETUDES EN LABORATOIRE

Ragland et al. [*1985*] ont prélevé les HAP présents dans la phase particulaire et dans la phase gazeuse durant huit heures dans une pièce de 216 m^3. Seuls 15 HAP ont été recherchés : fluorène, phénanthrène, anthracène, fluoranthène, pyrène, 2,3-benzofluorène, benzo[a]anthracène, triphénylène, chrysène, benzo[a]pyrène, pérylène, 1,2,3,4-dibenzanthracène, benzo[g,h,i]pérylène, coronène et 1,2,4,5-dibenzopyrène. Aucun HAP n'a été trouvé dans les suies émises. En revanche, les HAP présents dans la phase gazeuse et piégés par la résine XAD-2 ont pu être identifiés et quantifiés pour deux modèles de poêles à mèche radiants et deux modèles convectifs. Il en ressort que les poêles de type radiant émettent plus de HAP que les poêles de type convectif (Tableau 15). Il ne semble pas y avoir de surproduction lors de l'allumage et de l'extinction du poêle. Les facteurs d'émission de HAP totaux déterminés dans cette étude sont compris entre 26 et 54 $ng.g^{-1}$ pour les poêles radiants, et entre 0,6 et 10 $ng.g^{-1}$ pour les poêles convectifs.

	Poêles à mèche radiants		**Poêles à mèche convectifs**	
Puissance (W)	**2200**	**2800**	**2400**	**3600**
Fluorène ($ng.m^{-3}$)	33,8	14,0	12,3	1,8
Phénanthrène ($ng.m^{-3}$)	204,4	87,3	36,0	5,7
Anthracène ($ng.m^{-3}$)	14,5	3,1	1,8	nd
Fluoranthène ($ng.m^{-3}$)	68,9	29,8	3,9	nd
Pyrène ($ng.m^{-3}$)	55,7	29,8	4,4	2,6
Triphényl-chrysène ($ng.m^{-3}$)	1,8	nd	nd	nd
Total ($ng.m^{-3}$)	**379,1**	**164,0**	**58,4**	**10,1**

Tableau 15. Concentration de HAP en phase gazeuse [Ragland et al., 1985].

Keyanpour-Rad [*2004*] a réalisé des mesures qualitatives des émissions d'un poêle à mèche convectif, placé dans une enceinte de 2,6 m^3. Les composés organiques semi-volatils ont été prélevés sur résine XAD-2. Les HAP détectés par GC-MS sont les suivants : décahydronaphtalène, naphtalène, phénanthrène, anthracène et chrysène.

II.2.7.6. CONCENTRATIONS RELEVEES EN CONDITIONS REELLES D'UTILISATION

Mumford et al. [*1991*] ont réalisé des prélèvements sur filtre pour les HAP en phase particulaire, et sur résine pour ceux présents en phase gazeuse, dans un mobile home ayant un taux de renouvellement d'air de 0,74 h^{-1}, dans lequel est utilisé un poêle convectif. Les HAP avec au moins quatre cycles aromatiques (cyclopenta[cd]pyrène, benz[a]anthracène, benzo[k]fluoranthène, benzo[a]pyrène, benzo[ghi]pérylène, et indéno[1,2,3,-cd]pyrène) sont présents en phase particulaire de façon plus importante lorsque le poêle fonctionne. Les composés gazeux sont majoritairement l'acénaphtylène (également présent dans le carburant) et le cyclopenta[cd]pyrène. Les niveaux de concentration mesurés sont reportés dans le Tableau 16.

Composés	**Concentration ($ng.m^{-3}$)**		**Concentration dans le carburant ($ng.\mu L^{-1}$)**
	Sur filtre	**Sur résine XAD**	
acénaphtylène	ns	49	8,6
cyclopenta[cd]pyrène	1,39	2,32	nd
benz[a]anthracène	1,13	0,95	nd
chrysène	0,91	0,7	nd
benzofluoranthènes	5,05	n.d.	nd
benzo[a]pyrène	1,76	n.d.	nd
indéno[1,2,3-cd]pyrène	1,15	n.d.	nd
benzo[ghi]pérylène	3,48	n.d.	nd
coronène	2,23	n.d.	nd

Tableau 16. HAP présents dans un logement utilisant un poêle à pétrole [Mumford et al., 1991].

Ruiz et al. [*2010*] ont analysé les composés organiques prélevés dans la fraction $PM_{2,5}$ collectée durant 48 heures dans 16 logements. Certains composés ont été mesurés à des concentrations importantes (1 à 4 $ng.m^{-3}$) dans les résidences où un poêle à pétrole est utilisé (phénanthrène, fluoranthène, benzo[k]fluoranthène, indéno[1,2,3-cd]pyrène, et benzo[ghi]pérylène). Les concentrations moyennes mesurées sont reportées dans le Tableau 17. Ces concentrations sont du même ordre de grandeur que celles mesurées par Mumford et al. [*1991*] mais elles sont bien inférieures aux mesures de Ragland et al. [*1985*], sans qu'on puisse proposer d'explication.

HAP (ng.m^{-3})	Air extérieur	Maisons témoins	Maisons avec poêles à pétrole
acénaphthylène	0,145 ± 0,061	0,143 ± 0,056	**0,358 ± 0,293**
fluorène	0,052 ± 0,004	0,048 ± 0,007	**0,116 ± 0,096**
phénanthrène	0,558 ± 0,053	0,482 ± 0,093	**1,270 ± 1,000**
anthracène	0,242 ± 0,024	0,209 ± 0,046	**0,610 ± 0,684**
fluoranthène	1,380 ± 0,154	0,796 ± 0,189	**1,757 ± 1,819**
pyrène	1,440 ± 0,162	0,836 ± 0,180	1,521 ± 1,468
benzo[a]anthracène	1,471 ± 0,368	0,838 ± 0,193	2,047 ± 1,668
chrysène	2,869 ± 0,568	1,480 ± 0,303	3,511 ± 2,321
benzo[b]fluoranthène	1,811 ± 0,830	1,907 ± 0,510	1,983 ± 1,138
benzo[k]fluoranthène	1,751 ± 0,531	1,795 ± 0,343	**3,984 ± 3,751**
benzo[a]fluoranthène	0,312 ± 0,100	0,415 ± 0,114	0,563 ± 0,420
benzo[e]pyrène	2,018 ± 0,602	2,176 ± 0,416	2,919 ± 2,226
benzo[a]pyrène	1,330 ± 0,516	1,892 ± 0,529	2,703 ± 2,600
pérylène	0,250 ± 0,093	0,368 ± 0,095	**0,508 ± 0,472**
indéno[1,2,3-cd]pyrène	0,447 ± 0,159	0,713 ± 0,195	**1,150 ± 1,496**
dibenzo[a,h]anthracène	0,085 ± 0,030	0,108 ± 0,021	0,153 ± 0,178
benzo[g,h,i]pérylène	0,644 ± 0,205	1,206 ± 0,339	**1,427 ± 1,723**
coronène	0,196 ± 0,112	0,549 ± 0,200	**0,660 ± 0,979**
dibenzo[a,e]pyrène	0,027 ± 0,053	0,077 ± 0,061	**0,152 ± 0,248**
2-méthylnaphtalène	0,111 ± 0,018	0,106 ± 0,034	**0,229 ± 0,090**
1-méthylnaphtalène	0,024 ± 0,005	0,032 ± 0,014	**0,067 ± 0,030**
2,6-diméthylnaphtalène	0,229 ± 0,032	0,273 ± 0,046	**0,661 ± 0,527**
9-fluorénone	0,367 ± 0,035	0,254 ± 0,060	0,484 ± 0,438
9-méthylanthracène	0,370 ± 0,043	0,281 ± 0,061	**0,778 ± 1,148**
anthraquinone	0,777 ± 0,162	0,316 ± 0,128	0,313 ± 0,150
méthylfluoranthène	0,249 ± 0,052	0,131 ± 0,030	0,268 ± 0,168
7-isopropyl-1-méthylphénanthrène	0,555 ± 0,139	0,216 ± 0,058	0,357 ± 0,265
benz[a]anthracène-7,12-dione	0,763 ± 0,289	0,624 ± 0,037	0,846 ± 0,660
méthylchrysène	0,125 ± 0,038	0,093 ± 0,018	0,112 ± 0,061
picène	0,028 ± 0,021	0,039 ± 0,014	**0,074 ± 0,109**
TOTAL	**20,6 ± 5,8**	**18,4 ± 4,4**	**31,3 ± 28,2**

Tableau 17. Concentrations moyennes (ng.m^{-3}) de HAP présents dans la fraction $PM_{2,5}$ [Ruiz et al., 2010]. Les concentrations des substances significativement émises par les poêles à pétrole figurent en caractères gras.

II.2.7.7. LES HYDROCARBURES AROMATIQUES POLYCYCLIQUES NITRES

Comme les HAP, les HAP nitrés peuvent être présents dans l'air sous forme gazeuse ou adsorbés sur des particules d'aérosol. Ils sont formés de deux à cinq cycles aromatiques. Cette classe chimique présente de nombreux isomères en raison de la position du groupement NO_2 sur les cycles aromatiques. Ils peuvent se former directement lors d'une combustion incomplète, ou par réaction entre les oxydes d'azote et les HAP.

Les polluants émis par les poêles à pétrole contiennent de nombreux HAP nitrés, possédant un caractère mutagène potentiel pour l'homme [*Tokiwa et al., 1987*]. Les particules émises lors de l'allumage de poêles à pétrole contiennent plus de nitropyrènes (NP) mutagènes et particulièrement de dinitropyrènes (DNP) que lors du fonctionnement en régime stable. Cela est attribué à la plus basse température de combustion lors de

l'allumage de l'appareil. Les DNP et le 1-NP sont classés dans le groupe 2B par le CIRC : substances possiblement cancérogènes pour l'homme. Ohnishi et al. [*1985*] ont déterminé que la mutagénicité des HAP nitrés est maximale lors des vingt premières minutes de fonctionnement du poêle radiant testé, avec notamment la présence de 1-NP (1,62 $ng.m^{-3}$), et de 1,6-DNP (0,15 $ng.m^{-3}$), contribuant respectivement à 1,16 et 17,6 % de la mutagénicité totale du prélèvement.

Des mesures dans un mobile home [*Mumford et al., 1991*] ont mis en évidence l'émission de 1-nitronaphtalène et de nitrofluoranthènes (respectivement 1,28 et 0,032 $ng.m^{-3}$ lors du fonctionnement d'un poêle à pétrole). Une seconde étude [*Mumford et al., 1992*] a comparé les émissions gazeuses et particulaires de HAP nitrés pour un poêle radiant et un poêle convectif. Le poêle à mèche radiant émet les substances suivantes : 1-nitronaphtalène, 9-nitroanthracène, 9-nitrophénanthrène, 3-nitrofluoranthène, et 1-nitropyrène. Le poêle à mèche convectif émet les composés suivants : 1-nitronaphtalène, 9-nitroanthracène. D'autres composés, notamment des dinitropyrènes, ont également été identifiés.

Keyanpour-Rad [*2004*] a identifié par GC-MS les composés suivants : 1-nitronaphtalène, 1-nitropyrène, acridine et 3-nitrofluoranthène, présents dans les émissions d'un poêle à mèche convectif.

Tokiwa et al. [*1987*] ont mesuré un facteur d'émission en dinitropyrènes, pendant la première heure de fonctionnement d'un poêle à pétrole, de 0,37 ng par litre de carburant consommé.

II.2.7.8. CONCLUSION

Les émissions d'Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques dépendent du type de poêle utilisé : les émissions des poêles de type radiant sont au moins cinq fois supérieures à celles des poêles de type convectif [*Ragland et al., 1985*]. Suivant leur poids moléculaire, on retrouve les HAP préférentiellement en phase gazeuse ou particulaire. Il n'y a pas de recommandation en air intérieur, car l'OMS estime que toute concentration de HAP peut porter atteinte à la santé. Les poêles à pétrole émettent également des nitro- et dinitro-pyrènes lors de l'allumage de l'appareil de chauffage. Ces substances sont considérées comme mutagènes et cancérigènes.

II.3. CONCLUSION

L'air intérieur est un milieu complexe, en raison de la multitude des sources de polluants, et de la multitude de composés présents dans cet environnement. Les poêles à pétrole constituent une source particulière de composés potentiellement dangereux pour la santé, en particulier pour le système respiratoire [*Triche et al., 2005*].

La plupart des études réalisées ces trente dernières années rendent compte d'une émission importante de gaz polluants lors du fonctionnement des chauffages d'appoint à pétrole. Ces études ont entraîné l'interdiction d'utiliser les poêles à pétrole dans les logements de certains états des Etats-Unis d'Amérique : la **Californie** (California Health and Safety Code, Division 13, Part 3, Chapter 12 : Heating appliances and installations, section n°19881), le **Massachussetts** (Massachusetts General Law, Part I, Title XX, Chapter 148 : Fire Prevention, Section 25A, 25B), le **Wisconsin** [1] (Wisconsin Department of Commerce, Chapter 23 : Heating, ventilating and air conditioning, 23.04 (2) (b)), ou de certaines villes, notamment **New York** (New York City Fire Code Chapter 3, section 313-01).

Suite à des études menées en laboratoire, il a été démontré que l'utilisation des poêles à pétrole dans des environnements intérieurs augmente les teneurs en polluants gazeux, tels que NO, NO_2, SO_2, CO, CO_2, et en polluants particulaires [*Yamanaka et al., 1979; Leaderer, 1982; Tu et Hinchliffe, 1983; Lionel et al., 1986; Zhou et Cheng, 2000*]. En plus d'une émission continue pendant le fonctionnement du poêle, on note une émission transitoire, notamment pour CO et les particules, lors de l'allumage, émission liée à la température plus basse de la combustion à ce moment. Les concentrations augmentent brutalement durant les dix premières minutes de fonctionnement pour atteindre une valeur maximale, avant de décroître rapidement. Inversement, le dioxyde de soufre et les oxydes d'azote sont produits pendant toute la durée de fonctionnement du poêle à pétrole [*Zhou et Cheng, 2000*]. Il semble donc judicieux d'aérer le logement quelques minutes à l'allumage de l'appareil.

Ces appareils de chauffage émettent également des COV [*Bozzelli et al., 1995*], incluant des hydrocarbures aliphatiques (de l'hexane au dodécane, ainsi que du cyclohexane), des composés aromatiques (benzène, toluène, éthylbenzène, nitrobenzène, ortho-, méta-, para-xylènes, styrène et naphtalène), et des composés carbonylés [*Traynor et al., 1983*], même si Leaderer et al. [*1986*] n'ont pas observé de différence significative entre les concentrations de formaldéhyde mesurées dans des logements avec et sans poêle à pétrole. Certains poêles produisent des particules mutagéniques [*White et al., 1987*], particulièrement des nitropyrènes [*Tokiwa et al., 1987; Kinouchi et al., 1988*].

[1] Ce code ne s'applique ni aux logements antérieurs à 1980, ni aux installations agricoles. Néanmoins, certaines villes appliquent l'interdiction d'utiliser les poêles à pétrole mêmes dans les logements construits avant 1980.

Les caractéristiques techniques des poêles à pétrole semblent influencer les niveaux d'émission des polluants. Les poêles à pétrole à mèche de type convectif émettent plus de NO et de SO_2 que les poêles à pétrole à mèche de type radiant, qui inversement émettent plus de CO et de particules [*Zhou et Cheng, 2000*].

Ces études sur les poêles à pétrole sont pour la plupart anciennes, et ne reflètent pas l'évolution de la qualité des carburants et les avancées technologiques des poêles à pétrole, ni les différences qui peuvent exister entre les pays. De plus, les résultats sont parfois difficilement comparables en raison de la diversité des protocoles de mesure des polluants (mesures de terrain, mesures en chambres environnementales avec des tailles et des configurations variées…). Enfin, les habitudes d'utilisation ne sont pas renseignées.

Ces données bibliographiques nous fournissent donc des indications sur les composés à rechercher dans une étude de terrain, mais elles sont insuffisantes pour évaluer les niveaux d'exposition des utilisateurs de poêles à pétrole dans la région Nord-Pas-de-Calais. Ceci justifie notre étude sur les émissions engendrées par des modèles récents de poêles à pétrole, disponibles dans la région, avec les carburants commerciaux actuels.

Pour évaluer le risque relatif causé par l'emploi de ces appareils de chauffage, les émissions de polluants générés lors de leur utilisation devront être comparées avec celles dues à d'autres sources présentes en air intérieur, en particulier les gazinières. Lee et al. [*1998*] ont mesuré pendant l'hiver une concentration moyenne de dioxyde d'azote de 22,5 ± 10,9 ppb dans 72 logements possédant une gazinière. Dans le même ordre de grandeur, Leaderer et al. [*1986*] ont mesuré une concentration moyenne de NO_2, sur 15 jours dans 42 logements équipés de gazinières, s'élevant à 17,9 ± 13,7 ppb. La nature de la source influence bien sûr les émissions de polluants, et il existe un effet cumulatif dans les logements en raison de la multiplicité des sources qui peuvent s'y trouver. Il peut s'agir notamment de cheminée à bois, de chauffage ou de cuisson avec du gaz naturel, de l'utilisation de bougies, d'encens et de certains produits domestiques [*Traynor et al., 1996 ; McDonald et al., 2000 ; Fan et Zhang, 2001*].

II.4. RÉFÉRENCES

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

Amitai Y., Zlotogorski Z., Golan-Katzav V., Wexler A. and Gross D. (1998). Neuropsychological impairment from acute low-level exposure to carbon monoxide. *Arch. Neurol.*, 55 : 845-848.

ANSES (2007). Valeurs Guides de Qualité d'Air Intérieur – Monoxyde de carbone. *Rapport du groupe d'experts – Juillet 2007*, 73 p (disponible sur le www.anses.fr le 07/11/2011).

ANSES (2008). Valeurs Guides de Qualité d'Air Intérieur – Benzène. *Rapport d'expertise collective – Mai 2008*, 95 p (disponible sur le www.anses.fr le 07/11/2011).

ANSES (2009 a). Valeurs Guides de Qualité d'Air Intérieur – Naphtalène. *Rapport d'expertise collective – Août 2009*, 83 p (disponible sur le www.anses.fr le 07/11/2011).

ANSES (2009 b). Propositions de Valeurs Guides de qualité de l'Air Intérieur – Particules. *Rapport d'expertise collective – Octobre 2009*, 90 p (disponible sur le www.anses.fr le 07/11/2011).

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

ASTM D2914-01 (2007). Standard test method for sulfur dioxide content of the atmosphere (West-Graeke method), disponible sur www.astm.org le 01/12/2011.

ASTM D1607-91 (2011). Standard test method for nitrogen dioxide content of the atmosphere (Griess Saltzman reaction), disponible sur www.astm.org le 01/12/2011.

Bisson M., Bureau J., Del Gratta F., Lefèvre J.P., Levilain A. et Guillet C. (2011). Dioxyde de soufre. *INERIS, Fiche de données toxicologiques et environnementales des substances chimiques* (disponible sur le www.ineris.fr le 07/11/2011).

Bozzelli J.W., Kebbekus B. and Bobenhausen C. (1995). Analysis of selected volatile organic compounds associated with residential kerosene heater use. *Intern. J. Environ. Studies*, 49 : 125-131.

Cáceres T., Soto H., Lissi E. and Cisternas R. (1983). Indoor house pollution: appliance emissions and indoor ambient concentrations. *Atm. Environ.*, 17(5) : 1009-1013.

Chambon C. et Schadkowski C. (2004). Diagnostic de l'impact des feux à pétrole sur le monoxyde de carbone dans les logements. *Rapport APPA Nord-Pas-de-Calais,* 63 p.

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

Cooper K.R. and Alberti R.R. (1984). Effect of kerosene heater emissions on indoor air quality and pulmonary function. *Am. Rev. Respir. Dis.,* 129 : 629-631.

Cote W.A., Wade III W.A., and Yocum J.E. (1974). A study of indoor air quality. *Environmental Protection Agency, Washington, D.C.* (EPA-650/4-74-042).

Dagaut P. and Cathonnet M. (2006). The ignition, oxidation, and combustion of kerosene: A review of experimental and kinetic modelling. *Progress in Energy and Combustion Science*, 32(1) : 48-92.

Delmas R., Mégie G. et Peuch V-H. (2005). Physique et chimie de l'atmosphère, *Editions Belin*, 2005.

Déoux S. et Déoux P. (2004). Guide de l'habitat sain. *Medieco Eds*, 407 p.

Destaillats H., Maddalena R.L., Singer B.C., Hodgson A.T. and McKone T.E. (2008). Indoor pollutants emitted by office equipment: a review of reported data and information needs. *Atm. Environ.*, 42 : 1371-1388.

Dietz R.N. and Cote E.A. (1982). Air infiltration measurements in a home using a convenient perfluorocarbon tracer technique. *Environ. Int.*, 8 : 419-433.

Dong J.I., Banerjee K. and Bozzelli J.W. (1988). Total hydrocarbon pollutants from a non-vented radiant kerosene heater. *Intern. J. Environ. Studies*, 32 : 75-83.

Dutton S.J., Hannigan M.P. and Miller S.L. (2001). Indoor pollutant levels from the use of unvented natural gas fireplaces in Boulder, Colorado. *J. Air & Waste Manage. Assoc.*, 51 : 1654-1661.

Elichegaray C., Bouallala S., Maître A. et Ba M. (2010). Etat et évolution de la pollution atmosphérique. *Revue Française d'Allergologie,* 50 : 381-393.

Fan C.-W. and Zhang J. (2001). Characterization of emissions from portable household combustion devices : particle size distributions, emission rates and factors, and potential exposures. *Atm. Environ.*, 35 : 1281-1290.

Funaki R., Tanabe S.-I., Tanaka H. and Nakagawa T. (2003). Measurements of chemical emission rates from portable PC and electronic appliances. *Journal of Asian Architecture and Building Engineering,* Nov. 2003, n°59, 55-59.

Hollowell C.D. and Miksch R.R. (1981). Sources and concentrations of organic compounds in indoor environments. *Bull. N.Y. Acad. Med.*, 57(10) : 962-977.

HCSP (2009). Valeurs repères d'aide à la gestion dans l'air des espaces clos – Le formaldéhyde. *Rapport du groupe de travail de la commission spécialisée dans les risques liés à l'environnement (CSRE)*, 41 p. (Disponible sur www.hcsp.fr le 15/11/2011).

HCSP (2010). Avis relatif à la fixation de valeurs repères d'aide à la gestion pour le benzène dans l'air des espaces clos. *Avis produit par la Commission spécialisée dans les risques liés à l'environnement, 16 juin 2010*, 3 p. (Disponible sur www.hcsp.fr le 15/11/2011).

HSDB (2011). Hazardous Substances Data Bank (HSDB) [online database]. *Nitrogen dioxide*. Bethesda, MD, National Library of Medicine, 2005 (http://toxnet.nlm.nih.gov, accessed 26 Juillet 2011).

IARC (2004). Formaldehyde, 2-butoxyethanol and 1-tert-butoxypropan-2-ol. World Health Organization, IARC Monographs on the Evaluation of Carcinogenic Risks to Humans, Monographs volume 88: 39-93.

INRS (2005). Dioxyde de carbone, fiche toxicologique, FT 238, Edition 2005, 6 p. (Disponible sur le www.inrs.fr le 07/11/2011)

Jenkin M.E., Saunders S.M. and Pilling M.J. (1997). The tropospheric degradation of Volatile Organic Compounds: a protocol for mechanism development. *Atm. Environ.*, 31(1) : 81-104.

Kawamoto T., Matsuno K., Arashidani K., Yoshikawa M., Kayama F. and Kodama Y. (1993). Personal exposure to nitrogen dioxide from indoor heaters and cooking stoves.*Arch. Environ. Contam. Toxicol.,* 25 : 534-538.

Keyanpour-Rad M. (2004). Toxic organic pollutants from kerosene space heaters in Iran. *Inhal. Toxicol.*, 16 : 155-157.

Khan F.I. and Ghoshal A.K. (2000). Removal of Volatile Organic Compounds from polluted air. *Journal of Loss Prevention in the Process Industries,* 13 : 527-545.

Kilburn K.H., Seidman B.C. and Warshaw R. (1985). Neurobehavioral and respiratory symptoms of formaldehyde and xylenes exposure in histology technicians. *Arch. Environ. Health*, 40(4) : 229-233.

Kim Y.M., Harrad S. and Harrison R.M. (2001). Concentrations and sources of VOCs in urban domestic and public microenvironments. *Environ. Sci. Technol.,* 35 : 997-1004.

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

Koehler C., Ginzkey C., Friehs G., Hackenberg S., Froelich K., Scherzed A., Burghartz M., Kessler M. and Kleinsasser N. (2010). Aspects of nitrogen dioxide toxicity in environmental urban concentrations in human nasal epithelium. *Toxicology and Applied Pharmacology,* 245 : 219-225.

Koutrakis P. and Briggs S.L.K. (1992). Source apportionment of indoor aerosols in Suffolk and Onondaga counties, New York. *Environ. Sci. Technol.* 26(3) : 521-527.

Krzyzanowski M., Quackenboss J.J. and Lebowitz M.D. (1990). Chronic respiratory effects of indoor formaldehyde exposure. *Environ. Res.,* 52(2) : 117-125.

Leaderer B.P. (1982). Air pollutant emissions from kerosene space heaters. *Science*, 218 : 1113-1115.

Leaderer B.P., Zagraniski R.T., Berwick M., Stolwijk J.A.J. and Ma Q. (1984). A field study of indoor air contaminant levels associated with unvented combustion sources. *77th annual meeting of the Air Pollution Control Association*; June; San Francisco, p.40. Pittsburgh, PA, Air Pollution Control Association.

Leaderer B.P., Zagraniski R.T., Berwick M. and Stolwijk J.A.J. (1986). Assessement of exposure to indoor air contaminants from combustion sources : methodology and application. *Am. J. of Epidemiol.*, 124(2) : 275-289.

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

Leaderer B.P., Naeher L., Jankun T., Balenger K., Holford T.R., Toth C., Sullivan J., Wolfson J.M. and Koutrakis P. (1999). Indoor, outdoor, and regional summer and winter concentrations of PM_{10}, $PM_{2.5}$, SO_4^{2-}, H^+, NH_4^+, NO_3^-, NH_3, and nitrous acid in homes with and without kerosene space heaters. *Environmental Health Perspectives*, 107(3) : 223-231.

Lee K., Levy J.I., Yanagisawa Y. and Spengler J.D. (1998). The Boston residential nitrogen dioxide characterization study : classification and prediction of indoor NO_2 exposure. *J. Air & Waste Manage. Assoc.,* 48 : 736-742.

Lee S.C., Lam S. and Fai H.K. (2001). Characterization of VOCs, ozone, and PM_{10} emissions from office equipment in an environmental chamber. *Building and Environment*, 36 : 837-842.

Lionel T., Martin J. and Brown N.J. (1986). A comparative study of combustion in kerosene heaters. *Environ. Sci. Technol.,* 20 : 78-85.

Loeovic K., Whitaker D., Northeim C. and Sheldon L. (1998). Evaluation of a test method for measuring indoor air emissions from dry-process photocopiers. *J. Air & Waste Mange. Assoc.,* 48 : 915-923.

Marano F., Aubier M., Brochard P., De Blay F., Marthan R., Nemery B., Nemmar A. and Wallaërt B. (2004). Impacts des particules atmosphériques sur la santé : aspects toxicologiques. *Environnement, Risques & Santé*, 3(2) : 87-96, Mars-Avril 2004.

McDonald J.D., Zielinska B., Fujita E.M., Sagebiel J.C., Chow J.C. and Watson J.G. (2000). Fine particle and gaseous emission rates from residential wood combustion. *Environ. Sci. Technol*, 34 : 2080-2091.

Mumford J.L., Williams R.W., Walsh D.B., Burton R.M., Svendsgaard D.J., Chuang J.C., Houk V.S. and Lewtas J. (1991). Indoor air pollutants from unvented kerosene heater emissions in mobile homes : studies on particles, semivolatile organics, carbon monoxide, and mutagenicity. *Environ. Sci. Technol.*, 25 : 1732-1738.

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

Nemmar A., Hoet P.H.M., Vanquickenborne B., Dinsdale D., Thomeer M., Hoylaerts M.F., Vanbilloen H., Mortelmans L. and Nemery B. (2002). Passage of inhaled particles into the blood circulation in humans. *Circulation*, 105 : 411-414.

Oanh N.T.K., Reutergardh L.B. and Dung N.T. (1999). Emission of polycyclic aromatic hydrocarbons and particulate matter from domestic combustion of selected fuels. *Environ. Sci. Technol.*, 33 : 2703-2709.

Ohnishi Y., Kinouchi T. and Tsutsui H. (1985). Mutagenicity and nitropyrene content in indoor air heated with a kerosene heater. *Mutation research/environmental mutagenesis and related subjects,* 147(5) : 270-271.

OMS (2005). WHO Air Quality Guidelines global update 2005 (disponible sur www.who.int le 07/11/2011).

OMS (2010). WHO guidelines for indoor air quality: Selected pollutants. Copenhagen, *WHO Regional Office for Europe, 454 p.* (disponible sur www.euro.who.int le 07/11/2011).

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

Ritchie I.M. and Arnold F.C. (1984). Characterization of residential air pollution from unvented kerosene heaters. Dans *Chemical characterization and personal exposure*, B. Berglund, Swedish Council for Building Research, 1984, p. 253-258.

Ruiz P.A., Toro C., Cáceres J., Lopez G., Oyola P. and Koutrakis P. (2010). Effects of gas and kerosene space heaters on indoor air quality: A study in homes of Santiago, Chile. *J. Air & Waste Manage. Assoc.* 60 : 98-108.

Salthammer T. and Mentese S. (2008). Comparison of analytical techniques for the determination of aldehydes in test chambers. *Chemosphere*, 73 : 1351-1356.

Saltzman B.E. (1954). Colorimetric microdetermination of nitrogen dioxide in atmosphere. *Anal. Chem.,* 26(12) : 1949-1955.

Samoli E., Aga E., Touloumi G., Nisiotis K., Forsberg B., Lefranc A., Pekkanen J., Wojtyniak B., Schindler C., Niciu E., Brunstein R., Dodic Fikfak M., Schwartz J. and Katsouyanni K. (2006). Short-term effects of nitrogen dioxide on mortality: an analysis within the APHEA project. *Eur. Respir. J.,* 27 : 1129-1137.

Sandström T. (1995). Respiratory effects of air pollutants : experimental studies in humans. *Eur. Respir. J.*, 8 : 976-995.

Santé Canada (1987). Directives d'exposition concernant la qualité de l'air des résidences, *Rapport du Comité consultatif fédéral-provincial de l'hygiène du milieu du travail, révisé en juillet 1989*. ISBN 0-662-96146-3

Setiani O. (1994). Indoor air quality and ventilation strategies in the use of combustion space heating appliances in housing. *Hiroshima J. Med. Sci.,* 43(4) : 163-167.

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

Tamura G.T. (1987). Measurement of combustion products from kerosene space heaters in a two-story house. *ASHRAE Transactions,* Winter meeting, New York, 93(1) : 173-184.

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

Tokiwa H., Nakagawa R., Horikawa K., Ohkubo A. (1987). The nature of the mutagenicity and carcinogenicity of nitrated, aromatic compounds in the environment. *Environmental Health Perspectives*, 73 : 191-199.

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

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

Traynor G.W., Apte M.G., Carruthers A.R., Dillworth J.F., Grimsrud D.T. and Thompson W.T. (1987). Indoor air pollution and inter-room pollutant transport due to unvented kerosene-fired space heaters. *Environment International*, 13 : 159-166.

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

Traynor G.W., Apte M.G. and Chang G.-M. (1996). Pollutant emission factors from residential natural gas appliances : a literature review. *Lawrence Berkeley National Laboratory: Lawrence Berkeley National Laboratory. LBNL Paper LBL-38123*. (disponible sur escholarship.org/uc/item/49z4g2xr le 28/10/2011)

Triche E.W., Belanger K., Bracken M.B., Beckett W.S., Holford T.R., Gent J.F., McSharry J-E. and Leaderer B.P. (2005). Indoor heating sources and respiratory symptoms in nonsmoking women. *Epidemiology*, 16(3) : 377-384.

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

US EPA, Method 3B – Gas analysis for the determination of emission rate correction factor or excess air (disponible sur www.epa.gov le 01/12/2011).

Viala A. (1998). Eléments de toxicologie. *Editions Tec & Doc Lavoisier et Editions Médicales Internationales.*

Viala A., Botta A. and Bismuth C. (2005). Toxicologie. *Tec & Doc Lavoisier et Editions Médicales Internationales, 2ème édition.*

Wallace L.A., Emmerich S.J. and Howard-Reed C. (2004). Source strenghts of ultrafine and fine particles due to cooking with a gas stove. *Environ. Sci. Technol.,* 38 : 2304-2311.

Ware J.H., Spengler J.D., Neas L.M., Samet J.M., Wagner G.R., Coultas D., Ozkaynak H. and Schwab M. (1993). Respiratory and irritant health effects of ambient volatile organic compounds, the Kanawha County Health Study. *Am. J. Epidemiol.,* 137(12) : 1287-1301.

Waring M.S., Siegel J.A., and Corsi R.L. (2008). Ultrafine particle removal and generation by portable air cleaners. *Atmospheric Environment*, 42 : 5003-5014.

Weschler C.J. and Shields H.C. (1994). Indoor chemistry involving O_3, NO, and NO_2 as evidenced by 14 months of measurements at a site in southern California. *Environ. Sci. Technol.*, 28 : 2120-2132.

Weschler C.J. (2000). Ozone in indoor environments : concentration and chemistry. *Indoor Air*, 10 : 269-288.

White J.B., Leaderer B.P., Boone P.M., Hammond S.K. and Mumford J.L. (1987). Chamber studies characterizing organic emissions from kerosene heaters. *Proceedings of the 1987 EPA/APCA Symposium on measurement of toxic and related air pollutants, EPA-600/9-87-010 (NTIS PB88-113402),* Research Triangle Park, NC, 1987, pp. 98-103.

Woodring J.L., Duffy T.L., Davis J.T. and Bechtold R.R. (1985). Measurements of combustion product emission factors of unvented kerosene heaters. *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.,* 46(7) : 350-356.

Yamanaka S., Hirose H. and Takada S. (1979). Nitrogen oxides emissions from domestic kerosene-fired and gas-fired appliances. *Atmospheric Environment*, 13 : 407-412.

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

CHAPITRE III

ECHANTILLONS, MATERIEL, TECHNIQUES DE PRELEVEMENT EN LABORATOIRE ET METHODES ANALYTIQUES

Ce chapitre présente spécifiquement les modèles de poêles à pétrole étudiés en laboratoire, les carburants utilisés, l'enceinte expérimentale et les instruments permettant l'étude des émissions de chauffages d'appoint à pétrole.

III.1. LES MODELES DE POELES ETUDIES AU PC2A

Les deux poêles testés au laboratoire, aux principes de fonctionnement et prix différents, ont été choisis parmi les modèles en vente en magasin dans la région Nord-Pas-de-Calais. L'objectif est de comparer leurs émissions.

III.1.1. UN MODELE DE POELE A MECHE RADIANT : TAYOSAN 263

Le poêle de marque Tayosan 263 (Figure 15) a été acheté en grande surface (Auchan, Villeneuve d'Ascq) en janvier 2009 (au prix de 89,99 €).



Figure 15. Poêle à mèche Tayosan 263

Les spécifications techniques fournies par le constructeur sont données dans le Tableau 18.

Type d'appareil	chauffage radiant portable	
Puissance de chauffe (W)	2400	
Consommation ($g.h^{-1}$)	200	
Consommation ($L.h^{-1}$)	0,25	
Autonomie (h)	16	
Capacité du réservoir (L)	4	
Dimensions (mm)	hauteur	440
	largeur	470
	profondeur	310
Poids net (kg)	8,2	
Pays d'origine	Chine	
Surveillance de la qualité de ventilation (renouvellement d'air)	mesure directe du taux de CO_2	
Type de réservoir	réservoir amovible	
Système d'extinction automatique	oui	
NF, CE	oui	
Coupure remplissage réservoir	oui	
Alimentation électrique	4 piles LR14 ou de type C	
Ne convient pas pour des pièces inférieures à	37 m^3 ou 16 m^2	
Type de mèche NF Petrowick	SGK 301	

Tableau 18. Spécifications techniques du poêle Tayosan 263

Ce poêle possède un brûleur à flux laminaire. La régulation de la hauteur de la mèche se fait mécaniquement et de façon grossière. L'extinction se fait en appuyant sur un bouton « stop », qui déclenche un dispositif « antichoc » abaissant rapidement la mèche et éteignant ainsi la flamme.

Parmi les avertissements figurant dans la notice, il est précisé que ce poêle ne doit pas être utilisé dans des locaux et pièces étanches (caravanes, bateaux, cabines de véhicules…), dans des courants d'air, dans des pièces situées en dessous du niveau du sol, ni comme mode de chauffage continu. L'appareil doit être utilisé dans une pièce suffisamment ventilée et exempte de vapeurs inflammables. Chaque pièce chauffée par ce poêle doit être munie d'une entrée d'air suffisante et d'une sortie d'air efficace (une section minimale de 50 cm^2 pour chaque orifice est préconisée). L'utilisateur doit respecter la taille minimale de la pièce. Il est important de maintenir une distance de sécurité d'un mètre minimum entre l'appareil et tout objet étranger, meuble ou mur pour éviter le risque d'incendie.

L'entretien recommandé pendant la saison de chauffe consiste, selon la notice, à épousseter « si on le désire » l'appareil en ouvrant la grille de protection du brûleur. Après une saison d'utilisation, le pointeau du réservoir fixe doit être nettoyé. Le carburant restant ne doit pas être utilisé pour la saison de chauffe suivante, en raison d'une dégradation possible du carburant. En ce qui concerne la mèche et son remplacement, la notice spécifie que « si vous constatez un durcissement anormal de la mèche, un blocage ou une combustion anormale, faites changer

votre mèche par un spécialiste qualifié, par exemple votre revendeur ou station technique agréée. » Le coût de revient du changement de mèche est de l'ordre de 80 € soit quasiment le prix d'achat du poêle.

Pendant l'utilisation de ce poêle en laboratoire, nous n'avons pas observé d'évolution des produits de combustion pouvant être liée au vieillissement de la mèche, mais ce point n'a pas fait l'objet d'une étude spécifique. L'évolution des émissions de polluants en fonction de la hauteur de mèche et du volume de carburant présent dans le réservoir n'ont pas non plus fait l'objet d'une étude spécifique.

Le poêle a été utilisé avec les réglages de fabrication. La mèche de l'appareil de chauffage n'a pas été changée car la référence (donnée par le fabricant) n'est pas disponible dans le commerce ni sur Internet. Néanmoins le blocage de la mèche n'a pas été observé durant nos expériences. En revanche, une accumulation de suies sur la grille et au-dessus du brûleur a été constatée à l'usage, sans que la cause ne soit identifiée.

III.1.2. UN MODELE DE POELE ELECTRONIQUE : ZIBRO SRE 25 E

Le poêle électronique Zibro SRE 25 E (Figure 16) est un poêle soufflant à régulation électronique, acheté 235 € dans un magasin de bricolage (Leroy Merlin, Villeneuve d'Ascq) en mars 2010.



Figure 16. Poêle électronique Zibro SRE 25 E

Les informations fournies par le constructeur sont données dans le Tableau 19.

Type d'allumage	électrique	
Type de combustible	combustible liquide pour appareils mobiles de chauffage (arrêtés du 08/01/1998 et du 18/07/2002)	
Puissance nominale moyenne Puissance calorifique maximale Puissance calorifique minimale	147 $g.h^{-1}$ 225 $g.h^{-1}$ 69 $g.h^{-1}$	1765 W 2700 W 830 W
Conseillé pour des pièces normalement aérées *(m^3)	40 minimum	105 maximum
Ne convient pas pour des pièces de volume inférieur à	40 m^3 / 16 m^2	
Consommation de combustible** ($L.h^{-1}$)	0,086 min.	0,281 max.
Autonomie du réservoir (h)	14,2 min.	46,5 max.
Contenant du réservoir amovible (L)	4	
Poids (kg)	8,9	
Dimensions (mm) (plateau inférieur compris)	largeur profondeur hauteur	334 300 415
Accessoires	pompe à main bouchon de transport	
Tension secteur	220/230 V - AC 50 Hz	
Consommation électrique	allumage continu	320 W 14 W
Niveau sonore	19 dB min.	33 dB max.
Valeur nominale de fusible	250 V, 5 A	
Surveillance de la qualité de la ventilation (renouvellement d'air):	Mesure directe du taux de CO_2 (NDIR CO_2-sensor E-Guard)	

* Ces valeurs sont données à titre indicatif

** En cas de réglage en position maximale

Tableau 19. Spécifications techniques du poêle Zibro SRE 25 E

Ce poêle à pétrole permet le réglage de la température de consigne entre 6 et 28 °C. La fonction « timer » permet de régler le démarrage du poêle à l'heure désirée. Le poêle s'éteint automatiquement après 48 heures de fonctionnement sans interruption. Sa notice mentionne l'existence d'un système autonettoyant : « si l'appareil fonctionne en puissance maxi pendant deux heures, le nettoyage de la chambre de combustion s'effectue automatiquement ». Le principe de ce nettoyage n'est pas précisé dans la notice. Pendant les 5 minutes de nettoyage automatique, le fabricant indique que le poêle sera en fonctionnement à puissance minimale, avant d'atteindre de nouveau la température de consigne.

La fonction « save » permet l'extinction automatique de l'appareil si la température ambiante est supérieure à la température de consigne de 3 °C, et son rallumage automatique en cas de température ambiante inférieure à la température de consigne.

Lorsque la pièce est « insuffisamment aérée », un signal sonore retentit une fois toutes les trente secondes, et l'appareil s'éteint si le confinement persiste.

L'entretien préconisé par le fabricant est de nettoyer chaque semaine le cache du ventilateur à l'aide d'un aspirateur ainsi que la grille à l'aide d'un chiffon. Le filtre à combustible peut également être retiré de temps en temps et nettoyé. Il n'y a pas d'entretien particulier à faire en fin de saison de chauffe, néanmoins le combustible ne doit pas être conservé d'une année sur l'autre, la raison n'étant pas précisée par le fabricant.

Les recommandations qui suivent proviennent de la notice d'utilisation du poêle à pétrole. L'attention des enfants doit être attirée sur la présence d'un appareil de combustion. L'appareil ne doit pas être déplacé lorsqu'il chauffe ou s'il est encore brûlant. Dans ces conditions, il ne faut pas ajouter de combustible, ni entreprendre l'entretien de l'appareil. La grille de l'appareil devient brûlante lors de l'utilisation du poêle, il ne faut donc pas couvrir l'appareil pour éviter tout risque d'incendie.

Le poêle ne doit pas fonctionner à moins de 1,5 m des murs, rideaux et meubles du logement. Il ne doit pas être utilisé dans des pièces poussiéreuses, ni dans des endroits à forts courants d'air, ni près d'un point d'eau (bain, douche, piscine, etc.). Il est interdit d'utiliser ce poêle dans les caravanes, bateaux et cabines de véhicules, dans les pièces insuffisamment aérées ou situées en dessous du niveau du sol et/ou au-dessus d'une hauteur de 1500 mètres. Le poêle ne doit pas fonctionner dans des endroits où des gaz ou solvants peuvent être présents. Il est précisé qu'il s'agit d'un appareil de chauffage à fonctionnement intermittent, sans précision sur la fréquence ni sur la durée d'utilisation recommandée. L'appareil doit être éteint en quittant le logement et au moment du coucher. En cas d'absence de longue durée, il doit être débranché de la prise de courant.

L'aération de la pièce où est présent l'appareil doit toujours être « suffisante ». Si le volume de la pièce est trop petit, l'utilisateur doit entrebâiller une fenêtre ou une porte, « ± 2,5 cm » selon le fabricant. Il est préconisé de prévoir une aération supplémentaire du local à l'allumage du poêle neuf seulement.

L'utilisation d'un combustible liquide conforme à la règlementation française en vigueur est obligatoire et il doit être conservé dans des réservoirs et bidons adaptés dans un endroit frais, sec et sombre. Le combustible ne doit pas être exposé à la chaleur ou à des écarts de température extrêmes.

III.1.3. COMMENTAIRES SUR LES POELES TESTES

Le poêle électronique est plus cher à l'achat que le poêle à mèche. Il permet néanmoins une meilleure maîtrise de la consommation énergétique grâce à la régulation électronique de la température. Il nécessite par contre un branchement électrique permanent, et ne peut par conséquent pas être utilisé n'importe où. De par sa conception, le poêle électronique ne permet pas de se rendre visuellement compte de la qualité de la combustion, car la flamme n'est pas visible. Son système d'autonettoyage n'est pas expliqué et ses effets ne sont pas visibles

non plus. Nous n'avons pas constaté de diminution significative des concentrations de NO_x, SO_2, CO et CO_2 mesurées lorsque l'appareil fonctionne pendant plus de deux heures à puissance maximale.

Les expériences réalisées avec le poêle électronique ont été interrompues à plusieurs reprises par l'arrêt du poêle à cause d'une température de la pièce plus élevée que la température de consigne. Le poêle à mèche quant à lui procure une plus grande sensation de chaleur, probablement en raison d'une puissance constante, mais il ne possède pas de régulation de la température. Il peut ainsi fonctionner sans s'éteindre quelle que soit la température de la pièce, ce qui, pour notre étude, représente un avantage pour réaliser des expériences en été au laboratoire.

Concernant les odeurs perçues lorsque les deux poêles fonctionnent avec le même carburant, il semble (de façon subjective) que le poêle électronique produise moins d'odeurs que le poêle à mèche.

Bien que le poêle à mèche soit plus simple d'utilisation, le réglage de la hauteur de la mèche doit être fait par le fabricant ou par un organisme agréé pour que la garantie de l'appareil soit maintenue. Il en va de même pour le remplacement de la mèche.

III.2. LES COMBUSTIBLES LIQUIDES UTILISES

III.2.1. CARACTERISTIQUES DES CARBURANTS CHOISIS

Les émissions de poêles à pétrole ont été mesurées en utilisant cinq carburants différents, afin d'étudier le rôle de la composition chimique du carburant sur les facteurs d'émission des polluants. Nous avons acheté trois types de carburant (Zibro Bio, Zibro Optimal, PTX 2000) dans un magasin français par bidons de 20 L, un carburant à la pompe en Belgique[1] (Power) et un carburant à la pompe en France (Auchan). Ce choix a été décidé pour utiliser des carburants de compositions très différentes. Leur aspect ne permet pas de les différencier et l'odeur caractéristique est la même pour tous.

Les teneurs en aromatiques figurant sur les emballages ainsi que le coût de ces carburants sont reportés dans le Tableau 20.

Marque du carburant	**PTX 2000**	**Power**	**Zibro Bio**	**Zibro Optimal**	**Pompe Auchan**
Prix (€/L) en 20100	0,85	0,84	1,50	1,66	1,07
Lieu d'achat	Leroy Merlin, Villeneuve d'Ascq	Station-service Power (Mouscron)	Leroy Merlin, Villeneuve d'Ascq	Leroy Merlin, Villeneuve d'Ascq	Station-service Auchan (Béthune)
Particularité	Aucune	Carburant belge (pompe)	Contient des esters méthyliques d'acides gras	Faible teneur en aromatiques	Carburant français (pompe)
Teneur en hydrocarbures aromatiques	< 1 % (en volume)			< 0,006 % (en masse)	

Tableau 20. Caractéristiques commerciales des carburants étudiés en laboratoire

Le carburant le plus cher est le plus raffiné et il contient ainsi moins d'hydrocarbures aromatiques. Sur les étiquettes des bidons achetés en magasin, il y a peu d'informations disponibles sur la composition des pétroles lampants. Aucune information n'est disponible lors de l'achat de pétrole lampant à la pompe. Néanmoins, les carburants vendus dans chaque pays sont censés répondre à la législation en vigueur. On peut donc estimer les teneurs maximales en soufre pour ces carburants d'après les valeurs du Tableau 1 (Chapitre I.2.) et en benzène et composés aromatiques pour les carburants français, rappelées dans le Tableau 21.

[1] Bien que l'utilisation du carburant belge dans les poêles à pétrole commercialisés en France ne soit pas autorisée, la proximité avec le frontière belge et l'attractivité du prix peut inciter les utilisateurs de poêles à pétrole à en acheter (cf. paragraphe I.2.)

Caractéristiques du combustible liquide	Normes françaises (arrêté 25 juin 2010, JORF n° 193 du 21 août 2010)	Normes belges (NBN T 52-707 avril 2004, pétrole type C)
Teneur en soufre	≤ 5 $mg.kg^{-1}$ (NF EN 24 260)	≤ 100 $mg.kg^{-1}$ (NBN EN 24 260)
Teneur en benzène	≤ 0,10 % (en masse) (NF M 07-112)	-
Teneur en composés aromatiques	≤ 1,0 % (en masse) (NF M 07-073)	-

Tableau 21. Teneurs règlementaires françaises et belges du pétrole lampant en soufre, benzène et composés aromatiques

III.2.2. COMPOSITION DES CARBURANTS

La composition de quatre carburants utilisés lors des mesures d'émission en laboratoire a été analysée par le Centre Commun de Mesures de Dunkerque par chromatographie en phase gazeuse, couplée à la spectrométrie de masse. La composition du cinquième carburant, acheté ultérieurement à ces analyses, n'a pas été déterminée.

III.2.2.1. CONDITIONS D'ANALYSE

Les analyses ont été effectuées sur la chaîne analytique suivante (GC-MS Varian) :

Passeur automatique 8400 ; Chromatographe CP-3800 ; Détecteur de masse 1200 ; Injecteur split/splitless 1177.

Paramètres analytiques :

Colonne : VF-5ms : 30 m x 0,25 mm x 0,25 µm.

Programmation de température du four : 40 °C (5 min), 5 °C/min, jusqu'à 300 °C

Gaz vecteur : Hélium (1 mL/min)

Température de l'injecteur : 300 °C

Volume injecté : 1 µL de carburant non dilué

Rapport de split : 1/100

Température de la ligne de transfert : 320 °C

Mode d'ionisation : Impact électronique, 70 eV, 250 °C

Détecteur : « Extended Dynamic Range », 40-350 uma

Le mélange témoin, composé d'alcanes linéaires de C_{10} à C_{15}, a été dilué dans le dichlorométhane.

III.2.2.2. COMPOSITION DES CARBURANTS

Les chromatogrammes caractéristiques des carburants (Figure 17) ont des allures typiques de coupe pétrolière composée pour majorité d'alcanes linéaires avec ajout d'esters méthyliques d'huiles végétales pour l'un d'entre eux (Zibro Bio). L'échantillon Zibro Optimal contient peu d'alcanes linéaires mais plus d'alcanes ramifiés. Les différents chromatogrammes ont été comparés à celui d'un mélange témoin composé d'alcanes linéaires de C_{10} à C_{15}. En première observation, les échantillons contiennent des coupes d'hydrocarbures de C_9 à C_{16} pour les composés majoritaires. Les analyses chromatographiques illustrent bien les différences de composition entre les carburants. Les composés majoritaires sont identiques dans le cas des carburants Power et PTX 2000, avec cependant des différences en termes de concentration.

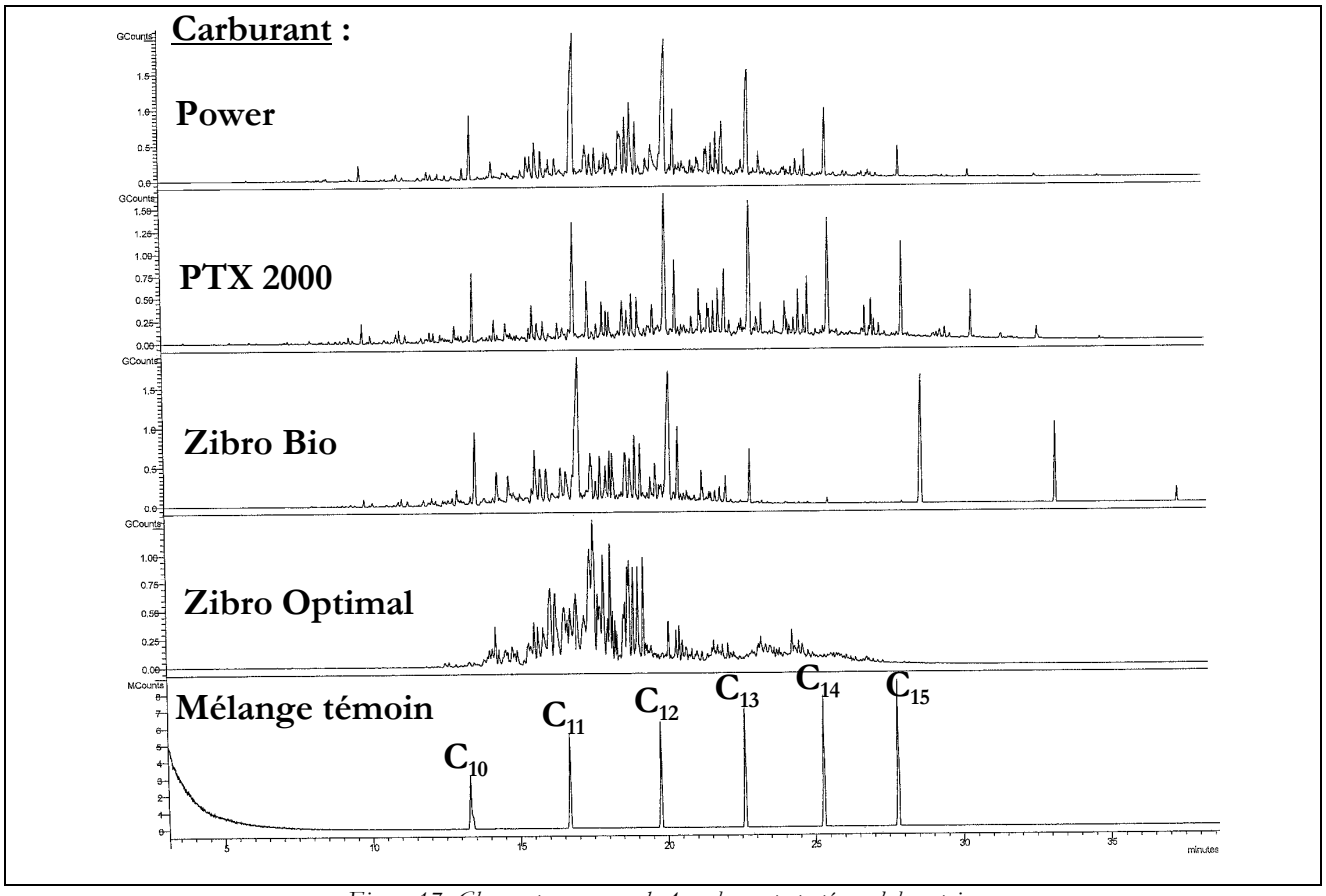


Figure 17. Chromatogrammes de 4 carburants testés en laboratoire

Plus de 200 composés ont été détectés dans les carburants Zibro Bio et Zibro Optimal, dont respectivement 89 % et 100 % ont été identifiés et/ou classés par famille. Dans le cas des carburants Power et PTX 2000, plus de 100 composés ont été détectés, dont respectivement 95 % et 98 % identifiés et/ou classés par famille (Tableau 22). Les différents composés identifiés dans ces quatre carburants sont donnés en Annexe 1.

Teneur (%) par famille	PTX 2000	Power	Zibro Bio	Zibro Optimal
n-Paraffines	43,79	36,13	23,15	2,39
Alcanes ramifiés	34,37	32,51	33,41	97,61
Cycloalcanes	17,23	3,32	19,83	
Monoaromatiques		16,30		
Polyaromatiques et polycycliques	2,20	4,88	2,09	
Esters			8,19	
Alcools		0,17	0,44	
Alcènes	0,64	1,61	1,91	
Teneur totale en composés identifiés (%)	**98,2**	**94,9**	**89,0**	**100,0**

Tableau 22. Composition des carburants utilisés

Les alcanes ramifiés sont présents dans tous les carburants avec une teneur de l'ordre de 30 %, exception faite pour le carburant Zibro Optimal pour lequel ces composés représentent la majorité des composés identifiés, ce qui laisse supposer une émission de polluants moins importante lors de la combustion de ce carburant.

Seul le carburant belge (Power) contient des composés monoaromatiques, ce qui s'explique par l'absence de règlementation nationale sur la teneur maximale autorisée en composés aromatiques dans le pétrole lampant.

La présence d'esters méthyliques dans le carburant Zibro Bio indique que le pétrole lampant a été additionné d'huiles végétales. Les esters majoritairement identifiés sont le dodécanoate de méthyle et le tétradécanoate de méthyle. La longueur de la chaîne alkyle de ces composés leur confère un comportement similaire à celui des paraffines lors de leur combustion.

Des espèces oxygénées sont présentes dans les carburants Power et Zibro Bio, ce qui peut conduire à l'émission d'aldéhydes lors de leur utilisation.

Tous les carburants analysés contiennent des alcènes à l'exception du carburant Zibro Optimal, ce qui laisse supposer la formation d'espèces aromatiques et de suies lors de leur combustion. Des alcènes peuvent également être émis à partir de paraffines, présentes en quantités plus ou moins importantes (comprises entre 2 et 44 %) dans les carburants.

III.2.3. POUVOIR CALORIFIQUE MASSIQUE DES CARBURANTS

Le pouvoir calorifique massique représente la quantité d'énergie dégagée par unité de masse de carburant, lors de la réaction chimique de combustion complète conduisant à la formation de CO_2 et H_2O. La distinction est faite entre le pouvoir calorifique supérieur (PCS) et le pouvoir calorifique inférieur (PCI), selon que l'eau formée lors de la combustion se trouve à l'état liquide ou gazeux. Pratiquement, la grandeur véritablement utile est le PCI, puisque l'eau présente se trouve sous forme de vapeur dans les produits de combustion émis par les brûleurs [*Guibet, 1997*].

Le PCI se mesure en laboratoire, par combustion d'un échantillon de carburant, sous atmosphère d'oxygène, dans une bombe calorimétrique renfermant de l'eau. L'effet thermique est calculé à partir de l'élévation de température du milieu et des caractéristiques calorifiques de l'appareillage.

Les PCI des carburants utilisés ont été déterminés par la société SOCOR (Dechy, France) selon la méthode NF M 07-030 (décembre 1996) relative aux combustibles liquides pétroliers et à la détermination du pouvoir calorifique, et sont listés dans le Tableau 23.

Nom du carburant	PCI ($J.g^{-1}$)
PTX 2000	43 606
Power	43 271
Zibro Bio	43 187
Zibro Optimal	44 079
Pompe Auchan	43 572

Tableau 23. PCI mesurés des carburants utilisés

Les PCI mesurés sont du même ordre de grandeur pour l'ensemble des carburants, y compris pour le carburant Zibro Bio. Le coefficient de variation est de 0,8 %. La présence d'esters méthyliques n'a donc pas d'effet notable sur le PCI du carburant.

III.2.4. VISCOSITE CINEMATIQUE DES CARBURANTS

La mesure des viscosités de quatre carburants (Tableau 24) a été faite par le laboratoire ProBioGEM (Villeneuve d'Ascq, France), à l'aide d'un viscosimètre capillaire Cannon-Fenske. Il s'agit d'un viscosimètre à écoulement ; la détermination de la viscosité consiste à mesurer le temps mis par le liquide pour parcourir une distance donnée dans l'appareil.

Nom du carburant	Viscosité cinématique ($mm^2.s^{-1}$)
PTX 2000	2,28
Power	1,92
Zibro Bio	2,26
Zibro Optimal	2,06

Tableau 24. Viscosité cinématique à 20 °C des carburants utilisés au laboratoire

Pour le pétrole lampant, la législation française impose une viscosité cinématique strictement inférieure à 3,0 $mm^2.s^{-1}$, à 25 °C. Il n'y a pas de règlementation belge pour cette grandeur, mais la viscosité cinématique du carburant belge (Power) est similaire à celle des carburants français étudiés, de l'ordre de 2 $mm^2.s^{-1}$, à 20 °C. La viscosité dépend fortement de la température : elle décroît rapidement en fonction de la température suivant la relation suivante :

$$\nu = \nu_0 \times \frac{1}{1 + \alpha T + \beta T^2}$$ où ν_0 est la viscosité à 0 °C.

Ainsi, la viscosité mesurée à 20 °C est nécessairement supérieure à celle obtenue à 25 °C. Les carburants analysés sont donc conformes à la règlementation en vigueur.

La viscosité mesurée n'est pas la même selon le carburant. Son coefficient de variation est de 8,1 %. En revanche les viscosités cinématiques des carburants PTX 2000 et Zibro Bio sont similaires.

La viscosité va certainement influencer la vaporisation du carburant dans la chambre de combustion du poêle électronique, par la formation de gouttelettes plus ou moins fines, et ainsi conduire à des émissions différentes selon le carburant.

III.2.5. TENEURS EN CARBONE ET EN HYDROGENE DES CARBURANTS

Les teneurs en carbone et hydrogène ont été déterminées par la société SOCOR (Dechy, France) selon la méthode standard ASTM D 5291 – 2010 de détermination expérimentale du carbone, de l'hydrogène et de l'azote dans les produits pétroliers et lubrifiants. L'analyse élémentaire consiste à brûler un échantillon de produit sous atmosphère d'oxygène à 1 000 °C. Le dosage chromatographique du gaz carbonique et de la vapeur d'eau fournit la teneur massique en carbone et hydrogène. Les résultats sont fournis dans le Tableau 25.

Nom du carburant	Teneur en carbone (%)	Teneur en hydrogène (%)	Rapport H/C
PTX 2000	85,30	14,08	0,17
Power	85,60	13,48	0,16
Zibro Bio	84,50	14,00	0,17
Zibro Optimal	84,50	14,80	0,18
Pompe Auchan	85,30	14,02	0,16

Tableau 25. Teneurs en carbone et hydrogène des carburants utilisés

Le coefficient de variation du rapport des teneurs hydrogène/carbone est de 3,8 %. Les teneurs en carbone (%C) et en hydrogène (%H) sont du même ordre pour tous les carburants analysés, 85 % et 14 % respectivement.

Il est possible de calculer le rejet théorique de CO_2, obtenu en cas de combustion complète du carburant selon la réaction suivante :

$$C_n H_{(2n+2)} + \frac{3n+1}{2} O_2 \rightarrow n\, CO_2 + (n+1)\, H_2O$$

Le facteur de rejet de CO_2 est estimé à :

$\frac{M_{CO_2}}{M_C} \times \%C = \frac{44}{12} \times 85\% = 3120$ mg par g de carburant,

tandis que la quantité d'eau émise est de $\frac{M_{HO_2}}{M_{2H}} \times \%H = \frac{18}{2} \times 14\% = 1260$ mg.g^{-1}.

III.2.6. CONCLUSION SUR LA NATURE ET LA COMPOSITION DES CARBURANTS

Les cinq carburants utilisés ont été achetés à la fois en magasin et en stations-service française et belge, afin d'étudier le rôle de la composition chimique du carburant sur les facteurs d'émission des polluants. Une gamme de prix la plus large possible, allant du simple au double, a volontairement été choisie. Le Tableau 26 récapitule les caractéristiques des carburants utilisés dans cette étude, d'une part les caractéristiques provenant de la règlementation en vigueur, et d'autre part les caractéristiques mesurées en utilisant différents types d'analyse. Le cinquième carburant, de marque Auchan, n'a pas été étudié comme les autres puisqu'il a été acheté postérieurement aux analyses. Acheté en station-service française, il est néanmoins probablement conforme à la législation nationale en vigueur.

L'étude est réalisée avec seulement 20 L de chaque carburant, et seul un combustible liquide belge a été étudié. Par conséquent, les conclusions ne sont pas généralisables à l'ensemble des marques de pétrole lampant en vente en France et en Belgique.

Bien que les notices d'utilisation des poêles à pétrole français mentionnent l'obligation d'utiliser du carburant conforme aux normes françaises, la proximité de la frontière belge et le coût énergétique laissent à penser que ces carburants peuvent également être utilisés en France.

Carburant		PTX 2000	Power belge	Zibro Bio	Zibro Optimal	Pompe Auchan
Particularité		Aucune	Acheté en station-service belge	Contient des esters méthyliques d'huiles végétales	Faiblement aromatisé	Acheté en station-service française
Prix (€/L)		0,85	0,84	1,50	1,66	1,07
Règlementation en vigueur	Viscosité cinématique ($mm^2.s^{-1}$ à 25 °C)	<3,0		<3,0	<3,0	<3,0
	Point éclair (°C)	> 61 °C	> 55 °C	> 61 °C	> 61 °C	> 61 °C
	Teneur en hydrocarbures aromatiques ($g.g^{-1}$)	<1%		<1%	<0,006%	<1%
	Teneur maximale en benzène ($g.g^{-1}$)	0,1%		0,1%	0,1%	0,1%
	Teneur maximale en soufre ($mg.kg^{-1}$)	5	100	5	5	5
Analyse par viscosimètre capillaire Cannon-Fenske	Viscosité cinématique ($mm^2.s^{-1}$ à 20 °C)	2,28	1,92	2,26	2,06	
Méthode ASTM D 5291	Teneur en carbone (%)	85,30	85,60	84,50	84,50	85,30
	Teneur en hydrogène (%)	14,08	13,48	14,00	14,80	14,02
Analyse par bombe calorimétrique (NF M 07-030)	PCI ($J.g^{-1}$)	43 606	43 271	43 187	44 079	43 572
Analyse par GC/MS ($mg.g^{-1}$)	Alcanes linéaires	408	344	191	31	
	Alcanes ramifiés	404	365	379	969	
	Cycloalcanes	150	36	165		
	Hydrocarbures aromatiques monocycliques		147			
	Hydrocarbures aromatiques polycycliques	15	42	15		
	Esters			85		
	Alcools		2	5		
	Alcènes	9	16	31		

Tableau 26. Propriétés des carburants utilisés

III.3. L'ENCEINTE EXPERIMENTALE

Suite à notre recherche bibliographique sur les dispositifs expérimentaux existants (cf. paragraphe II.1.), les expériences menées sur les émissions de poêles à pétrole en laboratoire ont été effectuées dans une enceinte expérimentale close, non étanche et ventilée. L'utilisation de ce type de chambre présente plusieurs avantages. Elle protège la manipulation en cours de toute perturbation due à l'ouverture d'une porte, aux mouvements d'air engendrés par l'expérimentateur, etc. Elle empêche aussi la diffusion des émissions du poêle. Ce meilleur contrôle des conditions expérimentales permet de quantifier les différents polluants émis uniquement par les chauffages d'appoint à pétrole. D'autre part, cette enceinte protège l'expérimentateur des émissions et notamment des odeurs engendrées et d'éventuels composés pouvant être nocifs étant donnée leur nature ou leur concentration. Pour des raisons pratiques, nous avons décidé de construire une enceinte de dimensions adaptées à une étude en laboratoire, et suffisamment importantes pour l'assimiler à une petite pièce adaptée à certains tests, notamment lors de l'utilisation de badges passifs.

Les expériences sont conduites dans une chambre expérimentale de 8 m^3 (2 m x 2 m x 2 m) (Figure 18). La structure est en aluminium et les parois sont en poly-méthyl méthacrylate (PMMA). L'air ambiant du laboratoire entre dans l'enceinte expérimentale par les parties inférieures des parois, à travers des filtres à particules (Sairvice, Forest sur Marque, France) de type G4 (retient les particules grossières avec une efficacité > 95%). L'air est extrait à l'extérieur du laboratoire par un système de ventilation mécanique à travers une ouverture pratiquée dans le plafond de la chambre. Les filtres d'entrée d'air sont disposés de façon symétrique comme indiqué sur la Figure 21. Le niveau de fond est soutrait aux concentrations des polluants mesurés.



Figure 18. Photographie de l'enceinte expérimentale du PC2A

Le flux d'air extrait peut être ajusté entre 0,3 et 3,4 $m^3.min^{-1}$ (à 20 °C), soit un taux de renouvellement d'air compris entre 2,6 et 25,2 h^{-1}. La vitesse de l'air a été mesurée au centre du conduit d'extraction, au niveau du plafond de l'enceinte à l'aide d'un thermo-anémomètre à fil chaud (Testo 435-4, France) pour différents réglages de la ventilation. Les résultats (Tableau 27) sont moyennés sur 33 mesures, réalisées toutes les deux secondes à 20 °C.

Valeur affichée par le boîtier régulateur de ventilation (u.a.)	**Vitesse de l'air moyenne mesurée ($m.s^{-1}$)**	**Débit d'extraction ($m^3.h^{-1}$)**	**Taux de renouvellement d'air (h^{-1})**
5,0	0,5	21	2,6
10,0	1,0	39	4,8
15,0	1,6	65	8,1
20,0	2,1	85	10,6
25,0	2,7	109	13,6
30,0	3,3	133	16,6
35,0	3,8	155	19,4
40,0	4,0	163	20,4
45,0	4,5	184	23,1
50,0	5,0	202	25,2

Tableau 27. Taux de renouvellement d'air dans l'enceinte expérimentale

La relation linéaire entre la valeur affichée par le boîtier de contrôle de la ventilation et la vitesse moyenne de l'air au niveau du conduit d'extraction a été vérifiée (Figure 19), avec un coefficient de corrélation R^2 de 0,9933.

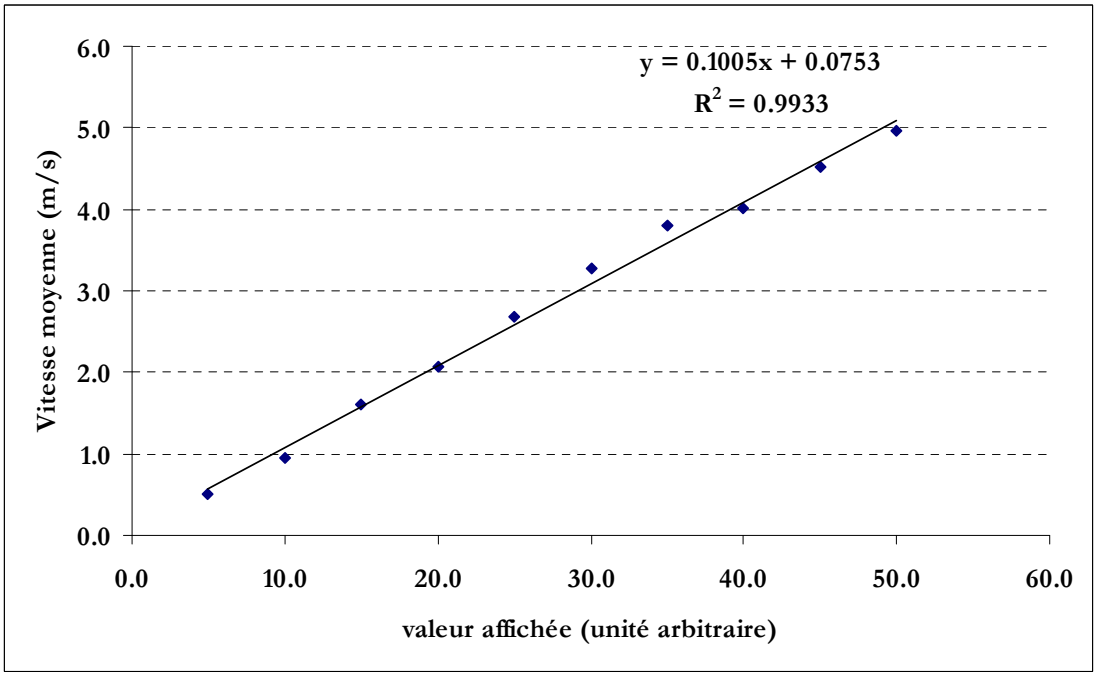


Figure 19. Vitesse de l'air moyenne

La plupart des résultats expérimentaux rapportés dans cette thèse ont été obtenus avec un taux de renouvellement d'air de 5 h^{-1} (à 20 °C). La détermination exacte des taux de renouvellement d'air pendant le fonctionnement des poêles à pétrole est expliquée au chapitre IV (paragraphe IV.1.2.2.).

La taille de la chambre environnementale étant petite par rapport à une pièce réelle, les conditions environnementales peuvent être assez différentes des conditions réelles d'utilisation de ce type d'appareil de chauffage, avec des températures et des concentrations mesurées plus élevées que celles mesurées en conditions réelles d'utilisation.

Le taux de renouvellement d'air choisi permet de maintenir des concentrations de produits de combustion importantes et donc plus facilement mesurables. De plus, sachant que les appareils de chauffage testés sont prévus pour fonctionner dans des pièces de volume supérieur à 37 m^3 (suivant les recommandations des fabricants), un taux de renouvellement d'air important s'avère nécessaire pour maintenir une température dans la chambre expérimentale inférieure à 40 °C lors de l'utilisation du poêle à mèche. Le même taux de renouvellement d'air a été utilisé dans le cas du poêle à régulation électronique, la température de la chambre n'ayant pas excédé 32 °C (température de consigne du poêle fixée à 28 °C) en raison de la régulation électronique de la température.

Aucune condensation n'a été observée sur les parois de l'enceinte pendant les tests. Le taux de renouvellement d'air n'est pas le seul paramètre en cause. En effet, la différence de température entre l'air de l'enceinte expérimentale et l'air du laboratoire n'est peut-être pas suffisante pour observer un quelconque

phénomène de condensation de l'eau sur les parois de la chambre. Notre enceinte expérimentale ne reproduit donc pas des conditions environnementales réelles.

III.4. INSTRUMENTATION ET METHODES ANALYTIQUES

Les instruments utilisés pour la caractérisation des polluants dans l'enceinte environnementale ainsi que les méthodes analytiques sont répertoriés dans les paragraphes suivants et disposés selon la Figure 20.

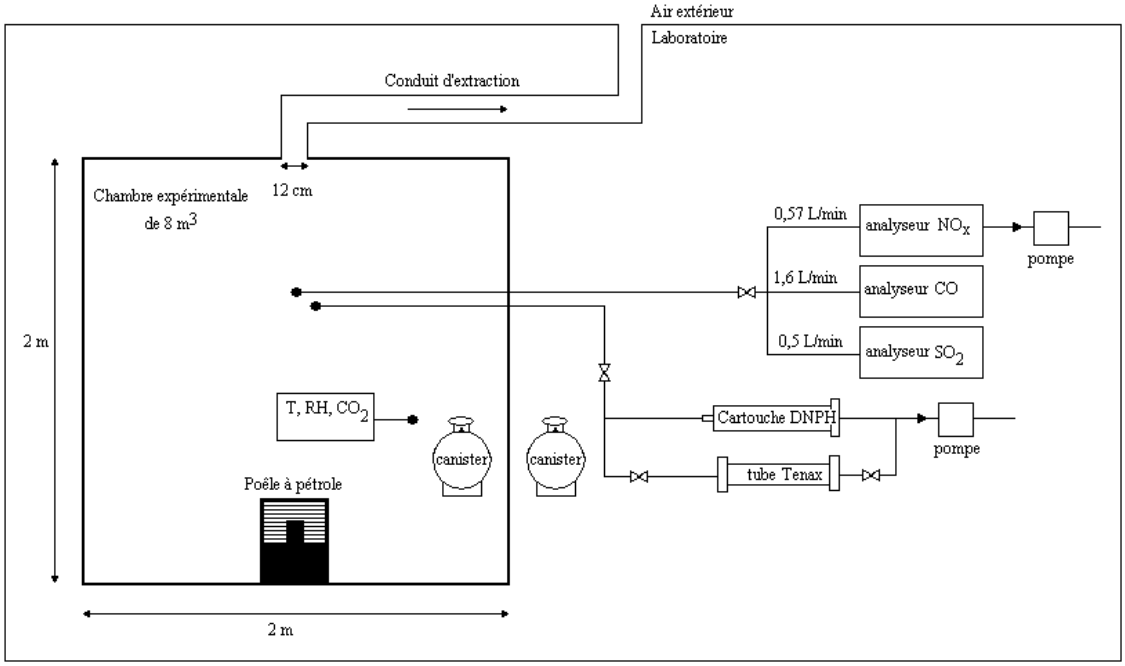


Figure 20. Organisation générale du dispositif expérimental

L'homogénéité de la répartition des polluants dans l'enceinte a préalablement été vérifiée grâce à la mesure des concentrations de NO_x, CO et SO_2 en deux points distincts (Figure 21) : le point de prélèvement A se situe au centre du cube à environ 1,6 m du sol, et le point B, plus excentré, se situe à environ 70 cm du sol. Les concentrations ont été mesurées deux fois à chaque endroit. Les résultats obtenus sont homogènes à 10 % près.

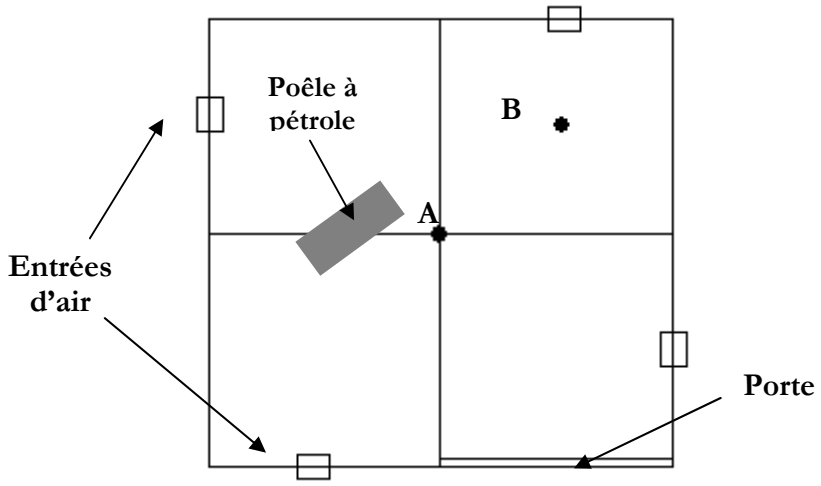


Figure 21. Vue de dessus de l'enceinte expérimentale

Pour les mesures d'émission en laboratoire, le poêle a été placé quasiment au centre de la chambre expérimentale (Figure 21). La consommation de carburant est évaluée par pesée du poêle à pétrole sur une balance (PMC-Milliot) avant et après fonctionnement du poêle, et parfois pendant son fonctionnement. La précision est de 0,2 g jusqu'à 12 kg.

Le dioxyde de carbone, la température et l'humidité relative sont mesurés avec une sonde spécifique (Testo 435-4, sonde IAQ, Testo, France) placée à l'intérieur de la chambre. Les autres polluants sont mesurés par échantillonnage de l'air de l'enceinte à environ 1,6 m au-dessus du sol (point A de la Figure 21), grâce à des tuyaux en PTFE (polytétrafluoroéthylène). Les analyseurs de gaz (CO, NO_x et SO_2) sont localisés à l'extérieur, à moins d'un mètre de la chambre. Les lignes de transfert ne sont pas chauffées.

III.4.1. PARAMETRES ENVIRONNEMENTAUX MESURES EN CONTINU

La **température**, **l'humidité relative** et le **dioxyde de carbone** sont mesurés dans l'enceinte expérimentale à l'aide d'un instrument de mesures multifonction Testo 435-4 (sonde IAQ). Le dioxyde de carbone est mesuré par interférométrie (NDIR).

Les caractéristiques de mesure des différents paramètres sont les suivantes :

Température : résolution : 0,1 °C ; précision : ± 0,3°C (-60 … +60°C);

Humidité relative : résolution : ± 0,1% (0…100%); précision : 0,2 % ;

CO_2 : résolution : ± 1 ppm (0…10000 ppm) ; précision : 50 ppm.

III.4.2. GAZ MESURES EN CONTINU

Le **monoxyde de carbone** est mesuré en continu à l'aide d'un analyseur à absorption infrarouge (Environnement S.A. Model CO 11 M). Le temps de réponse est de 40 secondes et les gammes de mesure sont comprises entre 10 et 100 ppm, avec une limite de détection de 0,1 ppm. Nous utilisons pour nos expériences la gamme 100 ppm.

Les **oxydes d'azote** sont mesurés par chimiluminescence (Seres Model NO_x 2000). Le temps de réponse est de 45 secondes et les gammes de mesure sont comprises entre 100 ppb et 20 ppm, avec une limite de détection de 1 ppb. La détection du niveau de concentration de NO et de NO_x n'est pas simultanée, ce qui influe sur les niveaux de NO_2, obtenus par soustraction du niveau de concentration de NO au niveau de NO_x. Nous utilisons la gamme 10 ppm pour nos mesures.

Le **dioxyde de soufre** est analysé par fluorescence dans l'ultraviolet (Environnement S.A. Model AF 21 M). Il possède un temps de réponse de 90 secondes et une gamme de mesure comprise entre 0,1 et 10 ppm, avec une limite de détection de 1 ppb. La gamme 0,250 ppm est utilisée pour nos mesures.

III.4.3. PRELEVEMENTS DE COV

Les **Composés Organiques Volatils** sont prélevés par deux techniques, et analysés par chromatographie en phase gazeuse selon deux méthodes différentes :

- Prélèvements par canisters (Restek SilcoCan™, 6L, 18 mL/min pendant 5 h).

Les canisters permettent le prélèvement de composés légers dans l'enceinte (C_2 à C_9), sur une durée étendue dans le temps à l'aide d'un dispositif Veriflo™ restreignant le débit, ou des prélèvements instantanés. Ils présentent donc l'avantage de permettre des échantillonnages sur des durées variables, mais aussi de faire des prélèvements simultanés à l'intérieur et à l'extérieur de la chambre expérimentale, afin de soustraire le niveau de fond de COV. Les parois internes des canisters utilisés sont traitées avec une base de silice fondue assurant un maximum d'inertie chimique, permettant le prélèvement de composés soufrés. Ne sachant pas dans quelle mesure l'intégrité de l'échantillon est garantie, les prélèvements et leur analyse se font dans la même journée.

Les analyses et le nettoyage des canisters sont faits à l'Ecole des Mines de Douai. Un système de préconcentration permet d'éliminer l'eau et le dioxyde de carbone contenus dans l'échantillon à analyser. L'analyse par chromatographie se poursuit par le passage de l'échantillon dans une première colonne, puis les composés élués le plus rapidement passent à travers une deuxième colonne et un détecteur FID, selon une méthode développée par l'Ecole des Mines. Les paramètres analytiques sont les suivants : Système de

préconcentration (Preconcentrator 7100, Entech Instruments) couplé à une chromatographie GC/FID munie de deux colonnes (CPSil 5 CB : 50 m x 0,32 mm x 1,2 μm, et CP-Al_2O_3/KCl : 39 m x 0,32 mm x 5 μm); Température du four : 35 °C pendant 8 min, 3°C/min jusqu'à 150 °C. Le basculement entre la première et la deuxième colonne a lieu à la 9ème min de l'analyse, puis programmation de 10 °C/min jusqu'à 200 °C, pendant 5 min. L'identification des composés se fait de façon individuelle en utilisant une calibration standard de composés compris entre C_2 et C_9. La limite de détection est de 0,01 ppb pour tous les composés quantifiés.

- Prélèvements sur tubes Tenax TA 60/80 (Perkin-Elmer, 2 mL/min, 10 - 30 min).

Les tubes Tenax permettent le prélèvement de COV dans une gamme de taille de composés plus large (de C_7 à C_{26}) que celle offerte par les canisters. Le piégeage des composés sur le tube dépend de leur affinité avec la phase adsorbante. Le temps d'exposition dépend de la teneur en polluants dans l'air, ce qui est un inconvénient pour notre application, puisque nous ne connaissons ni la nature ni la teneur en polluants émis par les poêles à pétrole.

Les analyses et le nettoyage des tubes Tenax sont réalisés à l'Ecole des Mines de Douai. Après désorption thermique, les tubes sont analysés par chromatographie en phase gazeuse couplée à un détecteur FID et à un spectromètre de masse, permettant ainsi l'identification des composés thermodésorbés par screening, ce qui n'est pas le cas lors de l'analyse des canisters par GC-FID avec une identification et une quantification basée sur un mélange étalon d'une quarantaine de composés compris entre C_6 et C_{16}. La méthode a également été développée par l'Ecole des Mines de Douai, et les paramètres sont les suivants : Désorption thermique (60 °C/min de 10 à 300 °C), analyse par GC/MS-FID (colonne RTX-1 : 105 m x 320 μm x 1,5 μm; Température du four : 25 °C pendant 2 min, 2 °C/min jusqu'à 150 °C puis 4 °C/min jusqu'à 250 °C pendant 10 min; gamme de masse : 25-250 uma; limite de détection : 1 ng/tube).

Les **composés carbonylés** sont prélevés sur cartouches DNPH (Supelco LpDNPH S10, 1 L/min, 60 min). La désorption chimique se fait ensuite avec 2 mL d'acétonitrile et l'analyse est réalisée par HPLC-UV selon les paramètres suivants : la chaîne analytique est composée d'un dégazeur (SpectraSystem SCM 1000), de pompes (SpectraSystem P 1000 XR) et d'un détecteur UV (SpectraSystem UV 6000 LP).

Colonne Alltima C_{18} : 25 cm x 4,6 mm x 5 μm;

Phase mobile : eau/acétonitrile (50/50, v/v), 1 mL/min, 100 min;

Volume injecté : 20 μL;

Détection : scan UV : 300-400 nm, 365 nm;

Limite de détection: 2 ng/mL.

La température, l'humidité relative et les concentrations de CO, CO_2, SO_2 et NO_x sont mesurées en continu quelques minutes (de 10 à 30 min) avant l'allumage du poêle, pendant les deux heures de fonctionnement du

poêle, et après son extinction. Etant données les concentrations mesurées pendant les expériences, on peut supposer qu'il n'y a pas de changement significatif du niveau de fond.

Les niveaux de fond de COV et composés carbonylés ont été déterminés par échantillonnage sur cartouches pendant 30 min avant l'allumage du poêle. Lors du fonctionnement de l'appareil de chauffage, les COV sont échantillonnés avec les canisters simultanément à l'intérieur et à l'extérieur de l'enceinte, afin de s'affranchir d'éventuelles autres sources de polluants.

III.4.4. PRELEVEMENTS DE PARTICULES

Les **particules ultrafines** sont mesurées à l'occasion de tests qualitatifs, dans une pièce du laboratoire d'environ 140 m^3, à l'aide d'un SMPS [1] (SMPS 3936, TSI, Shoreview, U.S.A.), permettant d'effectuer un échantillonnage en taille des particules présentes dans la pièce entre 15 et 700 nm avec un pas de temps de trois minutes (impacteur 0,0457 cm, low flow mode 0,3 $L.min^{-1}$). La sonde de prélèvement des particules est placée à proximité immédiate du poêle radiant (Figure 22). Cette mesure permet d'obtenir une distribution en taille (diamètre aérodynamique [2]) et nombre de particules à différents instants de fonctionnement du poêle (régime transitoire d'allumage, régime stable) et à son extinction.

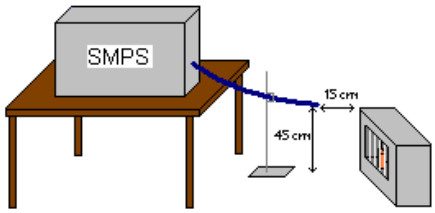


Figure 22. Disposition des appareils pour la mesure de particules ultrafines

Les **particules** de diamètre optique [3] compris entre **0,3 et 10 µm** émises par le poêle sont mesurées (Figure 23) dans une pièce du laboratoire d'environ 80 m^3 à l'aide d'un compteur optique de particules portable (AeroTrak™ Model 8220, TSI, Shoreview, U.S.A.).

[1] Les particules d'aérosol sont, dans un premier temps, classées selon leur taille par un analyseur à mobilité différentielle, basé sur la relation entre la mobilité électrique et la taille des particules monochargées. Les particules sont ensuite comptées par un compteur à noyau de condensation.

[2] Diamètre d'une sphère ayant la même vitesse de chute que la particule, et une masse spécifique égale à 1 $g.cm^{-3}$.

[3] Il fait référence à la diffusion de la lumière par les particules d'aérosol.

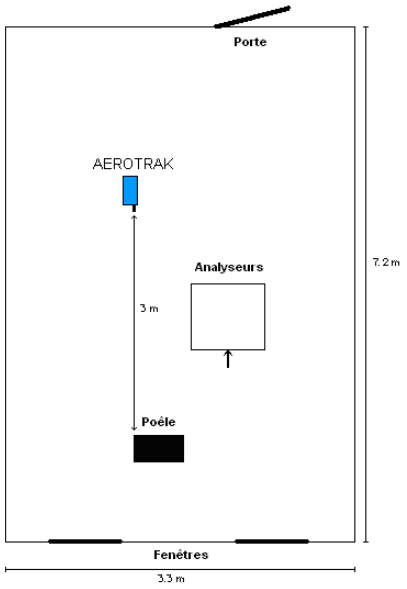


Figure 23. Disposition du compteur de particules dans la pièce

Pour avoir accès à la composition particulaire, nous avons mis en place un dispositif de prélèvement des particules de l'enceinte environnementale sur filtre quartz (37 mm de diamètre, Tecora[1], France). Le prélèvement se fait au centre de la chambre à l'aide d'un boîtier porte-filtre (Figure 24) relié à une pompe dont le débit est fixé à 2 $L.min^{-1}$.

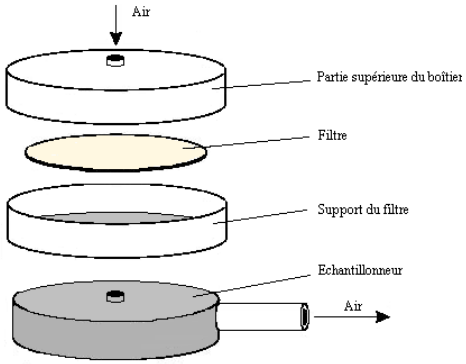


Figure 24. Vue éclatée du boîtier porte-filtre pour le prélèvement des particules sur filtre

Les analyses des échantillons sont réalisées au Centre Commun de Mesures de Dunkerque. Le filtre de prélèvement subit une extraction à l'aide d'un système Soxhlet par 100 mL de dichlorométhane. L'extrait est ensuite concentré par évaporation du solvant sous flux d'azote (jusqu'à un volume de 200 µL), avant d'être analysé par GC-MS avec les paramètres suivants :

[1] Anciennement Arelco

Chromatographe Varian 3800, spectromètre de masse Varian 1200

Gaz vecteur : He à 1 $mL.min^{-1}$

$T_{injecteur}$: 280 °C

Volume injecté : 1µL

Programmation du four : 40 °C (5 min) puis 5 °C/min jusqu'à 310 °C (1 min)

Ionisation par impact électronique à 70 eV

T_{source} : 280 °C

Limite de détection : 3 ppm massique dans les cendres

La recherche de HAP présents dans la phase particulaire est faite de façon systématique pour les seize composés prioritaires [1] listés par l'Agence Américaine de Protection Environnementale (US EPA). Il semble que les nitro-HAP ne soient pas détectables par cette méthode analytique.

III.5. CONCLUSION

Nous étudierons en laboratoire les émissions de deux modèles de poêles à pétrole : un poêle à mèche radiant, et un poêle soufflant à régulation électronique. Ces deux poêles ont été achetés au début de l'étude, et seront utilisés sans modification des réglages, de manière à reproduire les conditions habituelles d'utilisation de ce type d'appareil. Nous essayerons d'en tirer des informations sur l'influence du type de poêle à pétrole sur les facteurs d'émission des polluants.

Cinq carburants différents seront utilisés. Il s'agit de carburants achetés en grande surface (carburant « standard », carburant désaromatisé, et carburant « bio »), ainsi que deux carburants achetés dans des stations-service, l'une en France, l'autre en Belgique. Le carburant belge ne répond pas aux normes françaises en vigueur, et ne devrait pas être utilisé en France. Même si nous ne disposons pas de données quantitatives, il est néanmoins largement utilisé en région Nord-Pas-de-Calais, essentiellement par habitude de la part des particuliers, car le prix du pétrole lampant a longtemps été moins cher en Belgique qu'en France. Les teneurs en carbone et hydrogène de ces carburants sont similaires, ainsi que le pouvoir calorifique. En revanche, la composition chimique de ces carburants et leur viscosité cinématique sont très différentes. Ceci peut aussi avoir une influence sur les facteurs d'émission des polluants.

[1] Ces composés sont les suivants : benzo(a)pyrène, dibenzo(a,h)anthracène, benz(a)anthracène, benzo(b)fluoranthène, benzo(k)fluoranthène, chrysène, indéno(1,2,3,c,d)pyrène, benzo(g,h,i)pérylène, anthracène, acénaphtène, acénaphtylène, fluoranthène, fluorène, naphtaline, phénanthrène, pyrène.

Les conclusions concernant les émissions polluantes que nous pourrons tirer de ce choix limité de poêles et de carburants ne seront probablement pas généralisables à tous les carburants et tous les poêles disponibles en France et dans les régions limitrophes. Une étude exhaustive sortirait du cadre de cette thèse, et ne reproduirait pas les conditions réelles d'utilisation des poêles, notamment leur vieillissement et leur entretien éventuel par les particuliers. Néanmoins, nous avons identifié le type de poêle (poêle à mèche vs. poêle électronique) et la composition des carburants comme étant les facteurs les plus déterminants.

Les facteurs d'émission de polluants par les poêles à pétrole seront déterminés en laboratoire dans une enceinte expérimentale de 8 m^3 spécialement construite à cet effet. Cette enceinte expérimentale, qui ne vise pas à reproduire les conditions réelles (température, humidité, taux de renouvellement d'air) dans lesquelles sont utilisés les poêles à pétrole, est équipée pour la mesure de la température et de l'humidité relative ainsi que pour la mesure en continu des gaz suivants : NO_x, CO, CO_2 et SO_2. Les COV et composés carbonylés sont mesurés par prélèvement. Cette enceinte permet le contrôle des conditions expérimentales, notamment du taux de renouvellement d'air, et le confinement des émissions du poêle. D'autre part, cette enceinte protège l'expérimentateur et les autres personnes du laboratoire des odeurs et des composés potentiellement nocifs.

Des essais de prélèvements sur filtre en quartz des particules émises par les poêles à pétrole seront également effectués dans l'enceinte. Cependant, la distribution en taille et le devenir de ces particules dépend fortement des conditions expérimentales, et les émissions des particules en fonction de leur granulométrie seront évaluées dans deux laboratoires du PC2A de plus grand volume que l'enceinte (80 et 140 m^3).

III.6. REFERENCES

Guibet J.C. (1997). Carburants et moteurs. Institut Français du Pétrole, Editions Technip., Paris, 412 p.

CHAPITRE IV

MESURE EN LABORATOIRE DES EMISSIONS DES POELES A PETROLE

Ce chapitre présente les résultats de l'étude qualitative et quantitative menée en laboratoire sur les émissions des poêles à pétrole. Ces résultats ont été obtenus en utilisant l'enceinte, les méthodes analytiques, les poêles à pétrole et les carburants décrits au chapitre III.

IV.1. FACTEURS D'EMISSION DE POLLUANTS GAZEUX

Les facteurs d'émission de polluants gazeux générés lors de l'utilisation des poêles à pétrole ont été déterminés lors de notre étude en local expérimental. Cette partie est essentiellement constituée de l'article scientifique publié par la revue scientifique *Indoor Air* (DOI: 10.1111/j.1600-0668.2011.00763.x).

IV.1.1. MANUSCRIT DE INDOOR AIR

Indoor Air 2012
wileyonlinelibrary.com/journal/ina
Printed in Singapore. All rights reserved

© 2011 John Wiley & Sons A/S
INDOOR AIR
doi: 10.1111/j.1600-0668.2011.00763.x

Emission factors of gaseous pollutants from recent kerosene space heaters and fuels available in France in 2010

Abstract Laboratory measurements of the gaseous emission factors (EF) from two recent kerosene space heaters (wick and injector) with five different fuels have been conducted in an 8-m^3 environmental chamber. The two heaters tested were found to emit mainly CO_2, CO, NO, NO_2, and some volatile organic compounds (VOCs). NO_2 is continuously emitted during use, with an EF of 100–450 μg per g of consumed fuel. CO is normally emitted mainly during the first minutes of use (up to 3 mg/g). Formaldehyde and benzene EFs were quantified at 15 and 16 μg/g, respectively, for the wick heater. Some other VOCs, such as 1,3-butadiene, were detected with lower EFs. We demonstrated the unsuitability of a 'biofuel' containing fatty acid methyl esters for use with the wick heater, and that the accumulation of soot on the same heater, whatever the fuel, leads to a dramatic increase in the CO EF, up to 16 mg/g, which could be responsible for chronic and acute CO intoxications.

M. Carteret, J.-F. Pauwels, B. Hanoune

PhysicoChimie des Processus de Combustion (PC2A), UMR 8522 CNRS/Lille 1, Université Lille 1 Sciences et Technologies, Cité Scientifique, Villeneuve d'Ascq, France

Key words: Kerosene space heater; Chamber study; NO_x; Volatile organic compounds; Emission factors; Parameters influencing emissions.

B. Hanoune
PhysicoChimie des Processus de Combustion (PC2A), UMR 8522 CNRS/Lille 1, Université Lille 1 Sciences et Technologies, Cité Scientifique, 59655 Villeneuve d'Ascq, France
Tel.: +33 3204 34067
Fax: +33 3204 36977
e-mail: benjamin.hanoune@univ-lille1.fr

Received for review 28 February 2011. Accepted for publication 8 December 2011.

Practical Implications
Our results show that in spite of new technologies and emission standards for unvented kerosene space heaters, as well as for the fuels, the use of these heaters in indoor environments still leads to NO_x levels in excess of current health recommendations. Whereas injection heaters generate more nitrogen oxides than wick heaters, prolonged use of the latter leads to a soot buildup, concomitant with high CO emissions, which could be responsible for acute and chronic intoxications. The use of a biofuel in a wick heater is also of concern. Maintenance of the heaters and adequate ventilation of the room during use of kerosene space heaters are therefore of prime importance to reduce personal exposure.

Introduction

Kerosene space heaters are not equipped with a vent for burnt gases to the outside and are known, when used in confined spaces, to cause an increase in gaseous air pollutants. The main emissions are NO, NO_2, SO_2, CO, and CO_2 (Leaderer, 1982; Lionel et al., 1986; Tu and Hinchliffe, 1983; Yamanaka et al., 1979; Zhou and Cheng, 2000). These heaters have also been shown (Bozzelli et al., 1995) to produce volatile organic compounds (VOCs), including aliphatic hydrocarbons (from hexane through dodecane, and cyclohexane), aromatic compounds (benzene, toluene, ethylbenzene, nitrobenzene, ortho-, meta-, para-xylenes, styrene, and naphthalene), and carbonyls (Traynor et al., 1983), although, Leaderer et al. (1986) found no significant differences in formaldehyde levels between homes with and without kerosene heater. The production of organic species (Mumford et al., 1991), including carcinogenic polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) and nitro-PAHs, has also been put into evidence, as well as the production of mutagenic particles (White et al., 1987), especially nitropyrene derivatives (Kinouchi et al., 1988; Tokiwa et al., 1987). While the emissions occur continuously during use of the heater, there is also a transient emission of air toxics when the heater is turned on or off (Woodring et al., 1985).

Comparison between all the results published on the emissions from these appliances is far from straightforward, because of the diversity of the measurement protocols (field studies, chamber studies, size and configuration of the room or chamber, etc.) and of the target contaminants. In addition, the technology of the kerosene heaters has evolved since those studies, as well as the composition of the fuels. Both the heaters and fuels also differ depending on the country they are used in.

This paper focuses on the emission rates of the gaseous pollutants associated with the use of recent kerosene space heaters and fuels available in France. Kerosene space heaters have also been shown to produce particles (Traynor et al., 1990; Woodring et al., 1985), but these have been excluded from the present chamber study. This work is intended as a first step to evaluate with current emission factors (EFs) the so far undocumented chronic exposure of users to pollutants emitted by unvented mobile kerosene space heaters, the use of which is continuously increasing.

Materials and methods

We investigated the gaseous emissions from two mobile kerosene space heaters, bought commercially and used without any tuning or modification. These two specific units have been taken at random among the brands and models available in France. The first heater is a radiant/wick type (Tayosan 263, heating output 2400 W), where the fuel is carried from the tank into the combustion chamber by capillarity through an impregnated wick. For the second heater (Zibro SRE 25 E, heating output automatically adjusting from 830 to 2700 W), the fuel is injected by an electronic pump, which allows the regulation of the heating output based on an inbuilt temperature probe.

Five different fuels available locally were tested. They include two standard fuels: a French fuel purchased in a store (#1) and a Belgian fuel purchased at a gas station (#2), a 'biofuel' containing fatty acid methyl esters (FAME) (#3), a low aromatic content fuel (#4), and a fuel purchased at a gas station in France (#5). The current standards for the fuels are listed in Table 1, which also presents the results of the GC/MS analysis of the fuels, except for fuel #5 that was not analyzed. The results in Table 1 show the diversity of the chemical composition of the fuels. Fuel #4 is the most refined fuel used in this study, composed only of alkanes. French and Belgian standard fuels contain respectively 78% and 69% of alkanes, with the main other constituents being cycloalkanes and monocyclic aromatic compounds respectively. For fuel #3, only 89% of the compounds were identified, showing a majority of normal and branched alkanes, with about 20% of cycloalkanes as in fuel #1. It also contains 8% esters. Also given in Table 1 are the kinematic viscosity of the fuels, and the lower heating values (LHV) determined by bomb calorimetry. No significant difference is noticed, even for the ester-containing fuel #3.

Table 1 Properties of the fuels used in this study

Fuel number	#1	#2	#3	#4	#5
Special feature	Low cost bought in a french store	Low cost bought at a Belgian petrol station	Biofuel containing fatty acid methyl esters	Low aromatic content (<0.008%)	Low cost bought at a French petrol station
Price (€/l)	0.85	0.84	1.50	1.66	1.07
Current standards					
Kinematic viscosity (mm^2/s at 25°C)	<3.0		<3.0	<3.0	<3.0
Flashpoint (°C)	>61	>55	>61	>61	>61
Aromatic hydrocarbons content (g/g)	<1%		<1%	<1%	<1%
Benzene maximal content (g/g)	0.1%		0.1%	0.1%	0.1%
Sulfur maximal content (mg/kg)	5	100	5	5	5
Physical properties measured in laboratory					
Kinematic viscosity (mm^2/s at 20°C)	2.28	1.92	2.26	2.06	–
Lower heating values (J/g)	43,606	43,271	43,187	44,079	43,572
GC/MS analysis (mg/g)					
Straight-chain alkanes	408	344	191	31	–
Branched-chain alkanes	404	365	379	969	–
Cycloalkanes	150	36	165	0	–
Monocyclic aromatic hydrocarbons	0	147	0	0	–
Polycyclic aromatic hydrocarbons	15	42	15	0	–
Esters	0	0	85	0	–
Alcohols	0	2	5	0	–
Alkenes	9	16	31	0	–

The experiments were carried out in an aluminum/poly(methyl methacrylate) (PMMA) 8-m^3 chamber (Figure 1). Ambient air from the laboratory enters the chamber at the bottom of the lateral panels through four G4 particle filters (coarse particles efficiency >95%) and is extracted with a mechanical ventilation system through an opening in the ceiling. The airflow rate in the chamber can be adjusted from 0.3 to 3.74 m^3/min (from 2.6 to 25.2 air change per hour). Most of the experiments reported here were carried out with an air exchange rate of ~7.4/h. This high rate is not intended to reproduce the actual air change rate in French residences, but has been found necessary to keep the temperature of the chamber below ~40°C during the experiments with the wick heater, normally designed for use in rooms larger than 30 m^3. No condensation occurred on the surfaces of the chamber. The same air exchange rate has been used for the injection heater experiments, during which the temperature inside the chamber reached a maximum of 32°C (setpoint: 28°C) because of the electronic regulation.

The instruments used for the characterization of pollutants inside the chamber are summarized in Table 2. CO_2, temperature, and relative humidity are measured with a dedicated probe located inside the chamber. All other pollutants are measured by sampling air at the center of the chamber, 1.6 m above the floor, through polytetrafluoroethylene (PTFE) sampling lines. Analysis instruments are located outside the chamber, within 1 m of the chamber, and the transfer lines were not heated. Initial experiments were performed to verify that the pollutant concentrations were homogeneous within 15% in the entire chamber. CO, NO_x, and SO_2 are continuously monitored with gas analyzers. Carbonyls are sampled onto 2,4-DNPH cartridges, subsequently analyzed by UV-HPLC. VOCs (C4–C17) are sampled with Tenax tubes and analyzed by thermal desorption followed by gas chromatography using FID and MS detection. Canisters were also used to sample smaller VOCs (C2–C9) subsequently analyzed by GC-FID.

Temperature, relative humidity, and concentrations of CO, CO_2, SO_2, and NO_x are measured continuously before installing the heater at the center of the chamber floor, during the ~2-h experiments, and after turning the heater off. In view of the pollutant concentrations measured during the experiments, we may assume that there is no significant change in the background levels. Background VOCs and carbonyl concentrations are determined by sampling on cartridges during 30 min before the heater is turned on. During operation of the heaters, VOCs are simultaneously sampled in canisters inside and outside the experimental chamber to check for possible variations in the background levels.

For each heater and fuel configuration, experiments were repeated up to seven times. For each run, the steady-state concentrations show fluctuations around the mean value of about 5–10% for the wick heater, and about 10–15% for the injection heater. These mean concentrations vary from run to run by 10–30%.

Calculation of emission factors

The EF (μg/g of fuel) is calculated according to the method developed by Tichenor et al. (1990), as a function of the fuel consumption rate F (g/h) and the pollutant generation rate G (mg/h):

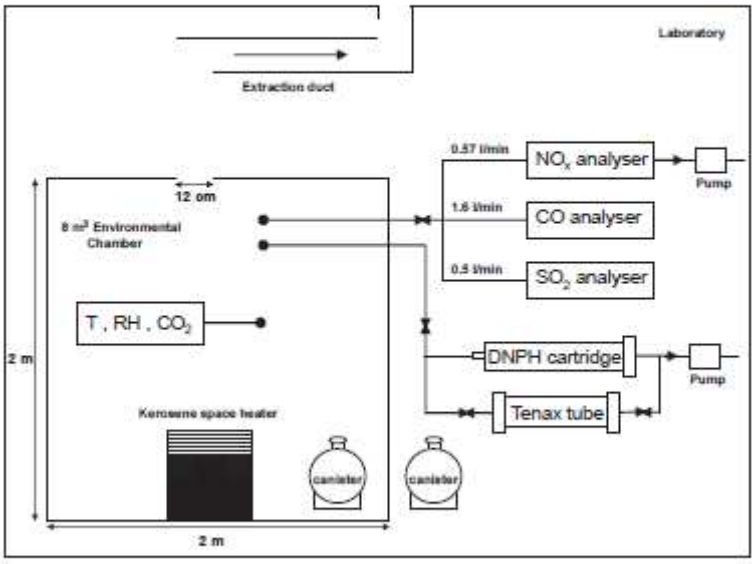


Fig. 1 General setup of the experimental chamber and instrumentation

Table 2 Analytical and sampling instruments

Parameter	Instrument
Temperature, relative humidity,	Multifunction measuring instrument (Testo 435–4) with IAQ probe
CO_2	NDIR; precision 50 ppm
CO	Infrared absorption analyzer (Model CO 11 M, Environnement SA, Poissy, France)
NO_x	Chemiluminescence analyzer (Model NO_x 2000, Series, Aix-en-Provence, France)
SO_2	Fluorescence analyzer (Model AF 21 M, Environnement)
Volatile organic compounds	Tenax TA 60/80 sampling tubes (Perkin-Elmer, Waltham, MA, USA; 2 ml/min, 10–30 min). Thermal desorption (60°C/min from 10 to 300°C), GC/MS-FID analysis (RXT-1 column: 105 m × 320 μm × 1.5 μm; oven temperature: 25°C hold 2 min, 2°C/min to 150°C then 4°C/min to 250°C hold 10 min; scanning mass range: 25–250 amu; LOD : 1 ng/tube) Canisters (Restek, Lisses, France; SilcoCan™; 6 l, 18 ml/min for 5 h). Preconcentrator system (Preconcentrator 7100; Entech Instruments, Simi Valley, CA, USA) coupled with a GC/FID containing two columns (CPSil 5 CB: 50 m × 0.32 mm × 1.2 μm, and Al_2O_3/KCl : 39 m × 0.32 mm × 5 μm); oven temperature: 35°C hold 8 min, 3°C/min to 150°C (the switching between the first and the second column happens at the 9th min of the run), then 10°C/min to 200°C, hold 5 min. Individual identification was carried out using a standard calibration; LOD of 0.01 ppb for all compounds quantified
Carbonyls	DNPH cartridges (Supelco LpDNPH S10, 1 l/min, 60 min; Sigma-Aldrich, Lyon, France). Chemical desorption with 2 ml of acetonitrile; HPLC-UV analysis (volume injected: 20 μl; column Altima C_{18}, 25 cm × 4.6 mm × 5 μm; mobile phase: water/acetonitrile (50/50, v/v), 1 ml/min, 100 min; UV scan: 300–400 nm, 365 nm; LOD: 2 ng/ml).
Fuel consumption	Scale (PMC-Milliot), precision of 0.2 g, maximum range, 12 kg

$$\mathrm{EF} = \frac{G}{F} \times 1000. \tag{1}$$

The pollutant generation rate is calculated from the chamber volume V (m^3), the steady-state chamber concentration C_{eq} (mg/m^3), the inlet concentration C_0 (mg/m^3), taken as the background level in our study, the chamber flow rate k_v (per hour), the rate of removal by surfaces k_a (per hour), and the rate of removal owing to the sampling procedure k_r (per hour):

$$G = V \times (C_{eq} - C_0) \times (k_v + k_a + k_r). \tag{2}$$

The sampling rate constant k_r (0.02/h) is known from the analytical instrumentation characteristics. The ventilation rate k_v is determined from the CO_2 decrease after extinction of the heater. The chamber surface removal rates k_a for NO and SO_2, 2.6 and 3.3/h respectively, are determined directly from their decrease curves after extinction of the heater, taking into account the ventilation rate. As direct determination of the NO_2 surface removal rate is not possible because of the delay between the NO_x and NO measurements, we use for NO_2 the NO_x surface removal rate of 4.3/h determined with the same procedure. CO deposition rate is neglected.

Time evolution of the emissions of carbon oxides, nitrogen oxides, and sulfur dioxide

With the wick heater, the temperature and concentrations of CO_2, NO, and NO_2 increase steadily with time in the chamber, before reaching a plateau about 30 min after turning the heater on, as is illustrated in Figure 2. SO_2 is produced at non-negligible levels only when using fuel #2, because Belgian fuels have less drastic sulfur content standards than the French fuels. The SO_2 concentration in the chamber follows the same temporal evolution as the NO_x concentration. CO (Figure 3) is mainly emitted during the first 15 min at the ignition of the wick heater. Prolonged use (~ 20 h) of the heater leads to the deposition of soot on the surfaces, in particular just above the burner. This production of soot is related to the height of the flame that tends to reach the upper part of the combustion chamber and is faster with the 'biofuel' than with the other fuels. The deposition of soot is accompanied by a continuous increase in CO in the chamber (Figure 3), because of the combustion of the soot, and also by a transient overproduction of CO at the extinction of the heater.

With the injection heater, two phases can be distinguished in the concentrations of CO_2, NO, and NO_2 (Figure 2), as well as SO_2 when present, that is, with fuel #2. These two phases are induced by the inbuilt fuel injection regulation system and also appear in the temperature evolution curves during the experiments. They are directly related to the heating output, as monitored by the fuel consumption (see below), which is higher during Phase I, when the setpoint temperature has not been reached, than during Phase II. As for the wick heater, there is a small transient production of CO (Figure 3) when the heater is turned on. No buildup of soot is observed with the injection heater.

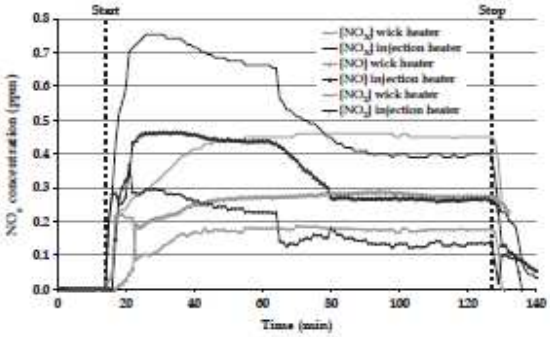


Fig. 2 NO_x concentration in the chamber (fuel #1)

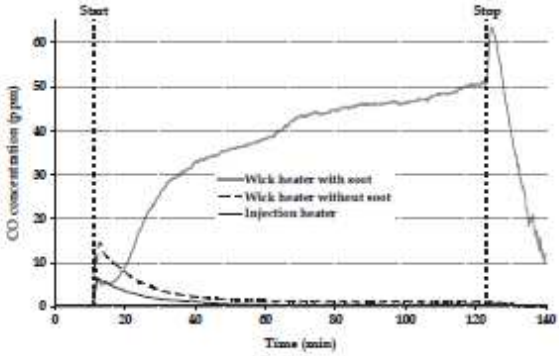


Fig. 3 CO emissions with the wick heater and injection heater (fuel #3). Sooted conditions correspond to 40 h operation without cleaning

Emission factors for the wick heater

For the wick heater, the EF is calculated using the average concentration during the last 60 min of the runs. The fuel consumption rate, measured by weighing the heater before and after each of the 37 experiments, is 191.4 ± 10.9 g/h (nominal consumption of 200 g/h), independent of the fuel under investigation, of the initial amount of fuel in the heater, and of the wick aging. As has been discussed by Lionel et al. (1986), the consistency of the fuel consumption rate is a good indicator of the reproducibility in the operation of the heater. The effect of wick height, which Lionel et al. showed could have an influence on the fuel consumption, was not investigated.

The steady-state EFs are summarized in Table 3, together with the EFs determined in previous works. NO EFs, from 100 to 250 μg/g of consumed fuel, are comparable only to the most recent values of Zhou and Cheng (2000), higher than in the older studies. NO_2 EFs, from 130 to 340 μg/g, are close to the EFs determined in previous works. The NO and NO_2 EFs from the biofuel are significantly higher by a factor 2 from the EFs of the other fuels. CO EFs (1–4 mg/g) are comparable to the ones determined in previous works. It is not clear whether the evolution in the EFs is related to changes in the fuel or in the technology of the heater. SO_2 emissions occur only with the

Table 3 Steady-state wick heater emission factors (milligrams per gram of consumed fuel). All previous works are chamber experiments, except Zhou and Cheng (2000). Also given is the emission factor for CO during the first 15 min

		NO		NO_2		CO (steady state)		CO (15 min)		CO_2		SO_2	
Authors	Comments	*n*	Mean value ± s.d.	*n*	Mean value ± s.d.	*n*	Mean value ± s.d.	*n*	Mean value ± s.d.	*n*	Mean value ± s.d.	*n*	Mean value ± s.d.
This study	Fuel #1	3	0.122 ± 0.016	3	0.150 ± 0.013	4	1.8 ± 1.6	4	2.6 ± 0.9	3	3191 ± 72		–
	Fuel #2	5	0.097 ± 0.042	5	0.143 ± 0.051	5	2.2 ± 2.3	4	2.5 ± 0.8	4	3075 ± 361	2	0.232 ± 0.012
	Fuel #3	5	0.257 ± 0.021	5	0.241 ± 0.082	7	2.8 ± 2.3	6	3.0 ± 0.9	2	2929 ± 344		–
	Fuel #4	4	0.141 ± 0.029	4	0.163 ± 0.027	4	0.9 ± 0.2	4	2.5 ± 0.7	4	2966 ± 191		–
	Fuel #5	3	0.146 ± 0.021	3	0.133 ± 0.024	3	3.8 ± 4.3	3	2.8 ± 0.2		–	2	0.014 ± 0.006
Leaderer (1982)	Normal flame setting	3	0.004 ± 0.002	3	0.217 ± 0.010	3	2.53 ± 0.219		–	3	2918 ± 99	3	0.700 ± 0.250
	High flame setting	3	0.020 ± 0.002	3	0.192 ± 0.008	3	1.85 ± 0.107		–	3	3092 ± 61	3	0.726 ± 0.018
	Low flame setting	3	Not different from background	3	0.256 ± 0.012	3	3.17 ± 0.115		–	3	2959 ± 6	3	0.780 ± 0.004
Traynor et al. (1983)	Fired in chamber (new heater)	1	0.061	1	0.226	1	2.62		–	1	3060		–
	Warm-up period (new heater)	1	0.052	1	0.178	1	3.12		–	1	2980		–
	Warm-up period (after one year of use)	1	0.091	1	0.220	1	2.35		–	1	2880		–
Cáceres et al. (1983)	Heater 1	3	0.026	3	0.111	3	3.70		–		–	3	0.704
	Heater 2	3	0.057	3	0.170	3	1.85		–		–		–
	Heater 3	3	0.160	3	0.150	3	0.50		–		–		–
Woodring et al. (1985)	1-K fuel (1 h), heater 1		–	2	0.257 ± 0.004	2	3.29 ± 0.56		–		–	2	0.204 ± 0.013
	1-K fuel (1 h), heater 2		–	3	0.165 ± 0.065	3	4.14 ± 1.78		–		–	3	0.339 ± 0.096
	2-K fuel (1 h), heater 1		–	4	0.174 ± 0.074	4	6.94 ± 1.07		–		–	4	2.031 ± 0.970
	2-K fuel (1 h), heater 2		–	2	0.309 ± 0.022	2	7.44 ± 0.44		–		–	2	1.714 ± 0.570
	2-K fuel (1 h), heater 3		–	5	0.261 ± 0.061	5	9.63 ± 2.09		–		–	4	1.496 ± 0.196
Traynor et al. (1990)	1 h average with five different wick heaters	2–4	0.030 ± 0.007	2–4	0.222 ± 0.017	2–4	4.00 ± 0.70		–		–		–
		2–4	0.023 ± 0.006	2–4	0.218 ± 0.013	2–4	3.83 ± 0.48		–		–		–
		2–4	0.030 ± 0.009	2–4	0.218 ± 0.013	2–4	3.35 ± 0.44		–		–		–
		2–4	0.037 ± 0.010	2–4	0.204 ± 0.009	2–4	3.70 ± 0.52		–		–		–
		2–4	0.031 ± 0.008	2–4	0.200 ± 0.009	2–4	3.44 ± 0.17		–		–		–
Zhou and Cheng (2000)	1-K fuel	n.i.	0.094		–	n.i.	0.90		–		–		–
	JA-1 fuel	n.i.	0.117		–	n.i.	1.39		–		–		–
	JP-8 fuel	n.i.	0.121		–	n.i.	1.24		–		–	n.i.	1.440

Belgian fuel (fuel #2), because of its higher sulfur content.

Also given in Table 3 is the CO EF when the heater is turned on, calculated from the mean concentration during the first 15 min of the runs. These values should be considered only as lower estimates of the EFs when igniting the heater, because steady state is not reached, because the fuel consumption is not stabilized, and because these transient emissions of CO most likely occur on a shorter timescale, as shown in Figure 3.

In the presence of soot, the CO level in the chamber does not reach a plateau and fluctuates highly from run to run owing to the difficulty in controlling or quantifying the amount of soot deposited. We can still derive an effective CO EF of 16 mg/g, based on the maximal ~50 ppm concentration, as shown in Figure 3. In this case, CO does not come from the combustion of the fuel itself but of the soot, and the fuel consumption rate used for the calculation is only a proxy for the duration of the combustion. The transient CO emission at the extinction of the heater cannot be characterized by an EF at all.

Emission factors for the injection heater

For the injection heater, the consumption rate is determined by continuously monitoring the heater weight during the runs. This consumption rate is determined to be 116.3 ± 1.6 g/h during the first phase (between 10 and 40 min after ignition of the heater), and 97.5 ± 6.8 g/h in the steady-state regime, after 1 h of use. As for the wick heater, the consumption does not depend upon the initial amount of fuel in the injection heater or upon the type of fuel. These EFs are summarized in Table 4, for both phases. There is no previously published data on injection heaters. As for the wick heater, we also report the CO EF when the heater is turned on, calculated from the mean concentration during the first 15 min. The average consumption of the injection heater during this 15-min period is 162.7 ± 10.7 g/h.

Although the two phases are clearly distinguished from the concentrations in the chamber and the fuel consumption and temperature profiles, the EFs for individual pollutants are similar in the two phases. They range from 300 to 470 μg/g for NO, 250 to 500 μg/g for NO_2, and 0.1 to 1 mg/g for CO. As for the wick heater, only fuel #2 gives rise to a non-negligible emission of SO_2 of about 200 μg/g. The 'biofuel' used with the injection heater does not lead to higher NO_x EFs than the other fuel. Globally, the NO and NO_2 EFs are 2–3 times higher with the injection heater than with the wick heater. Steady-state and initial CO EFs are lower with the injection heater. SO_2 EFs are comparable with both heaters.

VOCs emission factors

Only formaldehyde, acetaldehyde, and acetone were detected at non-negligible levels. Even with the fatty acid methyl ester–containing 'biofuel' (fuel #3), no acrolein was detected, but we cannot rule out a possible artifact because of the instability of DNPH-acrolein hydrazone during storage (Seaman et al., 2006). The EFs derived from these measurements are summarized in Table 5, together with the results of previous studies. Care was taken not to have any visible soot present on the wick heater before starting the experiments. The measurements show a large dispersion, even for individual fuels, and in particular for fuel #2. The average formaldehyde emission rate is 8.0 μg/g for the injection heater. For the wick heater, the average 14.4 μg/g value is not significantly different from the measurements of Cáceres et al. (1983) or Woodring et al. (1985), but is much lower than the results of Traynor et al. (1983) when using a new heater, or even after 1 year of use. In the presence of visible soot on the wick heater, we measured carbonyl concentrations, and therefore EFs, up to three times higher than in the absence of soot.

Volatile organic compound sampling with canisters were performed only for a few combinations of heater and fuel. The complete list of VOCs quantified in this study is available in Table S1. A few

Table 4 Injection heater emission factors (milligrams per gram of consumed fuel)

		NO		NO_2		CO		CO (15 min)		CO_2		SO_2	
Fuel	Comments	*n*	Mean value ± s.d.	*n*	Mean value ± s.d.	*n*	Mean value ± s.d.	*n*	Mean value ± s.d.	*n*	Mean value ± s.d.	*n*	Mean value ± s.d.
#1	Phase 1	6	0.463 ± 0.114	6	0.505 ± 0.152	6	0.5 ± 0.5	6	1.1 ± 0.7	2	2948 ± 9	1	0.008
	Phase 2		0.306 ± 0.058		0.316 ± 0.074		0.1 ± 0.2				3042 ± 229		0.004
#2	Phase 1	2	0.336 ± 0.105	2	0.347 ± 0.037	4	0.6 ± 0.2	4	0.9 ± 0.6	3	3029 ± 390	4	0.203 ± 0.050
	Phase 2		0.286 ± 0.152		0.272 ± 0.018		0.3 ± 0.3				3256 ± 450		0.226 ± 0.023
#3	Phase 1	4	0.332 ± 0.064	4	0.359 ± 0.037	3	0.7 ± 0.1	3	1.4 ± 0.1	3	3111 ± 131	1	0.009
	Phase 2		0.273 ± 0.035		0.253 ± 0.018	4	0.2 ± 0.2			2	3092 ± 230		0.006
#4	Phase 1	4	0.454 ± 0.112	4	0.462 ± 0.095	4	0.4 ± 0.5	4	1.5 ± 1.5	2	3077 ± 96	1	0.010
	Phase 2		0.469 ± 0.069		0.395 ± 0.049		0.3 ± 0.4				3100 ± 195		0.006
#5	Phase 1	4	0.346 ± 0.093	4	0.350 ± 0.020	3	1.0 ± 0.2	4	2.2 ± 0.2		–	1	0.009
	Phase 2		0.346 ± 0.133		0.288 ± 0.066		0.5 ± 0.3						0.039

Table 5. 1-h average carbonyl emission factors in micrograms per gram of consumed fuel (mean ± s.d.)

Authors	Heater type	Comments	n	Emission factors (μg/g) mean value ± s.d.		
				Formaldehyde	Acetaldehyde	Acetone
This study	Wick heater	Fuel #1	4	15.2 ± 7.4	3.8 ± 1.6	3.9 ± 2.6
		Fuel #2	4	17.7 ± 2.2	4.9 ± 0.3	31.2 ± 35.8
		Fuel #3	6	10.2 ± 7.8	2.5 ± 2.2	5.8 ± 5.9
		Fuel #4	4	15.7 ± 2.8	4.8 ± 0.8	7.0 ± 2.5
		Fuel #5	3	13.1 ± 0.8	4.3 ± 0.5	8.9 ± 6.4
	Injection heater	Fuel #1	4	7.3 ± 2.3	3.1 ± 0.9	9.9 ± 5.2
		Fuel #2	3	8.4 ± 1.6	3.1 ± 0.5	24.2 ± 39.1
		Fuel #3	3	8.4 ± 1.1	2.4 ± 0.5	3.0 ± 1.9
		Fuel #4	3	6.0 ± 3.1	3.8 ± 3.7	11.1 ± 4.5
		Fuel #5	5	10.1 ± 2.3	3.9 ± 1.0	10.1 ± 5.0
Cáceres et al. (1983)	Wick type 1		3	3.7		
	Wick type 2		3	3.3		
	Wick type 3		3	2.0		
Traynor et al. (1983)	Wick type (new)	Fired in chamber	1	274.1		
		Warm-up period	1	213.2		
	Wick type (after 1 year)	Warm-up period	1	43.5		
Woodring et al. (1985)	Wick type 1	1-K fuel (1 h)	2	20.4 ± 1.7		
	Wick type 2	1-K fuel (1 h)	2	7.8 ± 1.7		
	Wick type 1	2-K fuel (1 h)	1	23.1		

Table 6 Volatile organic compounds emission factors (μg/g)

Heater	Wick type		Injector type
Fuel	#1	#3	#4
Test duration (h)	4.7	4.3	5.0
1,3-Butadiene	4.0	4.8	1.8
Benzene	9.9	15.8	3.8
Ethane	27.7	3.2	3.0
Ethylene	29.8	45.9	29.4
Isobutane + acetylene	22.8	65.7	15.1
Propene	13.3	15.1	9.0

compounds were not identified. Among the quantified VOCs, only six are emitted in significant amount and present a known risk for human health: 1,3-butadiene, benzene, ethylene, propene, isobutane, and/or acetylene (isobutane and acetylene could not be analytically separated). Table 6 shows the EFs of these compounds, calculated over the total duration of the sampling. Also emitted by the heaters are 2,2-dimethylbutane, but-1-ene, ethane, hex-1-ene, isobutene, propyne, and trans-but-2-ene, but these compounds do not present, in the current state of knowledge, a toxicological risk. These EFs, averaged for ~5 h, do not reflect the temporal evolution of the emissions. Short-time (30 min) samplings on Tenax cartridges show a decrease in the EFs of benzene, from 109 μg/g during the first 30 min after ignition to 16 μg/g in the next half hour, to 10 μg/g after 1.5 h (wick heater with fuel #3). However, these short-term samplings are not easily reproduced because of the low mass of VOCs collected on the cartridge, close to the detection limit. This initial spike of VOCs emission, concomitant with the transient increase in CO, has already been reported by Woodring et al. (1985).

Potential impact on indoor air quality

In 2007, kerosene space heaters were responsible for 49 of the 1061 carbon monoxide poisoning cases caused by domestic appliances in France (Verrier et al., 2010). While these data provide information on acute intoxications, the chronic intoxications by NO_2 or CO are also, maybe even more, of concern, because kerosene space heaters are generally used as the main, and not a supplementary, source of heat, as demonstrated by the field study of Chambon and Schadkowski (2004), who found that the average daily use duration of kerosene space heaters is 9 h, with a maximum of 22 h per day.

The EFs determined in this study allow us to estimate the increase in the pollutant concentrations that would be expected during use of a kerosene heater in the smallest room recommended by the manufacturer of our heater units (37 m^3 for the wick heater and 40 m^3 for the injection heater). We took for the simulations the average EF of the five fuels for the injection heater, while for the wick heater, we excluded the biofuel. SO_2 EF is taken from fuel #2. The air exchange rate has been taken at 0.5/h, the deposition rates on the surfaces are 1/h for NO_2 (Yamanaka, 1984), 2/h for SO_2 (Walsh et al., 1977), and negligible for the other pollutants. The resulting increases in the concentrations are given in Table 7. These time-independent concentrations must, however, be considered as extreme cases, because of the small volume used in the simulation, and because the calculations consider only the steady state and do

Table 7 Expected maximal pollutant concentrations during use of a heater for a ~40-m³ room

Maximal predicted concentration (ppm)	NO	NO_2	CO	CO (15 min)	CO_2	SO_2	HCHO
Wick heater	1.063	0.254	20	27	17,413	0.180	0.128
Wick heater with soot			149		18,240		
Injection heater (phase I)	1.799	0.410	4	11	9663	0.089	0.037
Injection heater (phase II)	1.313	0.259	1		8525	0.083	0.031

not take into account the duration of use, which depends upon the thermal properties of the room and the patterns of use of the heaters, which are both outside the scope of this study. Still, the work of Chambon and Schadkowski (2004) shows that some people use the heaters continuously for several hours, and steady state is probably reached.

For both heaters, the increase in NO_2 concentration caused by the heater would exceed the ambient air 1-h WHO (2010) recommendation of 100 ppb, and this would still be the case for larger rooms of ~100 m^3. High levels of NO_2 have indeed been measured in field studies by Kawamoto et al. (1993) in Japan, with an average concentration of 114.5 ppb, and more recently by Ruiz et al. (2010) in Santiago (Chile), of 65.4 ± 15.9 ppb, whereas the levels in the control homes were around 26 ppb.

The CO levels induced by the injection heater reach a maximal transient value of 10 ppm, lower than the 15-min 86 ppm or 1-h 30 ppm WHO guidelines (WHO, 2010), before stabilizing at around 1 ppm. No health effect is therefore expected with this pollutant, even in small rooms. With the wick heater, after a transient ~30-ppm level, the CO concentration would stabilize at 20 ppm, higher than the 8-h 9-ppm WHO guideline (WHO, 2010). In the presence of soot, the steady-state concentration reaches 150 ppm, at which level the health of users would be adversely impacted. Even in larger rooms, a sooted wick heater would generate unsafe indoor air CO concentrations. High CO levels of 61 ± 24 ppm have been measured in a dormitory at the Hebrew University of Jerusalem (Amitai et al., 1998), whereas lower concentrations have been reported by Cooper and Alberti (1984) in their study of 14 homes of the Richmond area (VA, USA), with an average of 6.8 ± 5.9 ppm, or by Chambon and Schadkowski (2004) in their investigation of 23 French-dwelling units, with a 1-h maximal average of 23.7 ppm.

SO_2 levels, induced by the use of Belgian fuel, would reach ~60 ppb for the injection heater and 150 ppb with the wick heater, largely above the WHO 24-h recommendation of 7.7 ppb, and close to the outdoor air 10-min guideline of 190 ppb. This stresses the importance of the desulfurization of the fuel and is in agreement with the field studies, where concentrations in excess of 400 ppb have been reported by Cáceres et al. (1983), Cooper and Alberti (1984) or Leaderer et al. (1984), whereas more recent studies report indoor concentrations of a few parts per billion (Ruiz et al., 2010).

The formaldehyde increase of about 20 ppb by the injection heater or 80 ppb by the wick heater is of the same order as the concentration measured by Leaderer et al. (1986) of 22 ± 14 ppb. These levels are lower than the WHO 30-min recommendation of 80 ppb, but still exceed the proposed guideline of 8 ppb.

Last but not least, the CO_2 concentrations obtained in the simulations, of ~18,000 ppm for the wick heater, and ~9000 ppm for the injection heater, are much higher than the 700-ppm comfort criteria according to ASHRAE (ANSI/ASHRAE 62.1-2010) and would still be in a larger room.

Conclusion

An experimental chamber was developed to measure pollutant EFs from kerosene space heaters. Two kinds of heater (wick and injection) and five kinds of fuel available locally were tested. NO_x, CO_2, and CO are the main gaseous pollutants emitted by both heaters, as reported in previous studies.

Except when using a Belgian fuel, with high sulfur content, SO_2 emissions are negligible, which clearly demonstrates the importance for IAQ of the evolution of the standards in the fuel composition. The use of a 'biofuel' containing FAME with the wick heater leads to NO_x and CO EFs increased by a factor 2 compared to the other fuels. As the same fuel induces no increase in the EFs when used in the injection heater, the reasons why it would be less suitable for the wick heater are unclear. For the other pollutants, no significant change compared to the results of previous studies on wick heaters is observed. As in previous studies, a transient emission of air toxics is observed, before the heater reaches a steady-state mode (impregnation of the wick and steady-state temperature of the combustion chamber).

The injection heater is characterized by higher NO_x EFs and lower CO EFs, whatever the fuel used, compared to the wick heater. In addition, long-term use of the injection heater does not lead to the production of soot, which accumulates rapidly on the wick heater during use. This formation of soot on the wick heater is concomitant with higher CO emission rates and might be linked to a number of chronic or acute CO intoxications. Simulations show that both heaters would be at the origin of NO_2 and

CO_2 concentrations close to or exceeding the health recommendations. Field measurements need to be undertaken to ascertain that the results of this study are not biased by the specific units or models we investigated and to measure the real exposure of people to the pollutants emitted by kerosene space heaters, taking into account the effective duration of use.

Acknowledgements

This work was supported by the ADEME (Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie) and the Région Nord-Pas-de-Calais. The laboratory participates in the Institut de Recherche en ENvironnement Industriel (IRENI) which is financed by the Région Nord Pas-de-Calais, the Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche, the Centre National de la Recherche Scientifique (CNRS), and European Regional Development Fund (ERDF). We thank the APPA (Association pour la Prévention de la Pollution Atmosphérique) for providing some data and the heaters tested, N. Locoge, L. Depelchin, and T. Léonardis at Ecole des Mines de Douai for the VOCs analyses, and F. Cazier at the Centre Commun de Mesure of the Université du Littoral Côte d'Opale for the GC/MS analysis of the fuels.

Supporting Information

Additional Supporting Information may be found in the online version of this article:

Table S1 VOC concentrations from the kerosene heaters (sampling time of 5 h, 6 l canister, sampling rate of 18 ml/min, air exchange rate of 6.6/h at 20°C).

Please note: Wiley-Blackwell is not responsible for the content or functionality of any supporting materials supplied by the authors. Any queries (other than missing material) should be directed to the corresponding author for the article.

References

Amitai, Y., Zlotogorski, Z., Golan-Katzav, V., Wexler, A. and Gross, D. (1998) Neuropsychological impairment from acute low-level exposure to carbon monoxide, *Arch. Neurol.*, **55**, 845–848.

Bozzelli, J.W., Kebbekus, B. and Bobenhausen, C. (1995) Analysis of selected volatile organic compounds associated with residential kerosene heater use, *Int. J. Environ. Stud.*, **49**, 125–131.

Cáceres, T., Soto, H., Lissi, E. and Cisternas, R. (1983) Indoor house pollution: appliance emissions and indoor ambient concentrations, *Atmos. Environ.*, **17**, 1009–1013.

Chambon, C. and Schadkowski, C. (2004) Diagnostic de l'impact des feux à pétrole sur le monoxyde de carbone dans les logements, Rapport APPA, Nord-Pas-de-Calais (in French), 101 pp.

Cooper, K.R. and Alberti, R.R. (1984) Effect of kerosene heater emissions on indoor air quality and pulmonary function, *Am. Rev. Respir. Dis.*, **129**, 629–631.

Kawamoto, T., Matsuno, K., Arashidani, K., Yoshikawa, M., Kayama, F. and Kodama, Y. (1993) Personal exposure to nitrogen dioxide from indoor heaters and cooking stoves, *Arch. Environ. Contam. Toxicol.*, **25**, 534–538.

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

Leaderer, B.P. (1982) Air pollutant emissions from kerosene space heaters, *Science*, **218**, 1113–1115.

Leaderer, B.P., Zagraniski, R.T., Berwick, M., Stolwijk, J.A.J. and Ma, Q. (1984) A field study of indoor air contaminant levels associated with unvented combustion sources. In: *Proceedings of the 77th Annual Meeting of the Air Pollution Control Association*, June 24–29, 1984, Paper. 84–33.3. Pollution Control Association, Pittsburgh, PA.

Leaderer, B.P., Zagraniski, R.T., Berwick, M. and Stolwijk, J.A.J. (1986) Assessment of exposure to indoor air contaminants from combustion sources: Methodology and application, *Am. J. Epidemiol.*, **124**, 275–289.

Lionel, T., Martin, J. and Brown, N.J. (1986) A comparative study of combustion in kerosene heaters, *Environ. Sci. Technol.*, **20**, 78–85.

Mumford, J.L., Williams, R.W., Walsh, D.B., Burton, R.M., Svendsgaard, D.J., Chuang, J.C., Houk, V.S. and Lewtas, J. (1991) Indoor air pollutants from unvented kerosene heater emissions in mobile homes: studies on particles, semivolatile organics, carbon monoxide, and mutagenicity, *Environ. Sci. Technol.*, **25**, 1732–1738.

Ruiz, P.A., Toro, C., Caceres, J., Lopez, G., Oyola, P. and Koutrakis, P. (2010) Effects of gas and kerosene space heaters on indoor air quality: a study in homes of Santiago, Chile, *J. Air Waste Manag. Assoc.*, **60**, 98–108.

Seaman, V.Y., Charles, M.J. and Cahill, T.M. (2006) A sensitive method for the quantification of acrolein and other volatile carbonyls in ambient air, *Anal. Chem.*, **78**, 2405–2412.

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

Tokiwa, H., Nakagawa, R., Horikawa, K. and Ohkubo, A. (1987) The nature of the mutagenicity and carcinogenicity of nitrated, aromatic compounds in the environment, *Environ. Health Perspect.*, **73**, 191–199.

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

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

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

Vernier, A., Delaunay, C., Coquet, S., Théaudin, K., Cabot, C., Girard, D., Daoudi, J. and De Bels, F. (2010) Les intoxications au CO survenues en France métropolitaine en 2006, *Bull. Epidemiol. Hebd.*, **1**, 1–5.

Walsh, M., Black, A., Morgan, A. and Crawshaw, G.H. (1977) Sorption of SO_2 by typical indoor surfaces including wool carpets, wallpaper and paint, *Atmos. Environ.*, **11**, 1107–1111.

White, J.B., Leaderer, B.P., Boone, P.M., Hammond, S.K. and Mumford, J.L. (1987) Chamber studies characterizing organic emissions from kerosene heaters.

In: *Proceedings of the 1987 EPA/APCA Symposium on Measurement of Toxic and Related Air Pollutants*, 98–103. Available at http://cfpub.epa.gov/si/si_public_record_Report.cfm?dirEntryID=40420.

WHO (2010) *WHO Guidelines for Indoor Air Quality: Selected Pollutants*, Copenhagen, World Health Organization Regional Office for Europe, 454 pp

Woodring, J.L., Duffy, T.L., Davis, J.T. and Bechtold, R.R. (1985) Measurements of combustion product emission factors of unvented kerosene heaters, *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.*, **46**, 350–356.

Yamanaka, S. (1984) Decay rates of nitrogen oxides in a typical Japanese living room, *Environ. Sci. Technol.*, **18**, 566–570.

Yamanaka, S., Hirose, H. and Takada, S. (1979) Nitrogen oxides emissions from domestic kerosene-fired and gas-fired appliances, *Atmos. Environ.*, **13**, 407–412.

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

IV.1.2. MESURES COMPLEMENTAIRES

IV.1.2.1. EVOLUTION DE LA CONSOMMATION DES POELES EN FONCTION DU TEMPS

La mesure de la perte de masse du poêle avec son carburant, entre le début et la fin de chaque essai, dans l'enceinte conduit à la consommation moyenne de carburant pendant sa durée de fonctionnement, mais elle ne permet pas de distinguer les différentes phases de chauffage.

Nous avons donc réalisé des tests complémentaires visant à mesurer la consommation instantanée des poêles lors de leur utilisation. L'évolution de la masse du poêle est suivie en fonction du temps, avec un pas de temps court (1 min) à l'allumage, pour bien caractériser le régime transitoire, notamment dans le cas du poêle à mèche. Le pas de temps est plus long (15 min) lorsque le régime de combustion stationnaire est établi. L'évolution de la consommation avec la durée de fonctionnement est représentée sur les Figures 25 et 26 dans le cas des deux poêles étudiés.

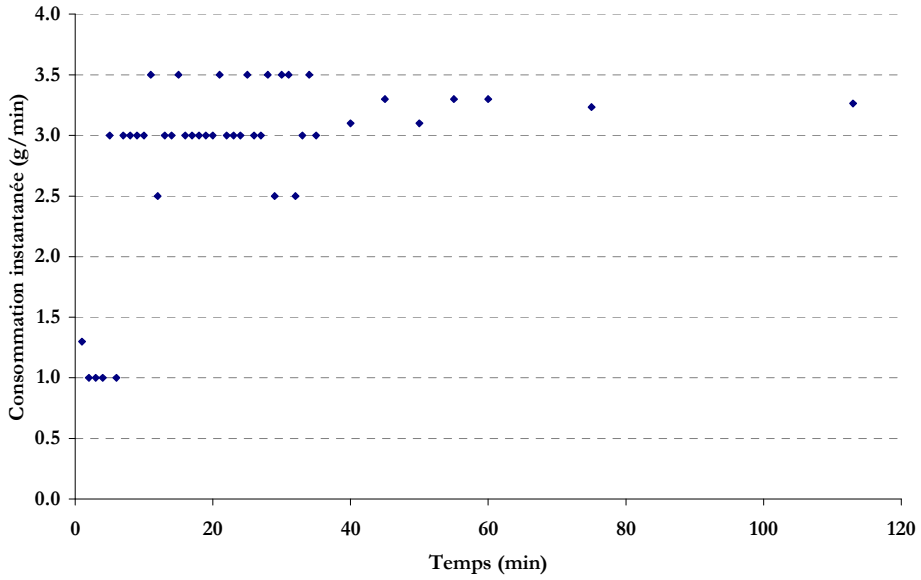


Figure 25. Evolution de la consommation du poêle à mèche pendant son fonctionnement

On constate que pendant les dix premières minutes de fonctionnement la consommation de carburant est d'environ 1 $g.min^{-1}$, soit 60 $g.h^{-1}$. Un régime stable s'établit ensuite avec une consommation de 190 $g.h^{-1}$, en accord avec nos mesures moyennes sur des périodes longues, et avec les spécifications du constructeur. Cette période transitoire correspond à l'établissement d'un régime stable de température et par suite à une imprégnation constante de la mèche en carburant. Le régime instable à l'allumage est à l'origine des émissions transitoires, notamment de CO, que nous avons observées.

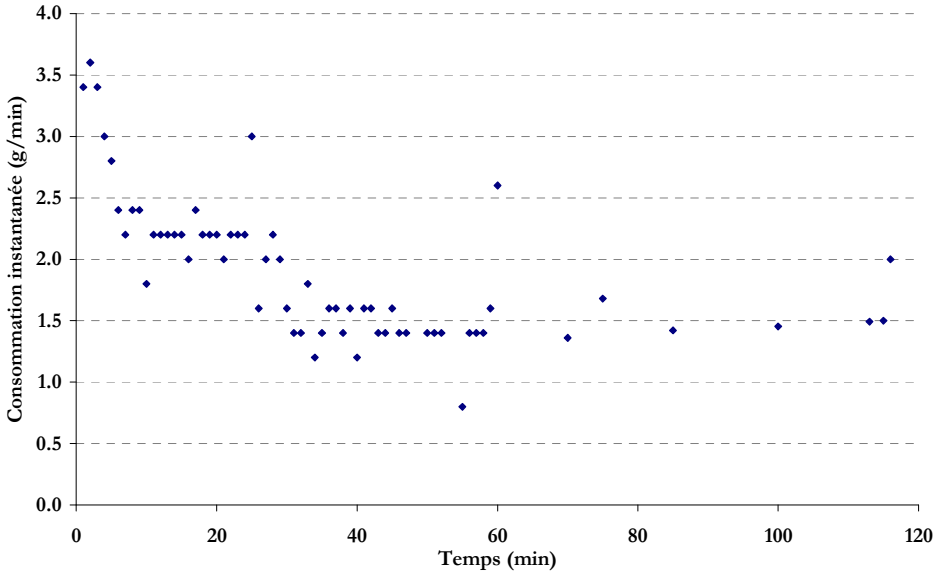


Figure 26. Evolution de la consommation du poêle électronique pendant son fonctionnement

Dans le cas du poêle électronique, l'évolution de la consommation avec le temps montre différents paliers de puissance. A l'allumage, la consommation est de 3,5 $g.min^{-1}$, soit 210 $g.h^{-1}$, en accord avec les spécifications du constructeur. La consommation est ensuite réduite à 2,2 $g.min^{-1}$ (132 $g.h^{-1}$) entre 10 et 30 minutes après l'allumage du poêle ; elle se stabilise enfin à 1,5 $g.min^{-1}$ (90 $g.h^{-1}$), valeur supérieure à la consommation minimale annoncée par le fabricant (69 $g.h^{-1}$).

IV.1.2.2. EVOLUTION DU DEBIT D'EXTRACTION AVEC LA TEMPERATURE

La température de l'enceinte augmente lors de l'utilisation des poêles à pétrole, et par suite la vitesse d'extraction des gaz, ce qui modifie à son tour le taux de renouvellement d'air. Nous avons donc réalisé des expériences spécifiques pour mesurer le taux réel de renouvellement d'air k_v pendant l'utilisation des poêles à pétrole, car c'est un paramètre critique pour le calcul des facteurs d'émission de polluants (formule (2) de la partie IV.1.1.).

La vitesse d'extraction et la température ont été mesurées au niveau du conduit d'extraction de la chambre pendant la totalité du fonctionnement des poêles. Les résultats sont reportés sur la Figure 27 pour le poêle à mèche et Figure 28 pour le poêle électronique.

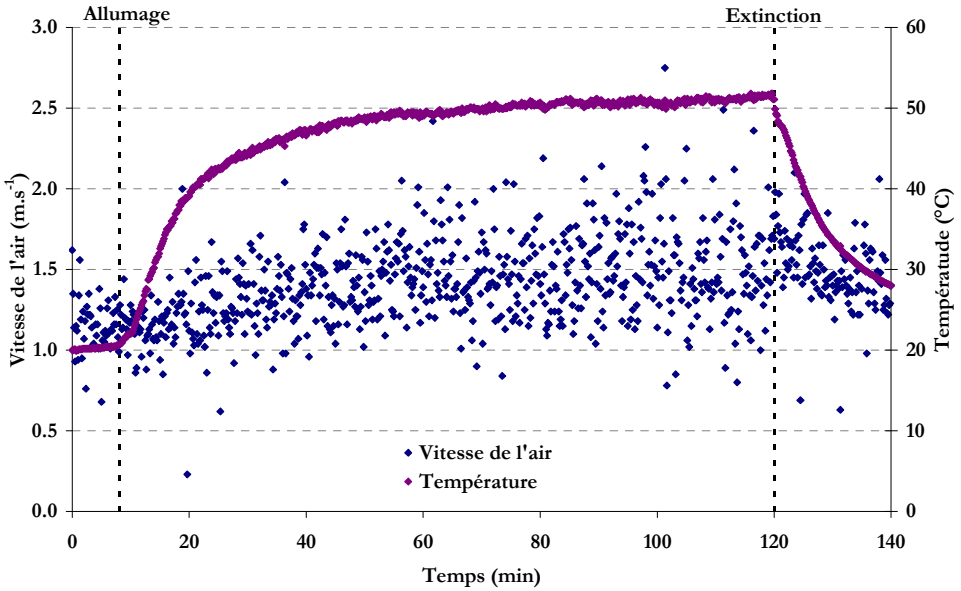


Figure 27. Evolution de la vitesse d'extraction pendant le fonctionnement du poêle à mèche

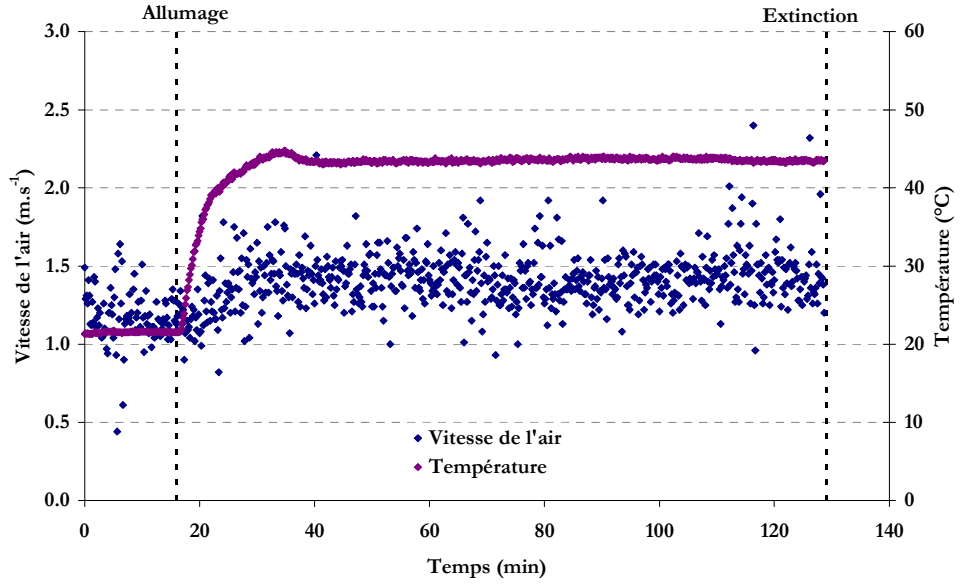


Figure 28. Evolution de la vitesse d'extraction pendant le fonctionnement du poêle électronique

On constate bien une dépendance de la vitesse d'extraction en fonction de la température atteinte dans l'enceinte, avec une plus grande dispersion des points de mesure dans le cas du poêle à mèche que pour le poêle électronique. De plus, même après deux heures de fonctionnement, la température mesurée continue d'augmenter, et probablement aussi la vitesse d'extraction. Pour le poêle à mèche, une température et une vitesse d'extraction stables sont atteintes environ 30 minutes après l'allumage du poêle. Cette stabilité, et la plus faible

dispersion des points de mesure, sont probablement liées d'une part à la régulation de température mise en œuvre, ainsi qu'à la plus faible consommation de carburant par ce poêle.

Dans le cas du poêle à mèche, la vitesse d'extraction d'air passe de 1,2 ± 0,2 m/s à 21 °C pour augmenter jusqu'à 1,5 $m.s^{-1}$ à 50 °C, qui correspond à la température des gaz brûlés au point de mesure, situé au niveau du conduit d'extraction. Nous prenons donc cette valeur de 1.5 $m.s^{-1}$ pour le calcul des facteurs d'émission en régime stationnaire. Pour le calcul du facteur d'émission de CO à l'allumage, nous avons considéré une vitesse d'extraction d'air de 1,2 $m.s^{-1}$. Pour le calcul des facteurs d'émission de composés carbonylés pendant la première heure de fonctionnement du poêle, nous avons pris une valeur de 1.3 $m.s^{-1}$.

Dans le cas du poêle électronique, les facteurs d'émission en phase 1 sont calculés avec une vitesse d'extraction de 1,4 $m.s^{-1}$, et en régime stationnaire (phase 2), avec une vitesse de 1,5 $m.s^{-1}$.

IV.1.2.3. EMISSION D'EAU

L'eau émise lors de la combustion du pétrole n'est pas un polluant *stricto sensu*. Lors de l'utilisation des poêles dans les logements, sa formation est à l'origine de problèmes d'humidité, qui peuvent favoriser la croissance de moisissures et la dégradation de l'habitat.

Les facteurs d'émission en eau ont été déterminés pour les cinq carburants et les deux poêles à pétrole étudiés en laboratoire. Les résultats sont regroupés dans le Tableau 28.

Type de poêle	Carburant	n	Moyenne ± S.D.
à mèche	PTX 2000	3	1,42 ± 0,13
	Power	6	1,29 ± 0,14
	Zibro Bio	4	1,61 ± 0,50
	Zibro Optimal	3	1,31 ± 0,01
	Pompe Auchan	3	1,56 ± 0,24
électronique	PTX 2000	6	1,52 ± 0,22
	Power	6	1,38 ± 0,33
	Zibro Bio	4	1,32 ± 0,32
	Zibro Optimal	4	1,47 ± 0,12
	Pompe Auchan	4	1,38 ± 0,23

Tableau 28. Facteurs d'émission d'eau en g par g de carburant

On constate que ni le type de poêle ni le carburant n'ont d'influence notable sur les facteurs d'émission obtenus. Ces valeurs moyennes (1,3 – 1,6 $g.g^{-1}$) sont du même ordre de grandeur que la valeur attendue de 1,4 $g.g^{-1}$ en considérant la stœchiométrie de la réaction de combustion (paragraphe III.2.5).

IV.1.3. CONCLUSION

Les produits de combustion gazeux analysés et majoritairement émis par les deux types de poêles à pétrole testés en laboratoire sont le dioxyde de carbone CO_2, l'eau H_2O, et les oxydes d'azote NO_x.

Les facteurs d'émission de NO obtenus avec le poêle à mèche sont de l'ordre de 130 $\mu g.g^{-1}$, à l'exception du carburant « bio » contenant des esters méthyliques d'huile végétale, pour lequel le facteur d'émission est de 260 $\mu g.g^{-1}$. Ces facteurs d'émission sont proches de ceux déterminés dans l'étude la plus récente [*Zhou et Cheng, 2000*], mais supérieurs de quelques dizaines de $\mu g.g^{-1}$ aux facteurs d'émissions des études antérieures [*Leaderer et al., 1982 ; Traynor et al., 1983 ; Traynor et al., 1990*]. Les facteurs d'émission de NO_2 avec le poêle à mèche sont de l'ordre de 140 $\mu g.g^{-1}$, à l'exception encore du carburant « bio » qui produit 340 μg de NO_2 par gramme de carburant consommé. Les émissions de NO_2 sont donc légèrement plus faibles que celles reportées dans les études précédentes, généralement autour de 200 $\mu g.g^{-1}$.

Les facteurs d'émission de CO en régime continu sont faibles, compris entre 1 et 4 $mg.g^{-1}$, et comparables aux facteurs d'émission déterminés dans toutes les études antérieures. Le carburant « bio » est à l'origine des émissions les plus fortes de CO. Nous avons également mesuré des facteurs d'émission de CO pendant les premiers instants de la combustion, d'environ 3 $mg.g^{-1}$. Bien que la concentration de CO et le taux de consommation de carburant soient plus importants à l'allumage du poêle, le débit d'extraction est plus faible, par conséquent, le facteur d'émission de CO est inchangé. On notera cependant que la détermination de facteurs d'émission en régime continu est rendue difficile à cause de la formation de suies lors de l'utilisation de ce poêle. La présence de suies s'accompagne d'une émission de CO, avec des facteurs d'émission mesurés proches de 15 $mg.g^{-1}$. CO proviendrait dans ce cas de l'oxydation de la suie et pas directement de la combustion du carburant. Il n'est pas possible de contrôler la quantité de suies déposée sur les parois du poêle pour reproduire correctement les conditions expérimentales et déterminer précisément des facteurs d'émission.

Seul le carburant belge est à l'origine d'émissions non négligeables de dioxyde de soufre SO_2, avec un facteur d'émission d'environ 230 $\mu g.g^{-1}$. Ces émissions restent cependant bien inférieures aux valeurs déterminées lors de toutes les études antérieures, où elles étaient comprises entre 700 et 2000 $\mu g.g^{-1}$. Ceci démontre bien l'importance de la désulfurisation du carburant.

Dans le cas du poêle électronique, les facteurs d'émission de chacun des polluants sont similaires, quel que soit le carburant utilisé, sauf en ce qui concerne les émissions de SO_2 lorsque le carburant belge est utilisé. On n'observe peu de différences entre les deux phases de fonctionnement de ce poêle. Ces émissions sont de l'ordre de 250 à 500 $\mu g.g^{-1}$ pour NO et NO_2, de 0,1 à 0,6 $mg.g^{-1}$ pour CO en régime continu, et de l'ordre de 1 $mg.g^{-1}$ pour CO à l'allumage. A notre connaissance, il n'y a pas dans la littérature d'études antérieures sur le fonctionnement de ce type de poêle pour comparer nos mesures.

Parmi les composés carbonylés émis, seul le formaldéhyde, l'acétaldéhyde et l'acétone ont été détectés et quantifiés. Leurs facteurs d'émission font apparaître une large dispersion, particulièrement pour l'acétone émise lors de l'utilisation du carburant Power belge. Les facteurs d'émission de formaldéhyde du poêle à mèche et du poêle électronique étudiés au laboratoire sont respectivement de l'ordre de 15 et 8 $\mu g.g^{-1}$. Ces valeurs sont supérieures à celles rapportées par Cáceres et al. [*1983*] ; elles sont similaires aux mesures de Woodring et al. [*1985*], de l'ordre de 20 $\mu g.g^{-1}$, et elles sont inférieures aux résultats de Traynor et al. [*1983*] entre 40 et 270 $\mu g.g^{-1}$. Parmi les COV, on note à l'allumage des poêles une émission transitoire de benzène notamment, de l'ordre de 100 $\mu g.g^{-1}$.

Nous avons donc montré que :

- en général, le carburant utilisé, et en particulier son degré de désaromatisation, n'est pas un facteur influençant de façon notable les émissions.

- une exception concerne le carburant vendu en Belgique, qui ne répond pas aux normes françaises de désulfurisation, et qui est à l'origine d'émissions importantes de SO_2.

- une autre exception concerne le carburant Zibro Bio qui contient des esters méthyliques d'acides gras. Lors de son utilisation avec le poêle à mèche, on constate une augmentation d'un facteur 2 des émissions de NO_x et de CO. Ce carburant n'a en revanche aucune influence sur les facteurs d'émission du poêle électronique. Nous n'avons pas trouvé d'explication à ce phénomène, qui mériterait d'être approfondi.

- le facteur d'émission de NO_x du poêle électronique est supérieur à celui du poêle à mèche. Inversement, le poêle à mèche a un facteur d'émission de CO supérieur à celui du poêle électronique.

- lors de l'utilisation du poêle à mèche, on constate la formation de suies qui se déposent sur les parois du poêle. Ce dépôt de suies s'accompagne d'émissions importantes de CO. Ce phénomène peut probablement expliquer les intoxications oxycarbonées aigües et chroniques au monoxyde de carbone, et pourrait constituer une piste de prévention.

- enfin, nous ne savons pas dans quelle mesure les résultats obtenus avec les deux poêles utilisés dans notre étude peuvent être généralisés à d'autres modèles.

IV.2. EMISSION DE PARTICULES

Les résultats concernant l'étude des particules émises par les poêles à pétrole ont été présentés lors des Journées techniques RSEIN/OQAI, organisées à Villeneuve d'Ascq par le PC2A, l'INERIS (Institut National de l'EnviRonnement Industriel et des riSques), l'OQAI (Observatoire de la Qualité de l'Air Intérieur) et l'APPA les 22 et 23 novembre 2010. Les actes de cette communication sont présentés dans cette partie.

IV.2.1. RESULTATS

Les particules fines (diamètre aérodynamique compris entre 15 et 700 nm) analysées par SMPS, à proximité immédiate du poêle à mèche, ont des diamètres aérodynamiques majoritairement compris entre 15 et 30 nm, et une concentration massique maximale à l'allumage et l'extinction pour un diamètre de 300 nm.

Les mesures de particules de diamètre optique compris entre 0,3 et 10 μm ont été réalisées dans une pièce de 80 m^3, à 3 m du poêle à mèche. Ces mesures ne permettent pas de conclure quant à une production particulaire, dans cette gamme de taille, par le poêle à pétrole à mèche. Elles ont par contre mis en évidence que la présence du manipulateur, lors de l'installation du matériel, est à l'origine de la remise en suspension des poussières, ce qui perturbe les mesures. Les conditions expérimentales de laboratoire ne permettent donc pas de reproduire les conditions réelles d'exposition des utilisateurs de poêles à pétrole, et ces mesures n'ont donc pas été poursuivies.

Plus de détails figurent dans les actes publiés par RSEIN et présents ci-après.

Session : Sources d'émission

Émissions de particules par les chauffages d'appoint à pétrole

Marion Carteret, Benjamin Hanoune, Jean-François Pauwels

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

Contexte

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

Objectif

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

Matériel et méthodes

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

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

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

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

Résultats

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

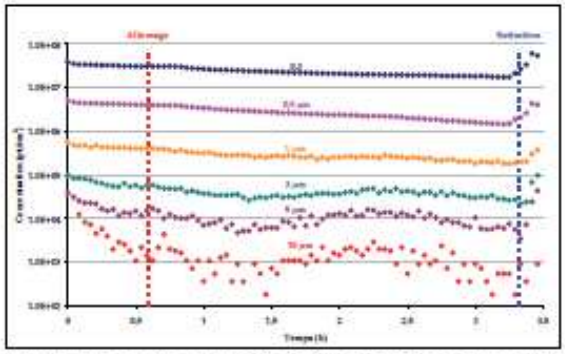


Figure 1. Emissions de particules (0,3 à 10 µm) lors du fonctionnement du poêle à mèche

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

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

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

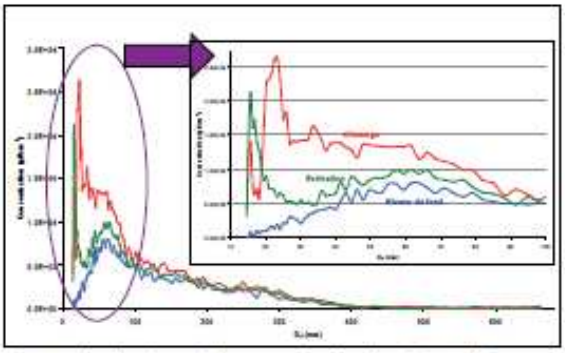


Figure 2. Nombre de particules par cm³ en fonction de leur taille.

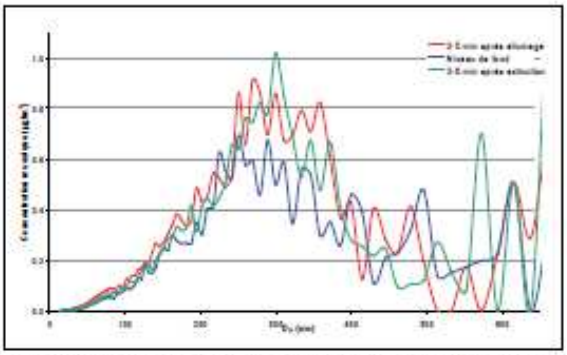


Figure 3. Concentrations massiques en fonction du diamètre des particules.

L'évolution temporelle des concentrations massiques (Figure 3) pour les particules de diamètre compris entre 15 et 700 nm montre qu'il existe une augmentation de production de particules lors de l'allumage et de l'extinction du chauffage à pétrole. Etant donné les conditions expérimentales (ventilation non contrôlée, particules assimilées à du carbone graphite…), nous ne pouvons pas comparer nos données avec les recommandations de l'OMS pour les $PM_{2,5}$ qui sont de 10 µg.m^{-3} en moyenne annuelle et 25 µg.m^{-3} sur 24 h (Directive 1999/30/CE). Néanmoins, nos concentrations massiques calculées sont déjà supérieures à 20 µg/m³ si on assimile les particules à du carbone, et toujours supérieures à 10 µg/m³ si on inclut du sulfate (Leaderer, 1999). Il sera nécessaire par la suite d'évaluer l'impact sur les tailles de particules mesurées de la distance entre la source et le point de prélèvement, autrement dit vérifier le phénomène de coagulation.

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

Des tests en chambre environnementale (8 m³, taux de renouvellement d'air fixé à 6 h^{-1}) ont été réalisés avec le poêle à mèche et divers carburants. Les concentrations en oxydes d'azote sont mesurées avec un analyseur à chimiluminescence (NOx 2000, SERES), et le monoxyde de carbone avec un analyseur à infrarouge (CO 11 M, Environnement S.A.). Les composés carbonylés sont prélevés sur cartouche DNPH (cartouche Supelco LpDNPH S10, Sigma-Aldrich) et sont analysés par HPLC-UV. La température, l'humidité relative et le CO_2 sont mesurés grâce à une sonde portable (HD37B17D, ATC Mesures). Les COV sont prélevés par canisters (6 L, 18 mL/min) et tubes Tenax (20 min, 2 L/min). Les mesures ont été réalisées en l'absence et en présence de suies sur la grille extérieure et au-dessus du brûleur du poêle.

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

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

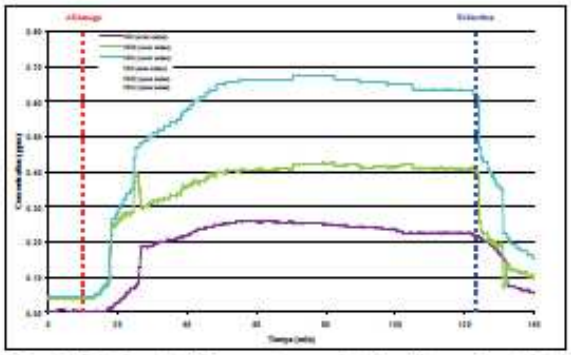


Figure 4. Emissions de NO_x avec et sans suies (Chauffage radiant, Zibro Bio, 6h^{-1})

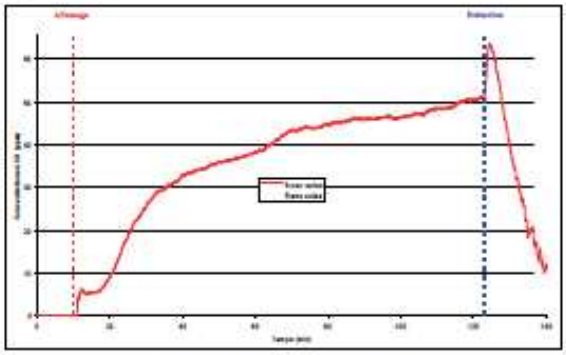


Figure 5. Emissions de monoxyde de carbone avec et sans suies (Chauffage radiant, Zibro Bio, 6 h^{-1})

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

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

Conclusion

On ne sait pas encore si la présence de suies est un indicateur de la présence significative d'autres composés que NO_2, CO et formaldéhyde. Des prélèvements de suies ont été effectués sur filtre quartz pour des analyses ultérieures. Nous souhaitons par la suite déterminer la nature des particules prélevées et des composants adsorbés pour compléter notre évaluation de l'exposition des utilisateurs aux polluants issus des poêles à pétrole.

De façon générale, peu d'évolution est observée entre les émissions polluantes mesurées il y a 30 ans et celles d'aujourd'hui, si ce n'est la diminution des émissions de SO_2, conséquence de la désulfurisation des carburants (Traynor, 1982).

Références bibliographiques

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

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

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

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

Leaderer B.P., Naeher L., Jankun T., Balenger K., Holford T.R., Toth C., Sullivan J., Wolfson J.M. and Koutrakis P. (1999). Indoor, outdoor, and regional summer and winter concentrations of PM_{10}, $PM_{2.5}$, SO_4^{2-}, H^+, NH_4^+, NO^3, NH_3, and nitrous acid in homes with and without kerosene space heaters. Environ. Health Perspect, 107(3) : 223-231.

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

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

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

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

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

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

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

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

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

Des analyses complémentaires de particules émises par le poêle à mèche, alimenté par le carburant Zibro Bio ont été réalisées. La durée habituelle des tests réalisés en laboratoire (environ 2 h) s'est révélée insuffisante pour la détection des Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP) dans les suies. Un prélèvement de particules sur filtre de quartz a donc été réalisé pendant 10 h 30 environ (2 $L.min^{-1}$) sur deux jours de manipulation.

L'analyse de l'échantillon collecté (2,4 mg de particules) a été faite au Centre Commun de Mesures de Dunkerque, par chromatographie en phase gazeuse avec détection par spectrométrie de masse. Cette analyse qualitative a révélé la présence 8 HAP parmi les 16 prioritaires [1] définis par l'Environment Protection Agency (EPA), dont certains ont été détectés dans d'autres études (Tableau 29).

Naphtalène	[*Keyanpour-Rad, 2004*]
Acénaphtylène	[*Mumford et al., 1991; Ruiz et al., 2010*]
Phénanthrène	[*Ragland et al., 1985; Keyanpour-Rad, 2004; Ruiz et al., 2010*]
Fluoranthène	[*Ruiz et al., 2010*]
Pyrène	[*Ragland et al., 1985*]
Chrysène	[*Ragland et al., 1985; Mumford et al., 1991; Keyanpour-Rad, 2004*]
indéno[1,2,3-c,d]pyrène	[*Mumford et al., 1991; Ruiz et al., 2010*]
benzo[g,h,i]pérylène	[*Ragland et al., 1985; Mumford et al., 1991; Ruiz et al., 2010*]

Tableau 29. HAP identifiés dans les émissions du poêle à mèche avec le carburant Zibro Bio

Le benzo(a)pyrène, particulièrement problématique, n'a pas été décelé dans l'échantillon, contrairement aux résultats de Mumford et al. [*1991*]. En l'absence d'information sur le volume d'air échantillonné par Mumford et al., il ne nous est pas possible de comparer nos résultats avec les données publiées, ni d'en tirer des conclusions quant à l'émission de ce composé dans nos conditions.

IV.2.2. DISCUSSION ET CONCLUSION

Nous avons mis en évidence que, lors de leur fonctionnement, les poêles à pétrole produisent des particules fines et des HAP, qu'il ne nous est pas possible de quantifier pour l'instant. La mesure des particules ultrafines émises à l'allumage et à l'extinction du poêle à mèche indique une production de particules de diamètre aérodynamique majoritaire compris entre 15 et 30 nm. De plus, la mesure des particules, de diamètre optique compris entre 0,3 et 10 μm, a révélé une augmentation du nombre de particules de diamètre supérieur à 3 μm après une heure de fonctionnement du poêle à mèche, cela laisse supposer qu'il se produit un phénomène de coagulation de particules plus petites, ou bien provenant directement du poêle.

[1] Naphtalène, Acénaphtylène, Acénaphtène, Fluorène, Anthracène, Phénanthrène, Fluoranthène, Pyrène, Benzo(a)anthracène, Chrysène, Benzo(a)pyrène, Benzo(b)fluoranthène, Dibenzo(ah)anthracène, Benzo(k)fluoranthène, Benzo(ghi)pérylène, Indeno(1,2,3-cd)pyrène.

L'étude de ces émissions particulaires (initialement non prévue dans le cadre de ce travail) constitue une problématique nouvelle dans notre équipe. Elle est délicate à mettre en oeuvre en raison de nombreux paramètres influents : remise en suspension des particules dans l'air par les mouvements des expérimentateurs, teneur en particules du niveau de fond, présence d'autres sources de particules, coagulation particulaire, vieillissement des particules d'aérosols, etc. Concernant ces deux derniers points, l'enceinte expérimentale conçue pour l'étude des polluants gazeux n'est pas adaptée car les conditions de température, d'humidité ou de vitesse d'air ne sont pas représentatives des environnements réels, et le devenir des particules émises est certainement modifié. La caractérisation des particules inhalées par les utilisateurs de poêles à pétrole ne peut donc se faire que sur le terrain.

IV.3. CONCLUSION

Les produits de combustion gazeux majoritairement émis par les deux types de poêles à pétrole testés en laboratoire sont le dioxyde de carbone CO_2, l'eau H_2O et les oxydes d'azote NO_x.

Les facteurs d'émission de NO obtenus avec le poêle à mèche sont de l'ordre de 130 $\mu g.g^{-1}$; ils sont proches de ceux déterminés dans l'étude la plus récente [*Zhou et Cheng, 2000*], mais supérieurs de quelques dizaines de $\mu g.g^{-1}$ aux facteurs d'émission des études antérieures. Les facteurs d'émissions de NO_2 obtenus avec le poêle à mèche sont de l'ordre de 140 $\mu g.g^{-1}$ légèrement plus faibles que celles reportées lors d'études précédentes, généralement autour de 200 $\mu g.g^{-1}$. Ces changements de facteurs d'émission de NO_x peuvent provenir de l'évolution, depuis les années 1980, aussi bien des carburants que de la technologie des poêles.

Les facteurs d'émission de CO du poêle à mèche en régime continu sont faibles (1 à 4 $mg.g^{-1}$) et comparables aux facteurs d'émission déterminés lors de toutes les études antérieures. L'accumulation de suies au-dessus du brûleur lors de l'utilisation du poêle à mèche s'accompagne d'une émission plus importante de CO, qui provient dans ce cas de l'oxydation de la suie plutôt que de la combustion du carburant.

Seul le carburant belge est à l'origine d'émissions non négligeables de dioxyde de soufre SO_2, avec un facteur d'émission d'environ 230 $\mu g.g^{-1}$. Ces émissions restent cependant bien inférieures aux valeurs déterminées lors de toutes les études antérieures, généralement comprises entre 700 et 2000 $\mu g.g^{-1}$. Ceci démontre bien l'importance de la désulfurisation du carburant.

Dans le cas du poêle électronique, les facteurs d'émission de chacun des polluants principaux sont similaires quel que soit le carburant utilisé (NO : 390 $mg.g^{-1}$, NO_2 : 400 $mg.g^{-1}$, CO : 0,5 $mg.g^{-1}$, CO_2 : 3041 $mg.g^{-1}$). A notre connaissance, il n'y a pas dans la littérature d'études antérieures sur le fonctionnement de ce type de poêle pour comparer nos mesures.

Les facteurs d'émission de formaldéhyde du poêle à mèche et du poêle électronique sont respectivement de l'ordre de 15 et 8 $\mu g.g^{-1}$. Ces valeurs sont supérieures à celles rapportées par Cáceres et al. [*1983*] ; elles sont similaires aux mesures de Woodring et al. [*1985*], de l'ordre de 20 $\mu g.g^{-1}$, et elles sont inférieures aux résultats de Traynor et al. [*1983*] entre 40 et 270 $\mu g.g^{-1}$. Parmi les COV, on note à l'allumage des poêles une émission transitoire de benzène notamment, de l'ordre de 100 $\mu g.g^{-1}$.

Le carburant contenant des esters méthyliques d'acides gras utilisé avec le poêle à mèche induit des facteurs d'émission de NO_x deux fois plus importants que les autres carburants. Ce carburant n'a pas d'effet particulier lorsqu'il est utilisé avec le poêle à injection. L'inadéquation de ce carburant avec le poêle à mèche reste à expliquer.

En plus des polluants gazeux, les poêles à pétrole produisent des particules fines, en particulier avec un diamètre entre 15 et 30 nm, et des HAP. Il ne nous est pas possible de quantifier ces émissions, notre dispositif expérimental n'étant pas adapté à leur quantification.

Le type de poêle à pétrole et la composition du carburant (notamment sa teneur en soufre et en esters méthyliques d'acides gras) influencent donc les émissions des polluants. L'entretien du poêle à mèche joue un rôle important dans les émissions de CO. Ces paramètres seront à prendre en compte dans les modèles visant à évaluer l'exposition des personnes aux polluants issus des poêles à pétrole. Une étude de terrain, où devront être quantifiés les NO_x, CO, COV et les particules, reste nécessaire pour tenir compte des différences observées entre poêles et carburants, ainsi que des habitudes d'utilisation.

Cáceres T., Soto H., Lissi E. and Cisternas R. (1983). Indoor house pollution : appliance emissions and indoor ambient concentrations. *Atm. Environ.*, 17(5) : 1009-1013.

Keyanpour-Rad M. (2004). Toxic organic pollutants from kerosene space heaters in Iran. *Inhalation Toxicology*, 16 : 155-157.

Leaderer B.P. (1982). Air pollutant emissions from kerosene space heaters. *Science*, 218 : 1113-1115.

Mumford J.L., Williams R.W., Walsh D.B., Burton R.M., Svendsgaard D.J., Chuang J.C., Houk V.S. and Lewtas J. (1991). Indoor air pollutants from unvented kerosene heater emissions in mobile homes : studies on particles, semivolatile organics, carbon monoxide, and mutagenicity. *Environ. Sci. Technol.*, 25 : 1732-1738.

Ragland K.W., Andren A.W. and Manchester J.B. (1985). Emissions from unvented kerosene heaters. *The Science of the Total Environment*, 46 : 171-179.

Ruiz P.A., Toro C., Caceres J., Lopez G., Oyola P. and Koutrakis P. (2010). Effects of gas and kerosene space heaters on indoor air quality: A study in homes of Santiago, Chile. *J. Air & Waste Manage. Assoc.* 60 : 98-108.

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

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

Woodring J.L., Duffy T.L., Davis J.T. and Bechtold R.R. (1985). Measurements of combustion product emission factors of unvented kerosene heaters. *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.,* 46(7) : 350-356.

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

CHAPITRE V

ETUDE DES EMISSIONS DE POELES A PETROLE EN AIR INTERIEUR – CAMPAGNE DE MESURES

Les mesures en laboratoire nous ont permis de caractériser les principaux polluants émis par les poêles à pétrole, polluants qui seront donc recherchés lors des campagnes de mesures sur le terrain. Ces mesures visent à évaluer l'exposition effective des personnes aux polluants émis par ces appareils de chauffage. Nous avons donc mis en place une campagne de mesures pilote chez des volontaires, en collaboration avec l'APPA (Association pour la Prévention de la Pollution Atmosphérique). Les objectifs de cette campagne sont multiples. Il s'agit d'une part de vérifier que nos résultats de laboratoire sur deux poêles spécifiques et avec quelques carburants sont bien cohérents, et d'autre part de préparer une campagne de mesures à plus grande échelle sur la santé respiratoire.

Pour une campagne de terrain, il n'est pas possible d'utiliser le même matériel expérimental qu'en laboratoire, pour des raisons d'encombrement, de bruit, de consommation électrique, de simplicité, d'intégrité du matériel… L'analyse de certains polluants passe donc nécessairement par des prélèvements de type passif. D'autre part il est nécessaire de mettre au point une série de questionnaires prenant en compte les caractéristiques du logement et les activités des occupants lors des mesures. Ce chapitre présente les instruments de mesure et les protocoles d'analyse associés. En plus des mesures de CO et de paramètres environnementaux (CO_2, température et humidité relative), nous utilisons trois types de badges passifs, spécifiques aux oxydes d'azote (Ogawa), aux COV (G.A.B.I.E.™, Arelco) et au formaldéhyde (UME^x 100, Arelco). Les outils méthodologiques (fiches et questionnaires) mis au point pour cette étude spécifique sont ensuite présentés. Il s'agit des fiches et protocoles qui ont été établis et améliorés, notamment lors d'une première série de mesures de 15 jours chez le premier volontaire H00, ainsi que tout au long de la campagne pilote. Les résultats des prélèvements chez six utilisateurs de poêles à pétrole sont ensuite présentés.

V.1. MATERIEL SPECIFIQUE POUR LA CAMPAGNE DE MESURE

Des mesures de paramètres environnementaux (CO_2, température et humidité relative), ainsi que du monoxyde de carbone CO sont effectuées chez des utilisateurs de poêles à pétrole. Pour la mesure de polluants spécifiques, nous avons mis au point en laboratoire des protocoles de prélèvement et d'analyse. Le but est de vérifier l'adéquation des badges de prélèvement passif avec notre application, c'est-à-dire des mesures sur le terrain avec des températures, des humidités relatives, des vitesses d'air, des temps de prélèvement et des concentrations différents de ceux en laboratoire.

V.1.1. MESURE EN CONTINU DU MONOXYDE ET DU DIOXYDE DE CARBONE, DE L'HUMIDITE ET DE LA TEMPERATURE

Le monoxyde de carbone est mesuré à l'aide d'un appareil portable à cellule électrochimique Dräger Pack III (Drägerwerk AG & Co., Allemagne), permettant la mesure de concentrations de CO comprises entre 0 et 2000 ppm, avec une résolution de 1 ppm et une précision de 1 ppm. L'appareil a été étalonné avant la campagne de mesures.

Le dioxyde de carbone, l'humidité relative et la température sont mesurés à l'aide d'une sonde environnementale (HD37B17D, ATC Mesures, France) non ré-étalonnée, possédant les caractéristiques suivantes :

Température mesurable entre - 40 °C et + 60 °C ;
- résolution : 0,1 °C ;
- précision : ± 0,2 °C + 0,15 % de la mesure ;
- capteur NTC 10 kΩ.

Humidité relative entre 0 et 100 % ;
- résolution : 0,1 % ;
- précision : ± 2 % ;
- capteur capacitif.

Concentration de CO_2 entre 0 et 5000 ppm ;
- résolution : 1 ppm ;
- précision : ± 50 ppm + 3 % de la mesure ;
- capteur NDIR.

Ces deux instruments enregistrent les données en continu, avec un pas de temps de 1 minute. Les données sont ensuite récupérées et analysées sur micro ordinateur.

V.1.2. ECHANTILLONNAGE PASSIF

V.1.2.1. PRINCIPE DU PRELEVEMENT PASSIF

Le prélèvement passif d'un polluant dans l'air est basé sur le gradient de concentration qui existe entre l'air et l'adsorbant. Il est décrit par la première loi de Fick[1] [*Górecki et Namieśnik, 2002*]. La quantité d'analyte transférée M (en mol) pendant le temps t (en s) est donnée par la relation suivante :

$$M = U \cdot t = \frac{D \cdot A}{L} \cdot c_0 \cdot t = SR \cdot c_0 \cdot t$$

où U est le taux de transport diffusif (en $mol.s^{-1}$), D le coefficient de diffusion molaire de l'analyte (en $cm^2.s^{-1}$), A la section efficace du faisceau de diffusion (en cm^2), L la longueur du faisceau de diffusion (en cm), SR le taux d'échantillonnage (en $cm^{-3}.s^{-1}$) et c_0 la concentration de l'analyte dans l'air (en $mol.cm^{-3}$).

Le badge de prélèvement doit remplir plusieurs critères : (i) Il ne doit pas relarguer l'analyte piégé, même si la concentration de polluant cible dans l'air environnant du badge tend vers zéro, (ii) le taux d'échantillonnage de la phase adsorbante doit rester constant pendant la durée du prélèvement [*Górecki et Namieśnik, 2002*]. Dans ces conditions, si on connaît le taux d'échantillonnage, il est possible d'en déduire la concentration moyenne de l'analyte pendant la durée d'échantillonnage.

Un taux d'échantillonnage constant est le plus souvent assuré grâce à une barrière physique entre l'air et la phase adsorbante, ce qui permet de minimiser les effets de paramètres externes tels que la vitesse du vent à la surface de l'adsorbant, la température ou l'humidité relative. Cette barrière est de type diffusif ou perméable (Figure 29).

[1] Le flux de diffusion est proportionnel au gradient de concentration.

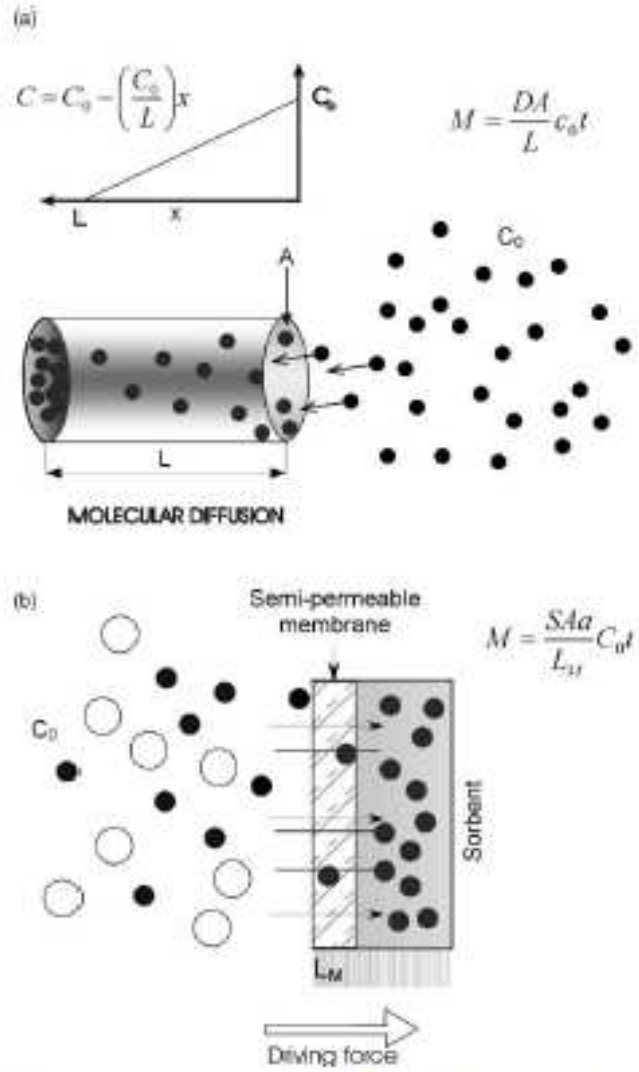


Fig. 1. Schematic diagrams of: (a) tube-type diffusion sampler, and (b) badge-type permeation sampler.

Figure 29. Schémas de principe d'échantillonneurs de type diffusif (a) et à perméation (b) [Górecki et Namieśnik, 2002]
M est la quantité d'analyte transférée (en mol) pendant le temps t (en s), D le coefficient de diffusion molaire de l'analyte (en $cm^2.s^{-1}$), A la section efficace du faisceau de diffusion (en cm^2), L la longueur du faisceau de diffusion (en cm), c_0 la concentration de l'analyte dans l'air (en $mol.cm^{-3}$), L_M l'épaisseur de la membrane (en cm), S le coefficient de perméabilité de l'analyte (en $cm^2.min^{-1}$), et a une constante.

Pour un polluant donné plusieurs paramètres sont à prendre en compte lors du choix d'un type de prélèvement passif. La réponse de l'échantillonneur doit être linéaire pour différentes concentrations d'analyte. La réponse de l'adsorbant au polluant doit être spécifique et d'autres composés chimiques présents dans l'air ne doivent pas être une source d'interférences. Les effets de la turbulence de l'air sur l'échantillonneur doivent être pris en considération. La corrélation/comparaison entre l'échantillonneur passif et une méthode de mesure active doit être appropriée [*Krupa et Legge, 2000*]. Les paragraphes suivants présentent les trois badges (de type diffusif) que nous utilisons pour les mesures de terrain.

V.1.2.2. PRELEVEMENT D'OXYDES D'AZOTE PAR BADGE OGAWA

Dans notre étude, le prélèvement des oxydes d'azote (NO_x et NO_2) est effectué avec des badges passifs Ogawa, en raison de leur faible coût et de la simplicité de l'analyse. Ce choix a été fait sur la base de l'étude « Sentinelle de l'air » menée en Région Nord-Pas-de-Calais [*Schadkowski, 2003*], mais beaucoup d'autres systèmes de prélèvement passif des NO_x existent (tube Radiello®, tube de Palmes, tube Passam, etc.).

Le principe du badge Ogawa est expliqué dans le paragraphe suivant.

V.1.2.2.1. Présentation du badge Ogawa

Cet échantillonneur diffusif (Figure 30), commercialisé par la société Ogawa & Co. (Etats-Unis), est un badge à double face qui permet la mesure simultanée de NO_2 et des NO_x. Il est cylindrique et comprend deux chambres, chacune contenant un filtre enduit d'un adsorbant spécifique, placé entre deux grilles. Le filtre spécifique à NO_2 est en fibres de cellulose recouvertes de triéthanolamine (TEA), et celui spécifique aux NO_x est en fibres de cellulose recouvertes de TEA et de 2-phényl-4,4,5,5-tétraméthylimidazoline-3-oxyde-1-oxyle (PTIO). Le filtre enduit de PTIO permet l'oxydation de NO en NO_2. Glasius et al. [*1999*] ont proposé un mécanisme réactionnel entre le dioxyde d'azote et la TEA :

$$2\,NO_2 + N\left(CH_2CH_2OH\right)_3 + 2\,OH^- \rightarrow 2\,NO_2^- + {}^-O{-}{}^+N\left(CH_2CH_2OH\right)_3 + H_2O$$

La mesure du NO s'obtient par la différence des niveaux de NO_x et NO_2. Il est possible de n'utiliser qu'un seul filtre lorsqu'on ne souhaite mesurer que le dioxyde d'azote.

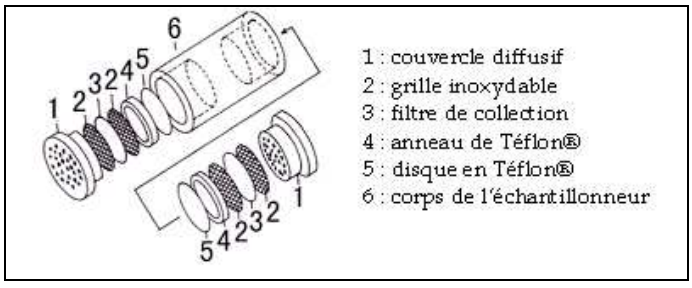


Figure 30. Vue éclatée d'un badge passif Ogawa NO_x/NO_2

Les filtres sont récupérés après exposition et analysés selon le protocole présenté dans l'Annexe 3. On utilise pour ceci un réactif de Griess [*Griess, 1879*], qui consiste en un réactif de coloration composé de sulfanilamide et de N-(1-naphtyl)-éthylènediamine (NEDA). Le sulfanilamide réagit avec l'ion nitrite (formé lors de l'immersion des filtres dans l'eau distillée, Figure 31), pour former de l'eau et un intermédiaire réactionnel (espèce aromatique

nucléophile) qui va se combiner avec la NEDA pour former un composé azo, de couleur intense, détecté par spectrophotométrie à 545 nm.

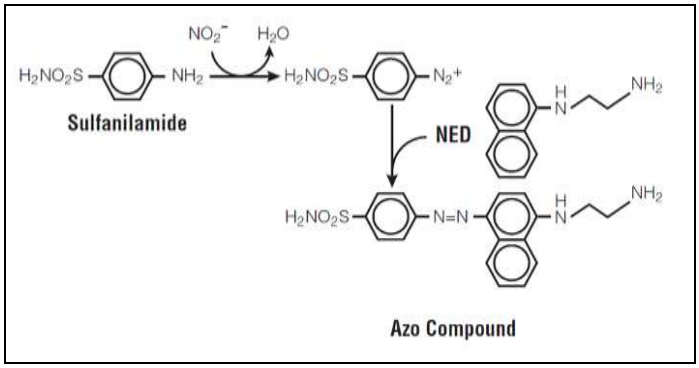


Figure 31. Réaction chimique utilisée pour la mesure des nitrites utilisant le système réactif de Griess

V.1.2.2.2. Essais en laboratoire

Ogawa & Co. préconise l'emploi des badges pour des durées d'échantillonnage comprises entre 1 et 7 jours. Cependant lorsque les concentrations sont faibles, l'exposition du badge peut durer un mois. Les concentrations mesurables en 24 h sont comprises entre 0 et 25 ppm et entre 0 et 3,6 ppm sur une semaine. La limite de détection est de 2,3 ppb sur 24 h et de 0,3 ppb sur une semaine. Le prélèvement est optimal pour une température comprise entre – 10 °C et + 40 °C, et pour une humidité relative comprise entre 50 et 80 % [*Yu et al., 2008*].

Parallèlement aux mesures faites chez les volontaires lors de la campagne de mesures pilote, nous avons souhaité tester les badges Ogawa dans notre local expérimental. Les concentrations mesurées pendant 2 à 3 heures dans l'enceinte par badges passifs et par l'analyseur à chimiluminescence (Seres Model NOx 2000) sont comparées. Pour cela, nous avons calculé une concentration moyenne d'oxydes d'azote, avec les données fournies par l'analyseur, sur la durée d'exposition des badges. L'écart relatif ER entre la concentration donnée par le badge $[NO_x]_{Ogawa}$ et la valeur moyenne calculée à partir des mesures de l'analyseur $[NO_x]_{Analyseur}$ a été calculé pour chaque essai. Les résultats figurent en Annexe 4.

Le changement de lot de badges spécifiques à NO_2, la ventilation et le temps de prélèvement (compris entre 1 h et 3 h 30) n'ont pas d'influence sur les écarts relatifs calculés. Néanmoins, ceux-ci sont très variables d'une manipulation à l'autre (écarts relatifs globalement compris entre 1 et 70 %, avec une moyenne à 37 % et un écart-type de 18 %). Les badges Ogawa spécifiques aux NO_x ne conduisent qu'à une approximation des concentrations dans notre local expérimental.

Il est probable que nos conditions d'utilisation en laboratoire ne soient pas adaptées à l'emploi de ce type de badges passifs, particulièrement en raison de températures importantes dans l'enceinte et des conditions d'humidité [*Hafkenscheid, 2009*]. Les caractéristiques de la chambre expérimentale ne sont en effet pas les mêmes qu'en habitation (température, humidité relative, concentration, durée d'exposition…). Ces tests effectués au laboratoire montrent que l'enceinte environnementale n'est pas adaptée à la validation de badges passifs, en raison de la forte ventilation, de la température trop élevée pendant le fonctionnement du poêle à pétrole et de l'humidité relative trop faible. En revanche, nous rapportons dans les paragraphes suivants des résultats de validation trouvés dans la littérature nous ayant décidés à utiliser ces badges pour les mesures de NO_x chez les utilisateurs de poêles à pétrole.

Une étude d'intercomparaison a été menée par Buzica et al [*2003*]. Les badges Ogawa ont été exposés, d'une part dans des conditions contrôlées (Tableau 30) et d'autre part en air extérieur, sur deux sites différents : Genevilliers et Fontainebleau.

Paramètres	**Niveau haut**	**Niveau bas**
Durée d'exposition (jours)	7	14
Concentration ($\mu g.m^{-3}$)	80	40
Vitesse de vent ($m.s^{-1}$)	2,5	1,0
Température (°C)	25	5
Humidité relative (%)	75	30

Tableau 30. Paramètres d'exposition des badges Ogawa en laboratoire

Les résultats obtenus sont présentés dans le Tableau 31. Excepté le résultat du laboratoire niveau haut, les concentrations mesurées par badges Ogawa sont comparables à celles de la méthode de référence (chimiluminescence). Cette aberration peut s'expliquer par l'absence du couvercle de protection des badges, induisant une grande dispersion des résultats.

Lieu d'exposition	**Méthode chimiluminescence ($\mu g.m^{-3}$)**	**Méthode Ogawa ($\mu g.m^{-3}$)**	**Ratio**
Labo niveau haut	76,8	132 ± 19	1,72
Labo niveau bas	43,5	46,4 ± 2,6	1,07
Genevilliers	41,6	41,4 ± 0,9	1,00
Fontainebleau	14,1	14,8 ± 3,1	1,05

Tableau 31. Résultats d'analyse de NO_2 [Buzica et al., 2003]

Un bon accord a été trouvé entre les niveaux de concentration de NO_2 mesurés par les badges Ogawa et les mesures d'analyseurs à chimiluminescence lors de deux études de terrain réalisées au Texas : Mukerjee et al. [*2004*] ont trouvé une relation linéaire entre ces mesures, réalisées avec des durées d'échantillonnage comprises entre 3 et 7 jours (pour des concentrations comprises entre 0 et 80 ppb), avec un coefficient de corrélation R^2 =

0,91 (n = 16). Sather et al. [*2007*] ont obtenu un coefficient de corrélation R^2 = 0,95 sur 107 paires de mesures, réalisées pendant 2 à 4 semaines (concentrations moyennes de l'ordre de 10 à 20 ppb). Une étude française, menée sur 4 jours, a fourni un coefficient de corrélation de 0,79 sur 32 paires de mesures (concentration de NO_2 comprise entre 20 et 60 ppb) [*Liard et al., 1999*]. Ces badges ont été utilisés en France lors de l'évaluation sur 48 h de l'exposition au NO_2 d'employés de bureaux parisiens (niveau de concentration compris entre un vingtaine et une trentaine de ppb) [*Mosqueron et al., 2002*]. Peu d'informations sur la validation des badges spécifiques au NO_x ont été trouvées, mais ces badges ont déjà été utilisés par Liard et al. [*1999*] lors de mesures de terrain. La plupart des validations des badges Ogawa ont été réalisées en air ambiant sur NO_2 [*Bytnerowicz et al., 2002 ; Singer et al., 2004*], avec le plus souvent une précision de l'ordre de 5 % [*Hafkenscheid et al., 2009*].

Les badges Ogawa semblent être adaptés à l'étude de l'exposition aux oxydes d'azote, mais en raison du peu d'études réalisées en air intérieur avec ces badges, il s'avère nécessaire de poursuivre les travaux de validation en atmosphère intérieure par la mesure des NO_x simultanément par prélèvement passif et par chimiluminescence. En logement, les paramètres environnementaux peuvent en effet être très différents de ceux des conditions extérieures, en particulier la vitesse du vent.

V.1.2.3. PRELEVEMENT DE COV PAR BADGE G.A.B.I.E.™

Pour le prélèvement des COV, nous avons choisi d'utiliser des badges diffusifs G.A.B.I.E.™ (Tecora, France) qui ont fait l'objet de nombreux tests selon un protocole répondant aux critères de la norme NF X43-267 de Juillet 2004. Leur simplicité d'utilisation et leur faible coût sont également des atouts. Il existe néanmoins d'autres systèmes de prélèvement passif : OVM 3500 et 3520 (3M™), ORSA-5 (Dräger), SKC-575 (SKC Inc.).

V.1.2.3.1. Présentation du badge G.A.B.I.E.™

Les badges G.A.B.I.E.™ contiennent 550 mg de charbon actif en grain (Figure 32), adsorbant une large gamme de COV. Le taux d'échantillonnage de ces badges est très stable quel que soit le niveau de concentration et leur grande affinité avec les COV exclut toute rétrodiffusion. De façon générale, ils permettent l'adsorption de composés constitués de 1 à 10 atomes de carbone et possédant une grande affinité pour le charbon actif.

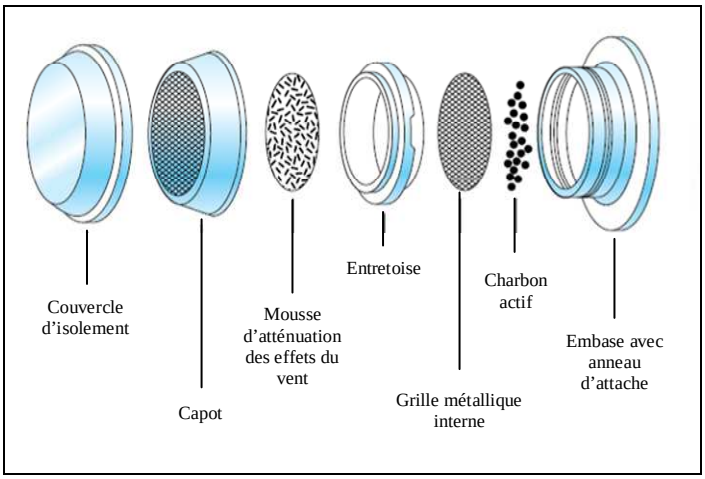


Figure 32. Vue éclatée d'un badge G.A.B.I.E.™

L'adsorbant (charbon actif) est récupéré dans un vial en verre et désorbé chimiquement par mise en contact avec un solvant (disulfure de carbone), selon le protocole opératoire de l'Annexe 5. La solution est analysée par GC-MS et/ou par GC-FID. Le solvant, en concentration importante par rapport aux autres composés du mélange analysé, forme en début de chromatogramme un pic très large qui peut masquer les composés les plus légers. C'est ainsi que le benzène a pu être détecté par analyse GC-FID du mélange, alors qu'il était invisible en GC-MS, la sélectivité étant meilleure par GC-FID.

V.1.2.3.2. Essais en laboratoire

Le badge G.A.B.I.E.™ a fait l'objet d'une étude comparative avec une méthode par pompage sur tube de charbon actif en atmosphère de travail [*Delcourt et Sandino, 2000*]. Les mesures ont concerné quatre substances, représentatives de quatre secteurs d'activité :

- toluène (imprimerie par héliogravure) : une trentaine de ppm, prélèvement pendant environ 7 h,
- trichloréthylène (décolletage[1]) : une trentaine de ppm, prélèvement pendant environ 7 h,
- dichlorométhane (fabrication de mousses en polyuréthane) : une trentaine de ppm, prélèvement de 6 h,
- benzène (stations-service) : une centaine de ppb, exposition du badge pendant 7 jours.

Les résultats obtenus avec les deux méthodes sont en bon accord, avec des coefficients de corrélation respectivement de : 0,70 (n = 40) ; 0,98 (n = 82) ; 0,82 (n = 92) et 0,98 (n = 31). L'adéquation de ce badge de prélèvement avec notre application va cependant dépendre de ses gammes de concentration et du temps de prélèvement.

[1] Usinage des pièces de révolution (vis, boulon, axe, etc.) par enlèvement de matière à partir de barres de métal, à l'aide d'un outil coupant.

Nous avons utilisé un badge G.A.B.I.E.™ lors du fonctionnement du poêle à mèche en laboratoire, pour prélever les COV éventuellement émis sur une durée de 2 h. Nous l'avons positionné au-dessus de l'appareil de chauffage (Figure 33). Aucun composé n'a été détecté.

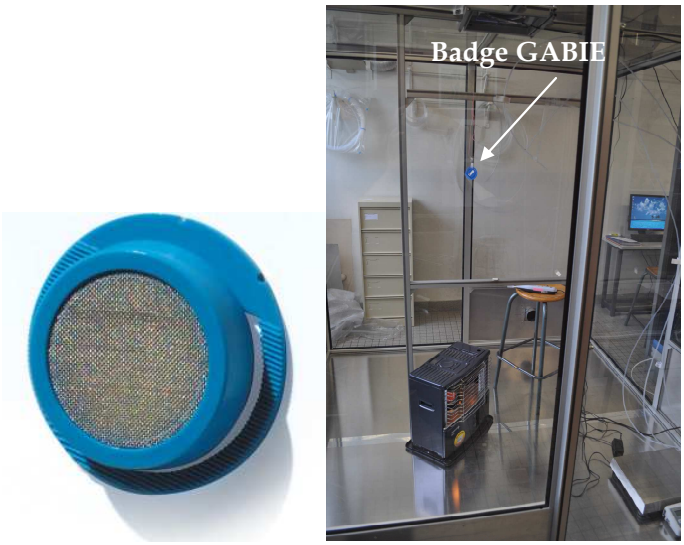


Figure 33. Badge G.A.B.I.E.™ et son positionnement par rapport au poêle à mèche lors du prélèvement.

Bien que cette méthode soit simple et peu coûteuse, le seuil de détection semble assez élevé, ce qui nécessite une augmentation du temps d'exposition du badge. Il est toutefois possible que la méthode d'analyse ne soit pas adaptée à notre application, en particulier à la détection de faibles concentrations de COV. Des essais chez les volontaires permettront un prélèvement sur une semaine dans un environnement multipollué, ce qui nous permettra de décider s'il faut conserver ou non cette technique pour les mesures de terrain.

V.1.2.4. PRELEVEMENT DE FORMALDEHYDE PAR BADGE UME^{X} 100

Parmi les badges passifs disponibles pour le prélèvement des aldéhydes, ChemDisk™ Aldehyde Monitor 571 (Assay Technology), DSD-DNPH Diffusive Sampling Device (Supelco)…, nous avons choisi le modèle UME^{x} 100 (Tecora France), en raison de sa large gamme de concentrations, de son faible coût et de sa facilité d'utilisation.

V.1.2.4.1. Présentation du badge UME^{x} 100

Le badge UME^{x} 100 (Figure 34), mis au point par la société SKC Inc. et commercialisé par la société Tecora France (anciennement Arelco), est conçu pour le prélèvement passif du formaldéhyde. Il contient un papier filtre constitué de gel de silice traité avec de la 2,4-DNPH, maintenu par un boîtier de polypropylène (Figure 35).

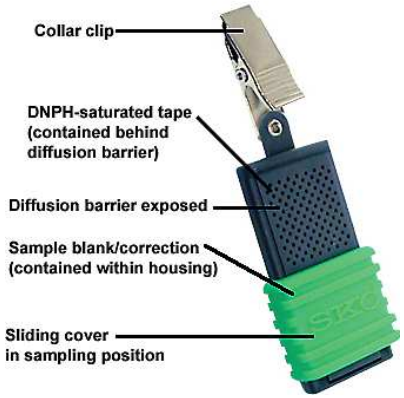


Figure 34. Photo de l'UME^{x} 100

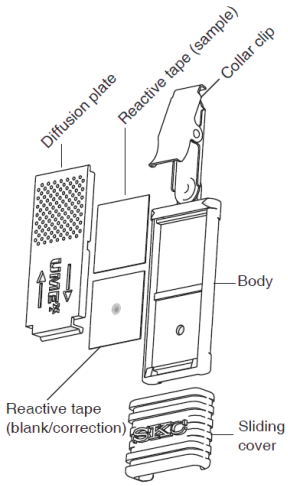


Figure 35. Vue éclatée du badge UME^{x} 100

Ce badge permet l'analyse du formaldéhyde à des concentrations comprises entre 5 ppb et 5 ppm pour des durées comprises entre quinze minutes et vingt-quatre heures. Une étude sur huit heures a également été réalisée par le fabricant, ce qui a conduit à une limite de détection de 5 ppb sur huit heures. La durée de prélèvement doit néanmoins être adaptée, afin de ne pas saturer le badge (29 µg de formaldéhyde maximum par échantillon). Ce badge passif a été validé par le fabricant pour des prélèvements sur 24 h et sur 7 jours en se basant sur la méthode EPA TO-11A [*SKC, 2004*], ce qui conduit à l'utiliser lors des mesures hebdomadaires en logement.

D'autres aldéhydes peuvent également être prélevés avec ce badge, mais le fabricant n'a pas encore achevé cette étude. Il pourra être utilisé à titre indicatif pour les autres composés carbonylés.

Le badge de silice est imprégné de 2,4-dinitrophénylhydrazine (DNPH) et d'acide phosphorique. Le formaldéhyde est dérivé en hydrazone suivant le mécanisme de la Figure 36.

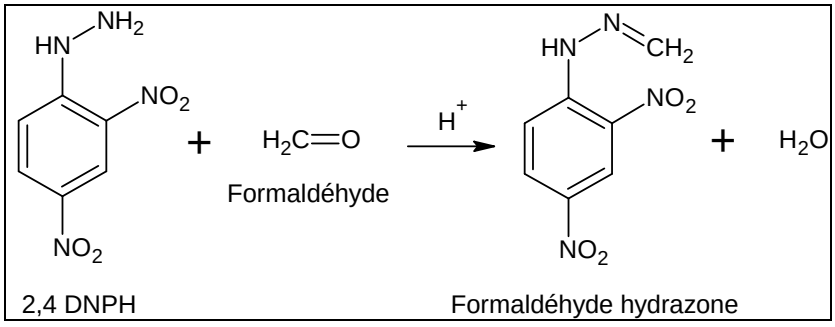


Figure 36. Réaction de dérivation du formaldéhyde par la 2,4-DNPH.

La désorption chimique du formaldéhyde-hydrazone se fait par ajout d'acétonitrile dans un vial contenant le filtre exposé au formaldéhyde, selon le protocole de l'Annexe 6. La quantification du formaldéhyde est ensuite réalisée par chromatographie en phase liquide et détection UV à 365 nm.

V.1.2.4.2. Essais en laboratoire

Ce badge de prélèvement a été validé par le constructeur pour une gamme de concentrations de formaldéhyde comprise entre 0,06 et 3,0 ppm, et une humidité relative comprise entre 10 et 80 %. L'efficacité d'extraction est rapportée comme étant égale à 99,8 % [*OSHA Method 1007, 2005*]. Un bon accord a été trouvé par Levin et al. [*2007*] entre les mesures de formaldéhyde par badge passif et par une méthode de pompage sur cartouche (Tableau 32), lors de prélèvements sur 24 h dans trois environnements différents (un bureau, et deux usines).

Lieu échantillonné	Prélèvement actif (n=6) Concentration de formaldéhyde ($mg.m^{-3}$)	Prélèvement passif UME^{x} 100 (n=6) Concentration de formaldéhyde ($mg.m^{-3}$)
Bureau	0,027	0,027
Usine 1	0,155	0,141
Usine 2	1,10	1,04

Tableau 32. Comparaison des prélèvements actif et passif de formaldéhyde [Levin et al., 2007]

Le local expérimental n'est pas adapté à l'étude des badges passifs en laboratoire, comme énoncé précédemment. Nous nous sommes donc appuyés sur la littérature pour estimer si ce badge était adapté à notre

application, et nous souhaitons réaliser des mesures simultanées de formaldéhyde par prélèvement actif et passif en logement.

V.1.3. CONCLUSION

Les prélèvements et analyses de badges passifs en laboratoire n'ont pas permis de valider leur utilisation. Ils ne peuvent en effet pas rendre exactement compte des performances réelles dans les conditions effectives de terrain, en raison des caractéristiques du local expérimental du laboratoire, des niveaux de concentration et de la durée d'exposition. C'est pourquoi la vérification de l'adéquation de ces badges passifs avec notre étude nécessitera des prélèvements en habitation. Ces badges fourniront des valeurs qualitatives de concentration de NO_x, formadéhyde et COV chez les personnes.

V.2. DEROULEMENT DES MESURES DE TERRAIN

L'APPA a mis au point plusieurs documents pour accompagner les prélèvements, en s'appuyant sur des études en logement antérieures [*APPA, 2003 ; Chambon et Schadkowski, 2004*] dans le but d'informer les volontaires, de connaître le logement et l'environnement, et les activités réalisées pendant les mesures. Ces documents permettent de faire le lien entre les logements, leurs occupants et leurs activités, et les résultats des analyses des prélèvements. C'est un moyen de caractériser l'habitation, les sources de pollution, et les activités, notamment l'utilisation des poêles à pétrole, même si les questionnaires ne sont pas toujours correctement remplis, ou certaines questions non renseignées. Des photographies des logements permettent de figer la configuration des lieux.

Le recrutement des volontaires a été réalisé par l'APPA par le bouche-à-oreille. Cette étude a fait l'objet d'une déclaration à la CNIL (Commission Nationale de l'Informatique et des Libertés).

Un opérateur de l'APPA fixe un premier rendez-vous avec le volontaire à son domicile, afin de lui expliquer les objectifs et le déroulement de l'étude, de lui présenter le matériel et les précautions d'utilisation associées. Une fiche d'information (Annexe 7) est remise au volontaire pour lui expliquer le déroulement de l'étude et le contexte du projet. Un questionnaire « Cadre de Vie » (Annexe 8) est rempli par l'opérateur avec le volontaire. Il sert à caractériser le logement, les activités au sein de celui-ci, les moyens de chauffage, en particulier le poêle à pétrole utilisé et son combustible. Ce questionnaire a été complété au fur et à mesure par de nouvelles questions, notamment sur les dimensions du logement, car la connaissance du volume est une donnée nécessaire pour le calcul du taux de renouvellement d'air de l'habitation, ou sur l'entretien du poêle, en raison des résultats de laboratoire liant les émissions de polluants et l'entretien du poêle à mèche (problème des suies). Le remplissage

du questionnaire « Cadre de Vie » est fait par l'opérateur, afin d'éviter au maximum les malentendus. L'enquêteur fait également signer au volontaire une lettre de consentement, rappelant les objectifs de l'étude, la nécessité de se conformer au protocole opératoire, la possibilité de se retirer de l'étude, ainsi que la déclaration d'étude déposée auprès de la CNIL.

L'enquêteur laisse au volontaire une fiche « Activités du logement » (Annexe 9) en lui détaillant au préalable son principe d'utilisation. Elle permet au volontaire de noter les différents évènements (chauffage, cuisine, aération, etc.) avec un pas de temps de 15 min pendant la campagne de mesures. Une notice simplifiée du Dräger Pack III (Annexe 10) est également laissée au volontaire afin qu'il puisse réagir en cas de déclenchement de l'alarme de l'appareil à cause du CO présent dans le logement, ou en cas de dysfonctionnement.

Avant de quitter le domicile, l'opérateur dispose les appareils de mesure et les badges passifs selon l'aménagement du logement. Le but est de les placer dans la même pièce que le poêle à pétrole, ni trop près, ni trop loin. La hauteur des systèmes de prélèvement est de l'ordre de 1 m au-dessus du sol, hauteur correspondant à la zone respiratoire d'un enfant ou d'un adulte assis. Dans la mesure du possible, ils ne sont pas installés dans le passage afin de ne pas perturber les habitudes des occupants du logement et de ne pas risquer la chute du matériel, ni à proximité immédiate d'une source de polluant échantillonné (par exemple sur un meuble pouvant relarguer des COV), tout en essayant d'être les plus représentatifs de la zone d'occupation de la pièce.

Une visite intermédiaire est ensuite convenue entre l'enquêteur et le volontaire, en général trois jours après, afin de s'assurer du bon fonctionnement des appareils et du remplissage correct de la fiche « Activités du logement ».

En fin de semaine, l'opérateur revient au domicile du volontaire pour récupérer les appareils de mesure et de prélèvement. Les badges sont conservés au réfrigérateur (à + 4 °C) avant d'être analysés au laboratoire (PC2A). L'enquêteur fait remplir par le volontaire trois questionnaires ; un questionnaire de fin d'exposition (Annexe 11), pour préciser si des activités particulières pouvant avoir un impact sur les mesures ont eu lieu pendant la semaine (bricolage, ménage important, etc.) ; un questionnaire « Evaluation de la semaine » (Annexe 12), ciblé sur le ressenti du volontaire sur cette étude ; et un questionnaire « Connaissance des risques » (Annexe 13), pour évaluer les connaissances du volontaire sur les dangers relatifs au monoxyde de carbone. Les habitants du foyer sont également interrogés sur d'éventuels problèmes rencontrés pendant la semaine de mesures.

Nous procédons ensuite aux analyses chimiques et à l'exploitation des résultats au laboratoire PC2A.

Par la suite, pour chaque volontaire les résultats personnalisés seront envoyés par l'APPA, ainsi qu'une brochure de sensibilisation aux intoxications oxycarbonées.

Les fiches et les questionnaires facilitent grandement l'interprétation ultérieure des résultats. De plus, ils permettent de répartir des tâches entre plusieurs personnes et selon leurs compétences. Mon rôle s'est dans un premier temps limité aux analyses des prélèvements en laboratoire dans un souci de rigueur, pour séparer les analyses de leur contexte. Néanmoins, nous avons ensuite pu participer à l'amélioration des questionnaires en ajoutant des renseignements indispensables pour le traitement des résultats, notamment la hauteur sous plafond pour accéder au volume des logements, l'entretien du poêle faite par l'utilisateur afin d'identifier un éventuel problème de suies, etc… Nous avons également guidé les opérateurs dans le positionnement des dispositifs de prélèvement et de mesure des polluants et des paramètres environnementaux.

V.3. CARACTERISTIQUES DES LOGEMENTS ECHANTILLONNES

Les caractéristiques des logements sont obtenues d'après les fiches de renseignement et les questionnaires remplis par les volontaires. Six maisons individuelles, équipées de poêles à pétrole ont été étudiées. Elles se situent dans un rayon de trente kilomètres autour de Lille (Figure 37). Un logement se situe en Belgique.

Ces six logements ne sont pas représentatifs de ceux munis d'un poêle à pétrole. Il s'agit d'une étude de faisabilité, permettant de tester et d'améliorer nos outils méthodologiques pour la collecte des données et nos protocoles analytiques. Il ne s'agit pas de l'étude d'exposition en elle-même.

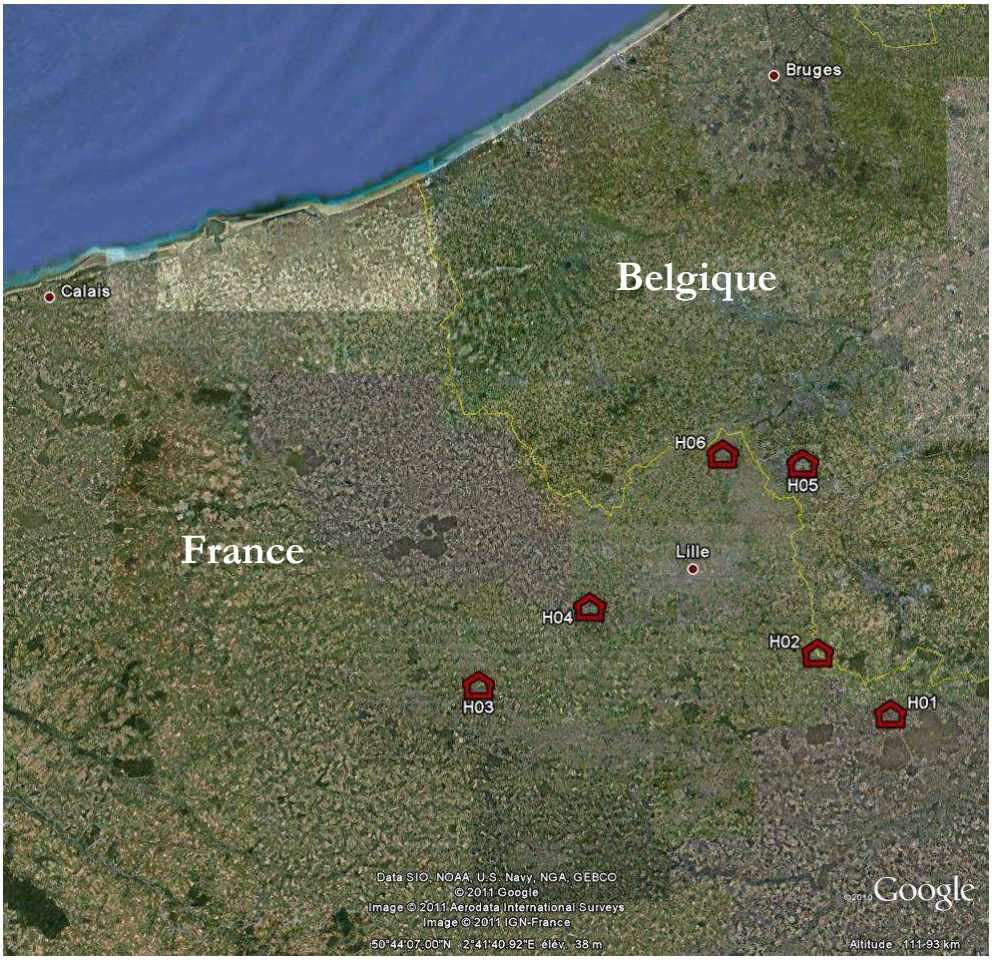


Figure 37. Localisation géographique des logements échantillonnés

V.3.1. SOURCES DE POLLUTION DES LOGEMENTS ECHANTILLONNES

Le dépouillement des questionnaires « Cadre de Vie » a permis d'identifier des sources de pollution extérieure et intérieure des logements (Tableau 33).

LOGEMENT	H01	H02	H03	H04	H05	H06
Circulation routière sur l'axe le plus proche durant la semaine	moyenne	légère	dense	légère	moyenne	dense
Garage ouvrant directement sur le domicile ?	non	non	non	oui	non	non
Type de cuisinière	gaz	électrique	gaz	gaz	gaz	électrique
Présence d'un chauffe-eau au gaz, non raccordé ?	n.r.	n.r.	oui (salle de bain)	non	non	non
Type de chauffage principal	poêle à granulés (bois)	électrique (toutes les pièces), bois (salon)	poêle à charbon	électrique (chambre), bois (salon)	électrique (toutes les pièces), bois (salon)	gaz
Localisation du chauffage principal	salon		salon			toutes les pièces
Moyen de chauffage complémentaire	n.r.	n.r.	non	n.r.	radiateur soufflant (SdB)	oui (radiant soufflant dans SdB)
Utilisation de la cheminée ?	non	oui	non	non (poêle à bois)	oui	non
Le logement a-t-il fait l'objet de rénovation durant l'année écoulée ?	oui (14/01/2011)	oui (2ème trimestre 2010)	non	oui (fév. 2011)	oui (fév. 2011)	non
Y avait-il des travaux de peinture, papier peint, vernissage ?	non	oui (salon)	n.r.	oui	oui	n.r.
Introduction de nouveaux meubles en bois aggloméré au cours des 6 derniers mois ?	non	n.r.	non	non	oui	non
Utilisation de désodorisants d'intérieur ?	non	aérosol désodorisant (WC), parfum en grande quantité (SdB)	non	non	non	bougies
Nombre de fumeurs dans le foyer	0	0	1	0	0	0
Activités particulières pendant la semaine écoulée ?	n.r.	n.r.	n.r.	bricolage (peinture)	non	non

Tableau 33. Sources de pollution identifiées dans les logements, poêles à pétrole exceptés (n.r. : non renseigné)

Deux maisons sont situées près d'un axe routier de faible circulation (« parfois quelques véhicules »), deux près d'un axe routier de circulation moyenne (« flux discontinu de véhicules »), et les deux dernières près d'un axe de circulation dense (« flux continu de véhicules »). Ces critères sont en réalité très subjectifs, et nous n'avons pas fait de vérification ni d'estimation par l'enquêteur ou en utilisant le cadastre. Cette proximité routière peut avoir une influence sur les niveaux de NO_x mesurés, qui dépendent du taux d'infiltration de ces polluants dans le logement. Seul un logement possède un garage attenant, pouvant contribuer aux niveaux de concentration de gaz et particules mesurés dans l'habitation. Pour les autres, il n'y a pas de source extérieure évidente, sauf peut-être une maison située à 3 km d'une usine d'incinération (H06).

Trois logements sont équipés simultanément de chauffages électriques et de chauffage au bois (deux cheminées et un poêle à bois) dans le salon. Un logement est équipé d'un poêle à charbon et un autre d'un poêle à granulés, tous deux installés dans le salon. Seul un foyer est équipé du chauffage au gaz. Deux logements possèdent une cheminée qui est régulièrement utilisée, ce qui peut être une source supplémentaire de gaz et de particules. Quatre foyers utilisent une gazinière, source de CO, de NO_x et de COV, les deux autres utilisent une cuisinière électrique. Un logement est équipé d'un chauffe-eau à gaz, pouvant éventuellement émettre du CO. Il apparaît utile, avec le recul, de reporter sur le plan des logements ou dans un questionnaire la localisation de ces sources supplémentaires.

Seul un fumeur est signalé parmi les volontaires (H03). Bien que la colonne « tabac » de la fiche « Activités du logement » n'ait pas été remplie par le volontaire H03, les enquêteurs signalent qu'il s'agit d'un fumeur très régulier, fumant « en permanence » dans son logement. Des questions plus précises sur le tabagisme des volontaires mériteraient de figurer dans le questionnaire (notamment renseigner si la personne fume à l'intérieur du logement ou à l'extérieur). Deux foyers utilisent des désodorisants pour WC et des bougies, émettant des COV et des particules [*Nazaroff and Weschler, 2004 ; Lee and Wang, 2006*].

Quatre maisons ont fait l'objet de rénovation/décoration pendant l'année écoulée. Pour trois d'entre elles, il y a eu des travaux de peinture, vernis ou tapisserie, pouvant ainsi encore être une source de COV. Des travaux de peinture ont eu lieu dans un logement au cours de la semaine de mesures, ce qui a peut-être influencé le niveau de COV. Un foyer a introduit des meubles en bois aggloméré au cours des six mois précédant la campagne de mesures, constituant une source potentielle de formaldéhyde et de COV [*Myers, 1983*].

Pendant la semaine de mesures, aucune activité particulière de bricolage ou de nettoyage important n'a été indiquée dans le questionnaire de fin d'exposition.

V.3.2. VENTILATION DES LOGEMENTS

Le dépouillement des questionnaires « Cadre de Vie » a aussi permis de caractériser la ventilation des logements (Tableau 34). Le terme « ventilation naturelle » indique la présence d'une bouche d'aération visible.

L'appellation « aucune ventilation » témoigne de l'absence visible d'une bouche d'aération. La ventilation mécanique contrôlée est renseignée si le volontaire déclare qu'elle fonctionne (bruit de ventilation audible), mais le débit d'extraction n'a pas été mesuré.

LOGEMENT	H01	H02	H03	H04	H05	H06
Le volontaire trouve-t-il l'air de son logement trop humide ?	n.r.	jamais	ne sait pas	parfois	jamais	parfois
Y a-t-il des traces de condensation sur les vitres du logement ?	parfois	jamais (sauf si cuisine ou bain)	parfois	parfois	jamais	parfois (chambre)
Y a-t-il eu des moisissures sur une surface quelconque à l'intérieur de la maison (nourriture exclue) ?	oui (bâti de fenêtre, salle de jeu)	non	non	oui (chambre)	non	non
Est-ce que cela s'est produit dans les 12 derniers mois ?	non	non	n.r.	oui	n.r.	n.r.
Présence d'une hotte ?	non	oui (évacuation vers l'extérieur)	oui, filtre à charbon (évacuation vers l'extérieur)	oui (filtre qui renvoie l'air dans la pièce)	oui (filtre renvoie l'air dans la pièce)	oui (évacuation vers l'extérieur)
Type de ventilation par pièce:						
cuisine	VN	VMC	VN	VMC	AV	AV
salon	VN	VMC	AV	VMC	AV	AV
bureau	VN	n.r.	n.r.	VMC	n.r.	n.r.
chambre 1	n.r.	VN	AV	VMC	AV	AV
chambre 2	n.r.	VN	AV	VMC	AV	AV
chambre 3	n.r.	VN	AV	n.r.	AV	v
Dans quelle pièce de la maison se trouve le poêle à pétrole ?	bureau	couloir	salon	salon	salon	séjour
Y a-t-il une ventilation dans cette pièce ?	oui	oui	non	oui	non	non
Quel type de ventilation ?	VN	VN (porte d'entrée)	n.r.	VMC	n.r.	n.r.
Aérez-vous la pièce lorsque le poêle fonctionne ?	non	non	non	non	oui	non

Tableau 34. Ventilation des logements
(VN : ventilation naturelle ; AV : aucune ventilation ; VMC : ventilation mécanique contrôlée ; n.r. : non renseigné)

Les poêles à pétrole sont majoritairement utilisés dans le salon (pour 4 logements) ; un seul volontaire (H05) déclare aérer la pièce lors du fonctionnement du poêle, or aucune ventilation n'a été reportée sur la fiche « Activités du logement »... Pour les trois autres logements, la pièce contenant le poêle est dépourvue de ventilation. Concernant les deux derniers volontaires, la ventilation naturelle aère le bureau (H01) où le poêle fonctionne, mais aucune ventilation n'existe dans le couloir du volontaire H02. Bien que mal renseigné dans le questionnaire « Cadre de vie », le logement H04 contient en fait trois poêles à pétrole. Seul l'appareil fonctionnant dans le salon a été renseigné. Nous ne savons pas si les autres poêles à pétrole ont fonctionné pendant la semaine de mesures, le volontaire n'ayant pas souhaité que des mesures complémentaires soient faites à l'étage de son logement.

Trois foyers sont équipés d'une hotte avec évacuation vers l'extérieur, deux ont une hotte sans évacuation. Il n'est pas précisé si les habitants en font usage lorsqu'ils cuisinent. Parmi les six logements, deux possèdent un système de ventilation mécanique (VMC) dans la cuisine, une ventilation naturelle pour deux autres cuisines, et aucun système de ventilation dans les deux dernières. La moitié des salons n'a aucun système de ventilation (fenêtres exceptées) ; deux d'entre eux sont équipés de VMC. On ne sait pas dans quelle mesure la VMC a fonctionné pendant la semaine de mesures ; cela n'a pas été vérifié par l'enquêteur. L'entretien de la VMC est un sujet qui n'a également pas été abordé avec les volontaires.

La moitié des participants trouve que l'air du logement est parfois humide. Un participant ne sait pas et les deux autres ne trouvent pas que l'air de leur habitation soit trop humide. Cette perception de l'humidité par les habitants sera mise en parallèle avec les mesures d'humidité relative dans la partie concernant les résultats de la campagne. Quatre logements présentent des traces visibles de condensation sur les vitres, et un logement a présenté des moisissures de surface pendant l'année écoulée. Dans les logements les sources d'humidité sont multiples (cuisine, salle de bain, séchage du linge…) mais il est possible que l'usage d'un poêle à pétrole augmente la quantité d'eau présente en air intérieur de façon notable par rapport au niveau de fond.

Les questions méritent encore quelques modifications. Le type de ventilation par pièce n'est en effet pas forcément pertinent. En revanche, la ventilation de l'endroit où fonctionne le poêle à pétrole mérite d'être renseignée. Cela manque par exemple pour le logement H02, où le poêle à pétrole fonctionne dans le couloir, mais comme ce n'est pas une pièce à part entière, la ventilation n'a pas été précisée. Il sera utile de faire préciser aux volontaires s'ils changent leur poêle à pétrole de place pendant la semaine de mesures. Les questions portant sur l'aération pendant le fonctionnement du poêle doivent être plus précises. Il est intéressant de savoir s'il s'agit d'une aération ponctuelle à l'allumage et/ou l'extinction, ou s'il s'agit d'une aération continue pendant le fonctionnement de l'appareil (auquel cas la vérification de la ventilation effective sur la fiche « Activités du logement » devra corroborer les déclarations du volontaire).

V.3.3. CARACTERISTISTIQUES DES POELES A PETROLE ET DES CARBURANTS

Les caractéristiques des poêles à pétrole et des carburants de chaque logement sont regroupées dans le Tableau 35. Un seul poêle à pétrole est déclaré fonctionner dans chacun des six foyers échantillonnés, deux sont des poêles à mèche, les quatre autres sont des poêles électroniques. La moitié d'entre eux sont utilisés depuis moins de 5 ans. Tous les poêles sont équipés d'un système antirenversement (obligatoire). Deux modèles de poêle électronique sont déclarés équipés d'un système anti-CO, mais cela n'a pas été vérifié par l'enquêteur et d'après les notices correspondant aux références de ces poêles, il y a eu confusion avec CO_2. Le participant H04 a supprimé tous les dispositifs de sécurité de son appareil, pour une raison qui ne nous a pas été communiquée. On ne sait pas si la révision de ce poêle a été faite avant ou après la coupure des systèmes de sécurité.

Les poêles à pétrole des participants à la campagne de mesures ne sont actuellement plus en vente dans le commerce, et ils ne font pas partie de la liste des produits certifiés au 1er septembre 2011. En revanche, au moment de leur achat ils étaient tous certifiés NF-128 pour l'usage de combustible français. Malgré cela, deux volontaires (H04 et H06) achètent leur carburant à la pompe en Belgique. Un volontaire achète son carburant en bidon dans un magasin de bricolage français, et les trois derniers à la pompe en France.

Après la semaine de mesures, les volontaires ont répondu au questionnaire de fin d'exposition. Trois d'entre eux ont déclaré avoir refait le plein de combustible liquide pendant la semaine écoulée, avec du carburant provenant du même pays qu'à leur habitude.

LOGEMENT	H01	H02	H03	H04	H05	H06
Marque du poêle	Zibro Kamin Laser 156	Equation S29D, DTN France (Leroy Merlin)	Tectro R253C	Tayosan SRE 4600	Zibro SRE 71X	Zibro Kamin SRE 176
Type de poêle	électronique	mèche	mèche	électronique	électronique	électronique
Puissance du poêle (W)	1900	2700	2200	3000	1900	2380
Température de réglage (°C)	19			20	19	20
Âge du poêle (en années)	8	10-12	5	5	2	10
Le poêle possède-t-il un filtre ?	oui	non	n.r.	non	oui	oui
L'utilisateur entretien-t-il le filtre ? A quelle fréquence ?	oui (2 mois)	n.r.	n.r.	n.r.	non	oui (2 fois par an)
Le poêle a-t-il déjà été révisé ?	non	non	oui	oui	non	non
Quand et par qui ?			2009, par un professionnel	2009, par un professionnel		
Le poêle possède-t-il un système de sécurité ? Si oui, de quel type ?	oui	oui	oui	non (retiré par le volontaire)	oui	oui
Anti-renversement	oui	oui	oui	n.r.	oui	oui
Anti-CO	oui	n.r.	n.r.	n.r.	n.r.	oui
Type de combustible	pompe	pompe	pompe	pompe	PTX 2000	pompe
Est-il désaromatisé?	non	non	non	non	oui	non
Teneur en aromatiques	n.r.	n.r.	n.r.	n.r.	< 1%	n.r.
Dans quel type de magasin a-t-il été acheté ?	grande surface	grande surface (Auchan)	grande surface	station-service	magasin de bricolage	station-service
Dans quel pays ?	France	France	France	Belgique	France	Belgique
Est-il toujours acheté au même endroit ?	oui	oui	oui	oui	oui	oui

Tableau 35. Caractéristiques des poêles et carburants par logement

L'exploitation des questionnaires met encore en évidence quelques questions à modifier pour avoir davantage de précision sur l'entretien des poêles électroniques. Le type de filtre n'est pas précisé et la manière de l'entretenir n'est pas non plus demandée (époussetage, aspiration, lavage à l'eau…). Il serait également intéressant de connaître le prix de la révision et la façon de trouver un professionnel pour la faire.

La réponse des volontaires sur la désaromatisation du carburant qu'ils utilisent est intéressante. En effet, en France, tous les carburants sont désaromatisés selon la règlementation en vigueur (≤ 1,0 % en masse). Or les volontaires H01, H02 et H03 ne semblent pas avoir été renseignés lors de leur achat de carburant. La formulation de la question prête cependant à confusion, car certains carburants sont davantage désaromatisés pour générer le moins d'odeur possible ; par exemple le combustible Zibro Optimal que nous avons testé en laboratoire avait une teneur en aromatiques < 0,006 % en masse.

V.4. RESULTATS ET DISCUSSION

La campagne de mesures s'est déroulée avec succès et a permis de mettre au point des protocoles quasi définitifs de prélèvement et d'analyse. Elle a permis aux opérateurs de terrain de prendre en main les instruments de mesure, et de savoir décider du positionnement des badges et appareils de mesure (ni trop proches de sources annexes de pollution, ni trop loin du poêle à pétrole). Les caractéristiques des logements sont relevées grâce aux questionnaires, à la prise de photographies et au traçage de plans. Nous ne disposons cependant pas du plan complet du logement H03 instrumenté.

Les Figures 38 à 43 présentent, pour chaque volontaire, un plan du logement avec les zones de prélèvement par badges passifs et les positions du datalogger pour les mesures environnementales et du Dräger Pack III pour la mesure de CO. Un graphique représente l'évolution des concentrations de CO et CO_2 pendant la semaine de mesures, faisant figurer les évènements survenus dans le logement, déclarés par les volontaires sur la fiche « Activités du logement », dont la légende est la suivante :


Activité de cuisine


Aération du logement


Consommation de tabac


Allumage de la cheminée

Durée d'utilisation du poêle à pétrole

Durée d'utilisation du chauffage déclaré comme principal par le volontaire (autre que poêle à pétrole)

A partir des profils de concentration de CO_2, et de l'utilisation des poêles à pétrole, renseignée dans la fiche « Activités du logement » par les volontaires, on constate que le dioxyde de carbone est un excellent indicateur de

fonctionnement du poêle à pétrole dans les logements étudiés. Il arrive que cette fiche ne soit pas correctement remplie, ce qui conduit parfois à une incertitude sur l'interprétation des variations de concentration de CO et CO_2 à l'intérieur des logements. Une grande diversité dans les habitudes d'utilisation est observée d'un logement à l'autre, mais la teneur en CO_2 augmente toujours à l'allumage du poêle à pétrole et diminue après son extinction, avec une amplitude de l'ordre de 2500 à 3500 ppm.

L'évolution de l'humidité relative n'est pas un paramètre permettant de représenter de façon optimale la quantité d'eau produite par le poêle à pétrole. En effet, l'humidité relative varie en fonction de la température, qui elle-même dépend du fonctionnement du poêle à pétrole. Par conséquent, nous avons choisi de représenter l'évolution de la concentration d'eau pour chaque logement, en plus de la température de la pièce échantillonnée.

La Figure 38, représente les résultats obtenus dans le logement H01. On observe une influence de l'utilisation du chauffage principal (poêle à granulés situé dans le salon) sur la teneur en dioxyde de carbone mesurée, particulièrement visible les 20 et 21 janvier en l'absence de fonctionnement du poêle à pétrole. Il semble également que l'utilisation de la gazinière influence le niveau de CO_2 mesuré.

Les mesures de monoxyde de carbone faites dans le bureau et le salon n'en révèlent pas la présence pendant toute la semaine d'exposition. Dans un grand logement le monoxyde de carbone CO se disperse très bien, et il est par conséquent indétectable en faible quantité. De plus, la ventilation du logement est très bonne, puisque le volontaire signale des courants d'air.

La température de la pièce où est utilisé le poêle est basse, inférieure ou égale à 15 °C lors de l'allumage de l'appareil, dont la température de consigne est fixée à 19 °C par le volontaire. L'évolution de la concentration d'eau suit exactement celle de la température, elle-même identique à celle de la concentration de CO_2. Ces émissions sont donc particulièrement corrélées au fonctionnement du poêle à pétrole et du poêle à granulés.

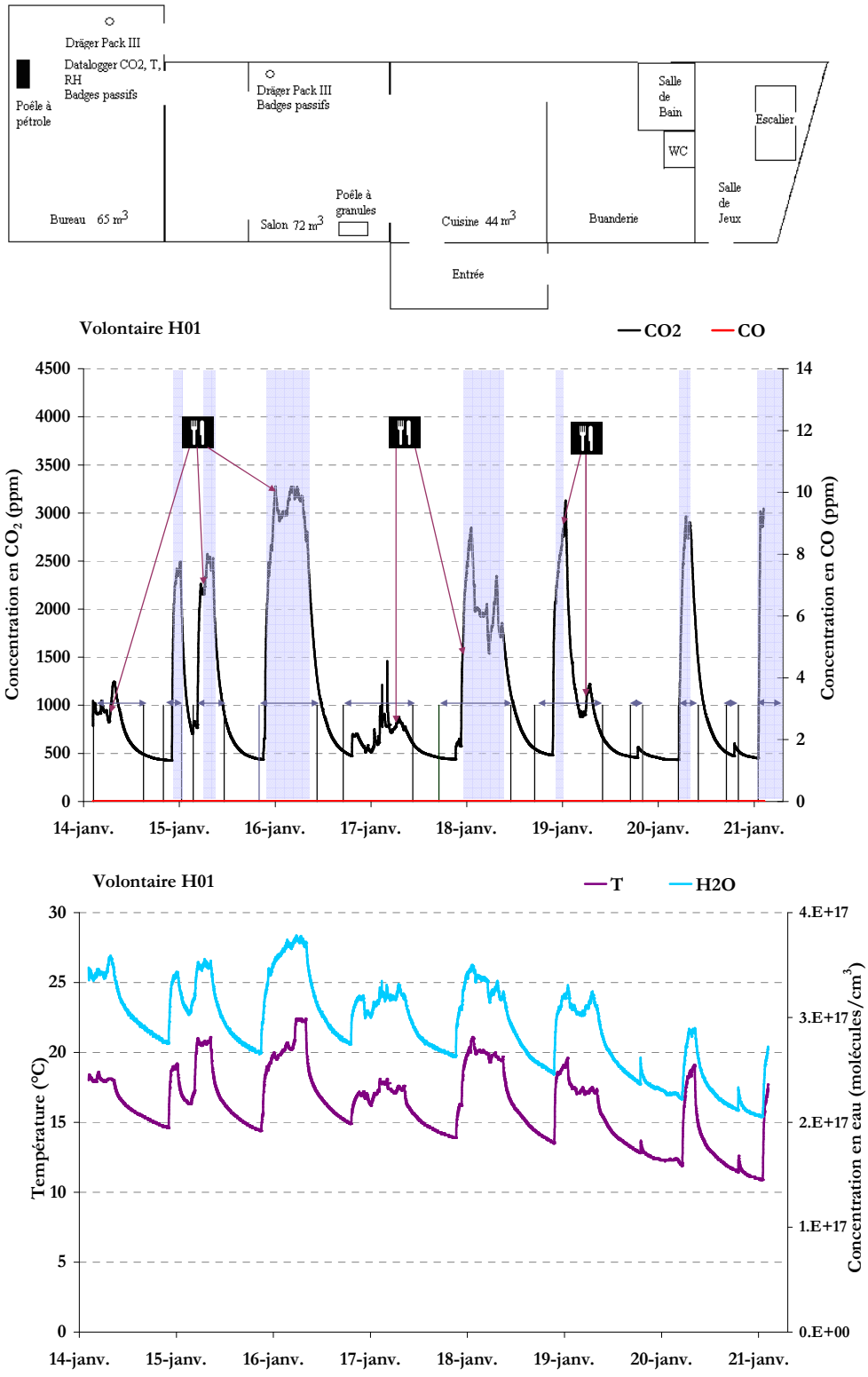


Figure 38. Volontaire H01 : Plan du logement et évolution hebdomadaire des niveaux de concentration de CO, CO_2, de la température et de l'humidité relative

Le niveau de base de CO_2 n'est pas toujours constant dans le logement H02 (Figure 39). Les variations ne semblent pas suffisamment explicables avec la fiche « Activités du logement » en particulier entre le 29 et le 30 janvier. L'irrégularité du niveau de fond de CO_2 ne s'explique pas par la circulation routière aux alentours de l'habitation, car, dans le questionnaire « Cadre de vie », le volontaire H02 indique que le flux de circulation est faible. En revanche la position de la sonde environnementale, dans le salon, peut éventuellement expliquer ces variations par la présence simultanée de plusieurs personnes à proximité. Mais il est également possible que le volontaire ait oublié de mentionner certaines activités du logement sur la fiche.

Les flèches horizontales sur le graphique des concentrations de CO et CO_2 représentent la durée de fonctionnement de la cheminée, le mode de chauffage principal étant le chauffage électrique (contrat EJP[1] avec EDF), automatiquement régulé entre 17 et 22 °C. La durée d'utilisation de la cheminée, allumée le 30 janvier, n'a pas été indiquée par le volontaire, et il est possible qu'il ait également oublié de mentionner le fonctionnement de la cheminée à d'autres moments de la semaine, comme par exemple entre le 29 et le 30 janvier. La concentration de CO_2 ne semble pas être influencée de façon significative par le fonctionnement de la cheminée, ce qui peut s'expliquer par l'existence d'un insert, au vu des photos prises dans le logement.

Les mesures de CO ont débuté le 27 janvier. Les pics de CO correspondent raisonnablement à la période d'allumage du poêle à pétrole, exception faite du 28 janvier, où il est probable que le volontaire ait oublié de mentionner l'extinction puis le rallumage du poêle.

L'aération du logement ne semble pas avoir d'influence significative sur les concentrations de CO et CO_2 mesurées. L'aération est peut-être insuffisante comparée à ces émissions par différentes sources. A plusieurs reprises le volontaire indique des activités de cuisine qui semblent avoir une incidence sur le niveau de CO_2, alors qu'il s'agit d'une cuisinière électrique.

[1] EJP : Effacement Jour de Pointe. Ce contrat permet de bénéficier pendant 343 jours par an d'un tarif proche de celui des Heures Creuses du tarif Heures Pleines / Heures Creuses, en contrepartie, le prix du kWh est plus élevé pendant 22 jours par an, étalés entre le 1er novembre et le 31 mars

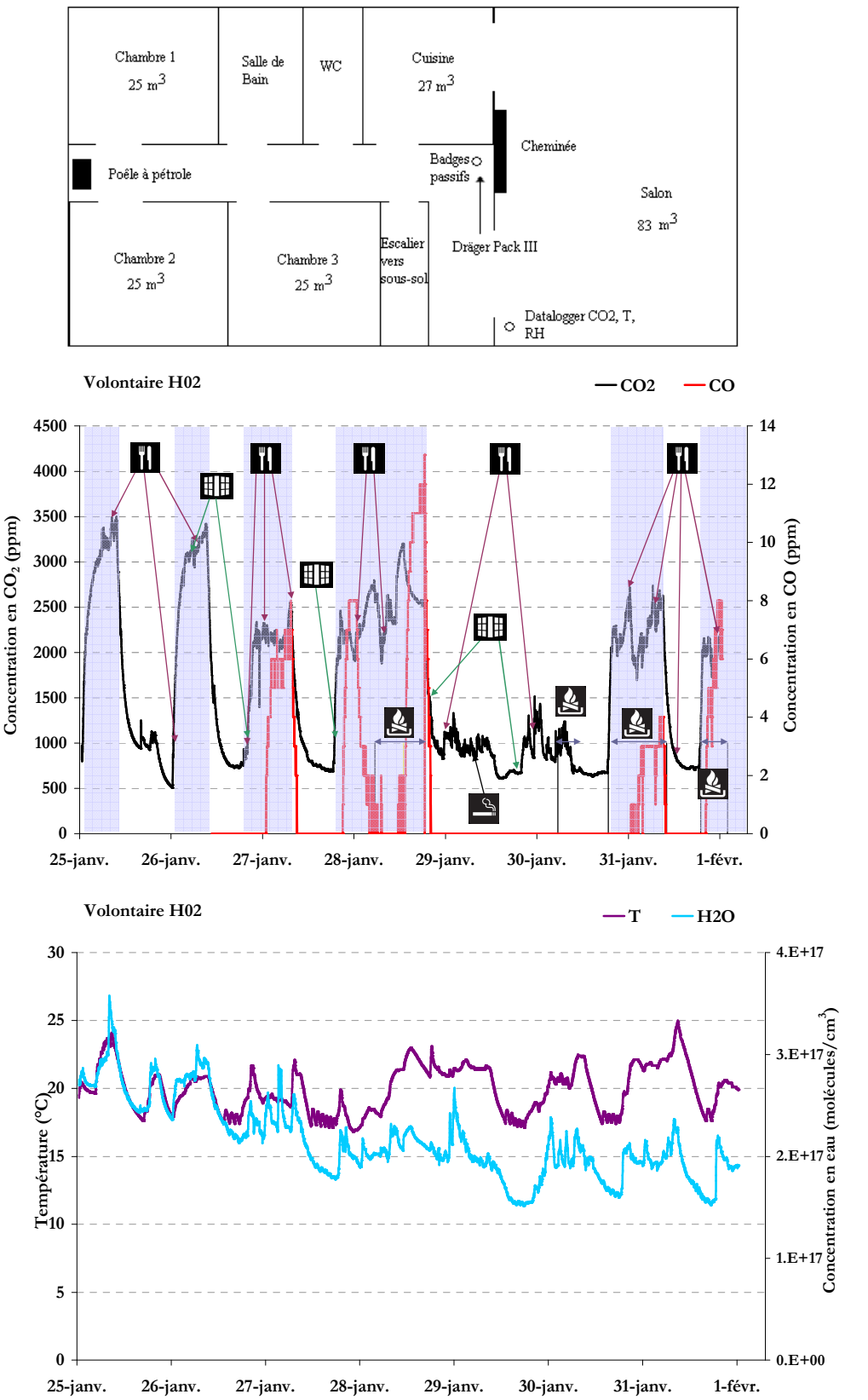


Figure 39. Volontaire H02 : Plan du logement et évolution hebdomadaire des niveaux de concentration de CO, CO_2, de la température et de l'humidité relative

Les mesures et prélèvements ont été faits dans le salon du logement H03 (Figure 40), mais la position exacte des appareils et du poêle à pétrole n'a pas été reportée correctement par l'opérateur. Aucune photographie ne permet de les situer dans l'habitation.

Au vu des graphiques, l'utilisation du poêle à pétrole est effectivement en appoint, de façon relativement ponctuelle.

L'évolution de la concentration de CO laisse à penser que ce gaz est principalement émis par le poêle à charbon, utilisé comme mode de chauffage principal par le volontaire. Il est possible que ce dernier se soit trompé dans le remplissage de la fiche « Activités du logement ». Il semble que le poêle à charbon ait fonctionné du 6 au 8 février au lieu du 5 et 6 février, comme déclaré par le volontaire. Il est également plausible que le monoxyde de carbone provienne du trafic routier dense, et soit influencé par la présence d'un feu tricolore à proximité du logement. Par infiltration ce gaz pénétrerait dans le logement. L'absence de détection de CO le samedi et le dimanche pourrait s'expliquer par une circulation moins dense ce jour-là.

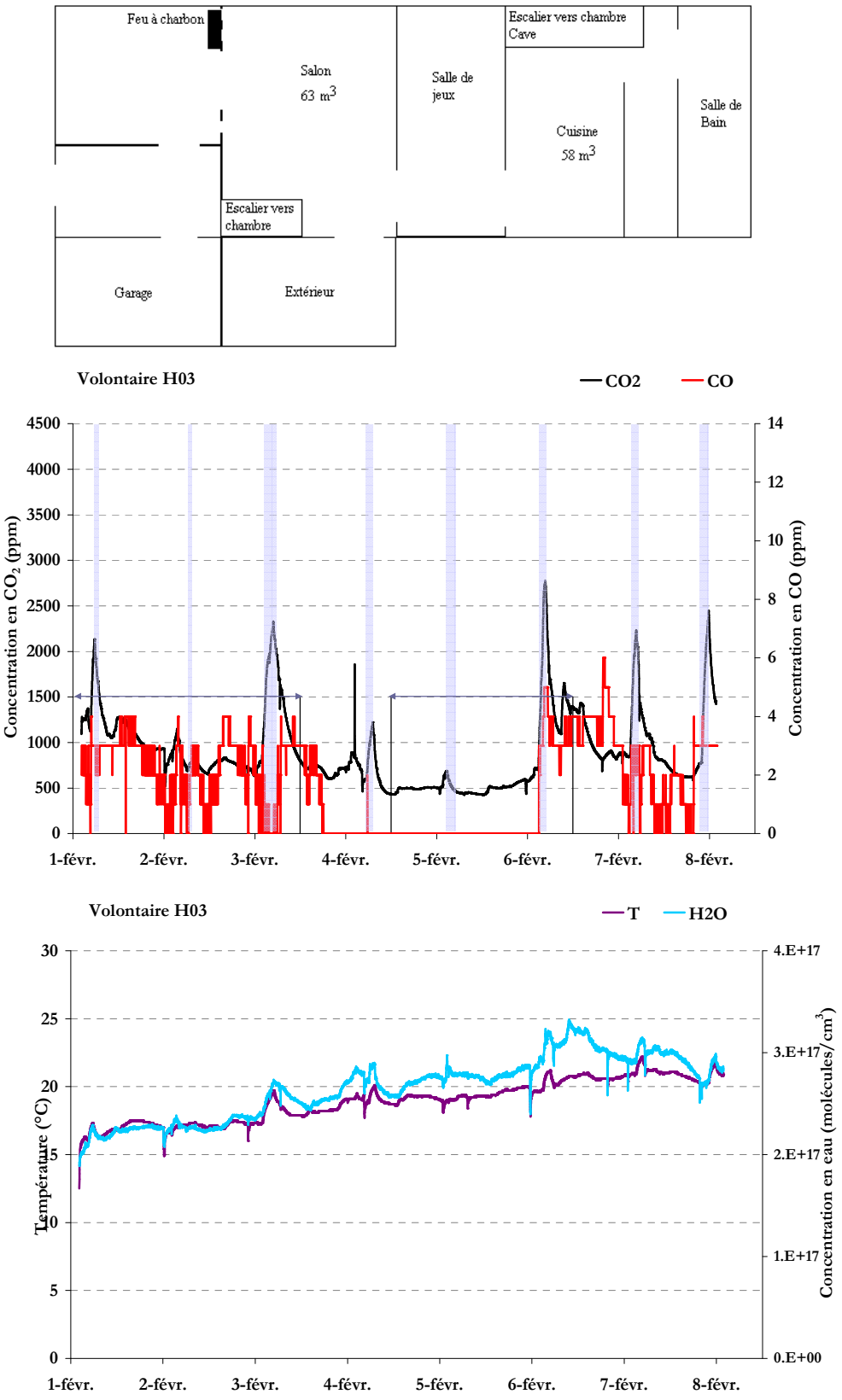


Figure 40. Volontaire H03 : Plan du logement et évolution hebdomadaire des niveaux de concentration de CO, CO_2, de la température et de l'humidité relative

La Figure 41 indique, de façon très marquée, une utilisation très fréquente du poêle à pétrole par le volontaire H04. Le volontaire déclare effectivement utiliser ce mode de chauffage en tant que source principale, car son quartier n'est pas raccordé au réseau de gaz.

Le remplissage de la fiche « Activités du logement » est globalement correct, avec quelques oublis cependant, notamment une probable extinction/réallumage le 16 février. L'allumage d'un feu de cheminée ou l'utilisation ponctuelle de la gazinière n'ont pas d'influence visible sur les niveaux de CO et CO_2 mesurés. De plus, on ne peut pas interpréter les deux pics de CO du 19 et 21 février.

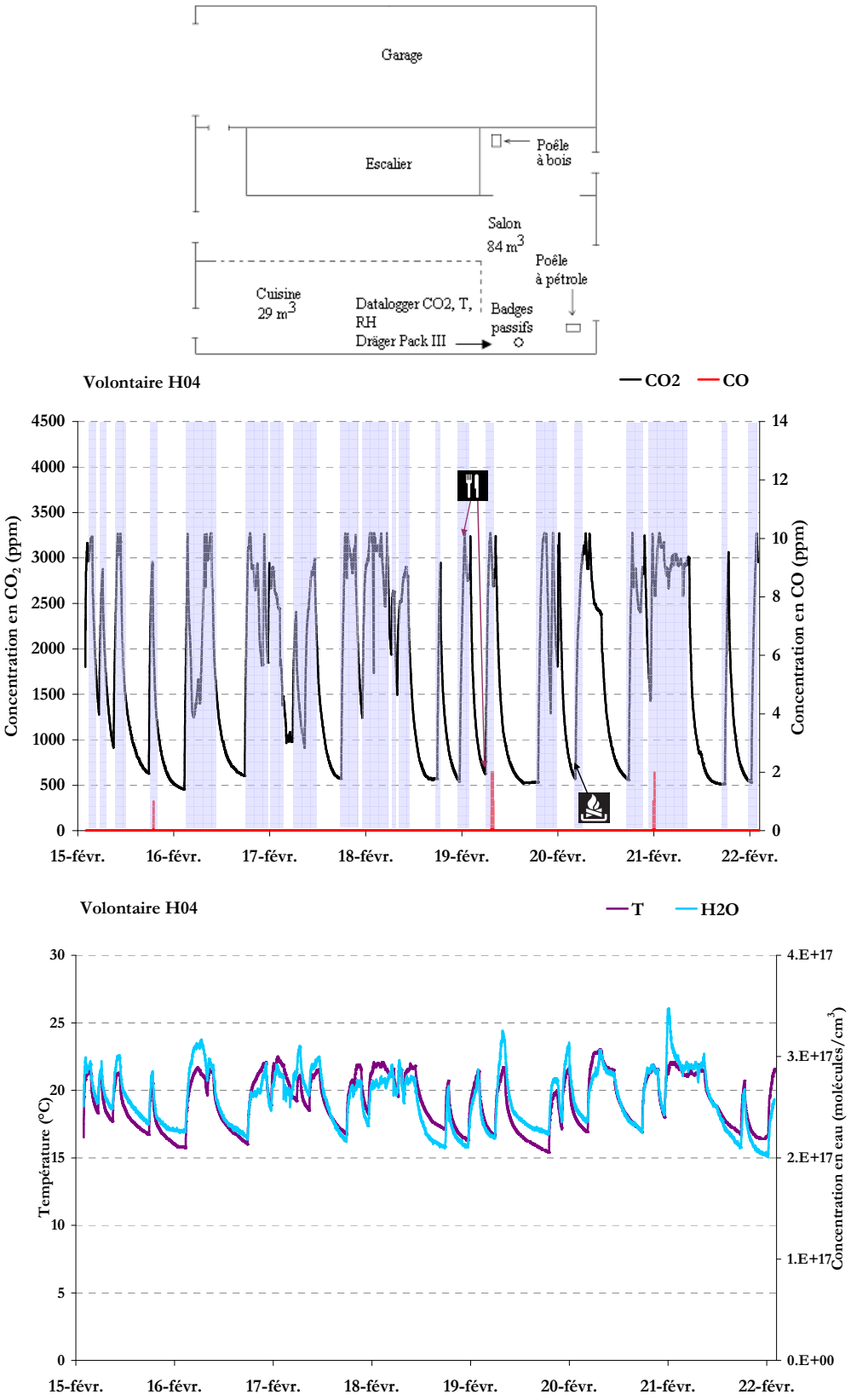


Figure 41. Volontaire H04 : Plan du logement et évolution hebdomadaire des niveaux de concentration de CO, CO_2, de la température et de l'humidité relative

Les mesures chez le volontaire H05 (Figure 42) n'ont pu être faites que sur quatre jours en raison de l'indisponibilité du volontaire au-delà de cette durée.

Il est possible que le feu de cheminée joue un rôle sur les concentrations mesurées les 14, 17 et 18 février, bien qu'il s'agisse d'un insert. Le monoxyde de carbone n'a pas été détecté durant les mesures.

La température du logement ainsi que la concentration d'eau fluctuent suivant l'utilisation du poêle à pétrole avec également une influence possible du fonctionnement de la cheminée. La faible valeur de la température moyenne (15 °C) s'explique par le fait que le logement n'est chauffé qu'en présence du volontaire (exception faite de 2 h pendant la semaine), qui utilise son poêle à pétrole comme mode de chauffage principal. Le taux de renouvellement d'air du salon où est utilisé le poêle à pétrole ne semble pas avoir d'influence particulière sur la température mesurée car il est de 0,5 h^{-1}, soit une valeur plutôt habituelle pour les logements français.

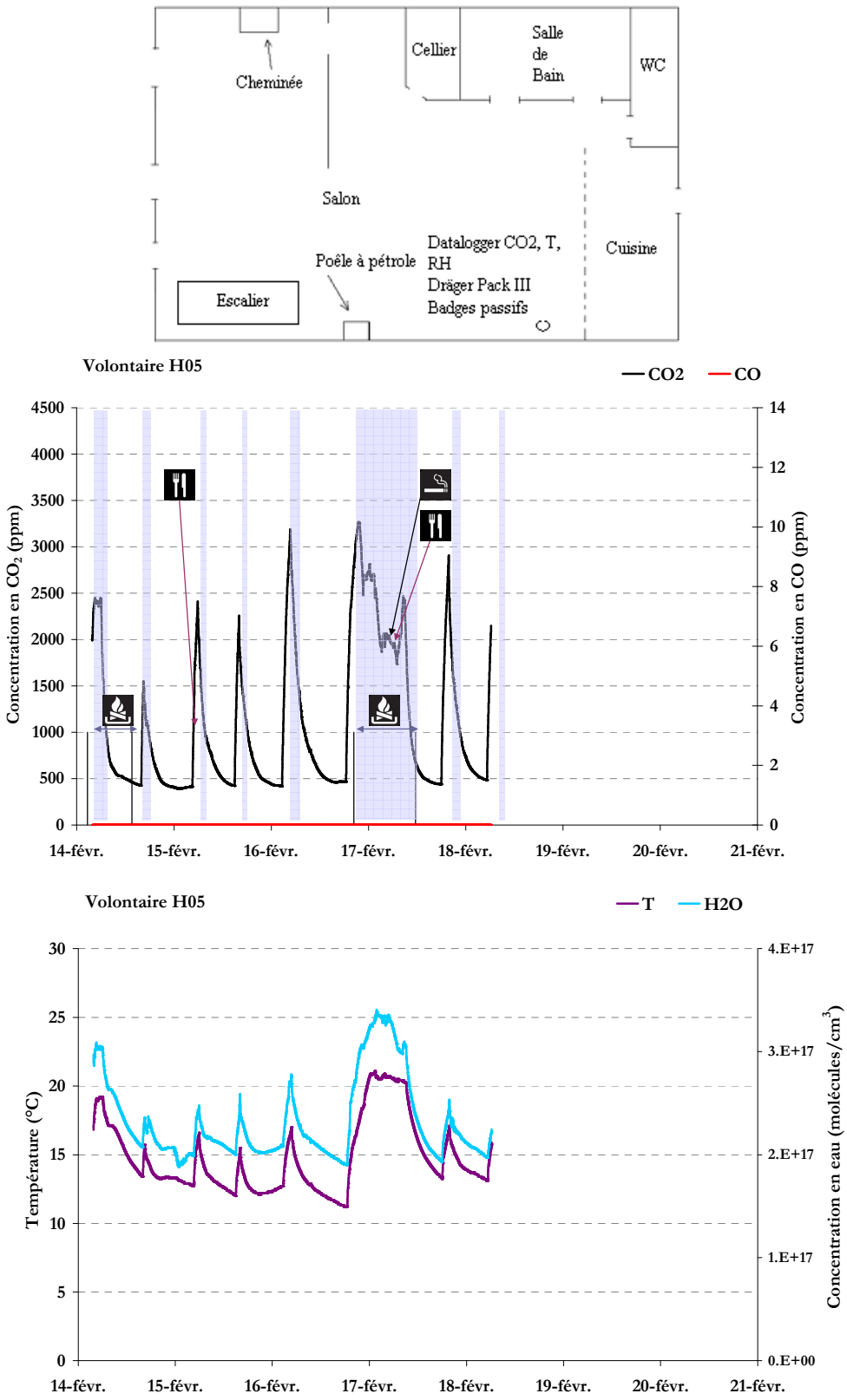


Figure 42. Volontaire H05 : Plan du logement et évolution des niveaux de concentration de CO, CO_2, de la température et de l'humidité relative

L'évolution de la concentration de CO_2 mesurée chez le volontaire H06 (Figure 43) présente de petites variations du niveau de fond, observables même pendant la ventilation prolongée du logement le 24 février, variations qu'on ne peut expliquer. L'hypothèse que ces variations périodiques soient dues à la proximité d'un axe routier de trafic dense est mise en défaut par ces mêmes variations observables au niveau de l'humidité et de la température. L'hypothèse du déclenchement automatique de la VMC à intervalles réguliers est également écartée en raison de l'absence de système d'aération dans ce logement.

Le monoxyde de carbone ne figure pas dans les résultats en raison d'un problème technique lors de l'acquisition des données.

Il est possible que les activités de cuisine aient un impact sur les polluants mesurés, mais cette influence n'est pas clairement établie, d'autant plus qu'il s'agit d'une cuisinière électrique. L'allumage du chauffage principal est également visible sur la Figure 43.

Le volontaire déclare être parfois perturbé par la fumée de cheminée d'un voisin, selon la direction du vent.

En l'absence de fonctionnement du poêle à pétrole, la température n'excède pas 19 à 20 °C avec le chauffage au gaz. Le choix d'un chauffage d'appoint à pétrole par le volontaire est purement économique, et il permet d'atteindre une température de 22 – 23 °C.

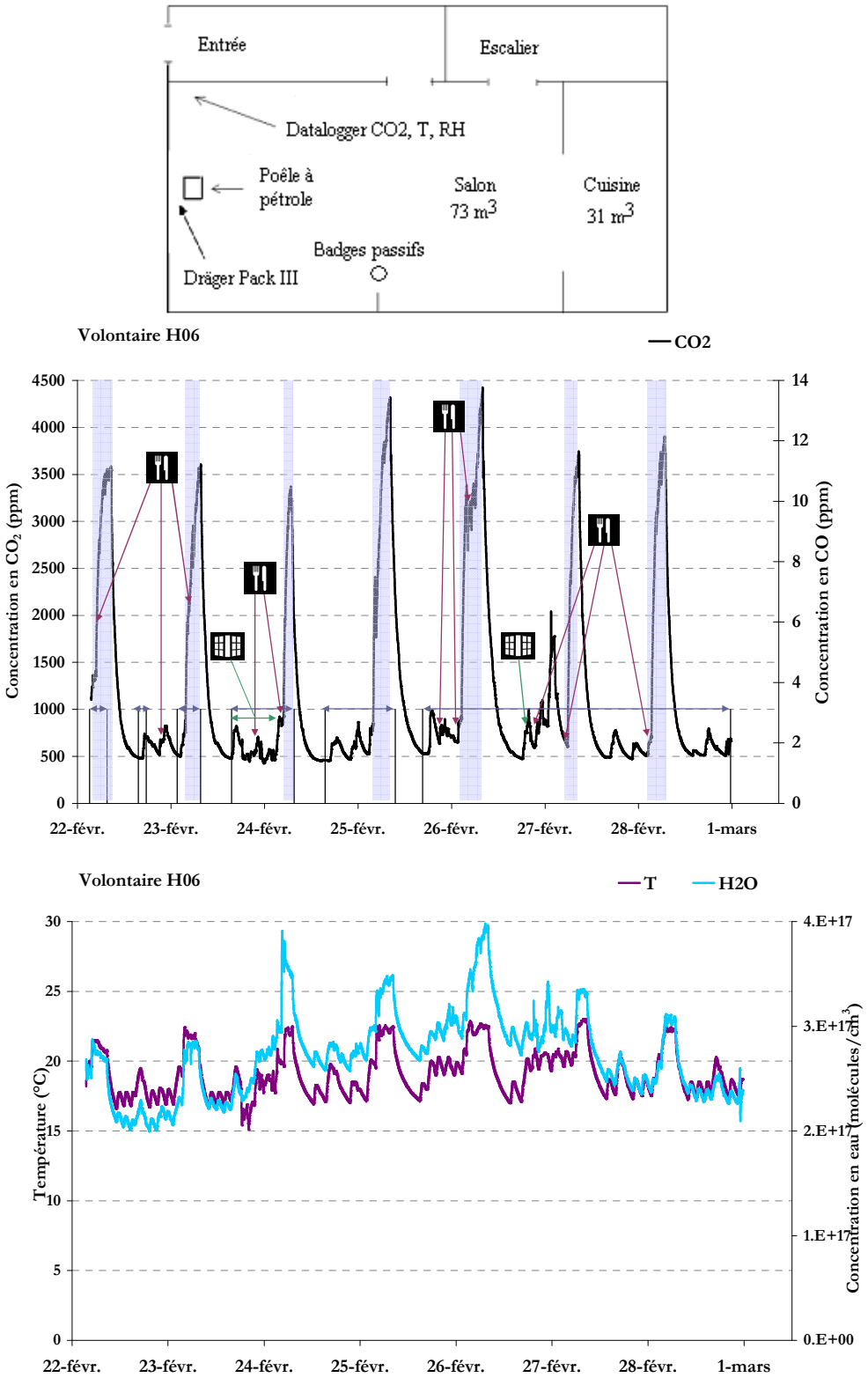


Figure 43. Volontaire H06 : Plan du logement et évolution hebdomadaire des niveaux de concentration de CO, CO_2, de la température et de l'humidité relative

V.4.1. DIOXYDE DE CARBONE

Dans les logements la concentration de CO_2 évolue de façon très nette en fonction de l'allumage et de l'extinction du poêle à pétrole, même quand d'autres sources sont présentes. La concentration moyenne hebdomadaire de CO_2 (Tableau 36) émis est comprise entre 900 et 1714 ppm. Ces valeurs sont toutes supérieures aux 700 ppm du niveau de confort préconisé par l'ASHRAE [*ANSI/ASHRAE 62.1-2010*], en particulier H02 et H04, qui dépassent les 1500 ppm, principalement par manque d'aération. Le volontaire H02 déclare pourtant aérer son logement pendant 1 h 15 sur toute la semaine de mesures. Le logement H04 n'a pas été aéré pendant la semaine de prélèvements, mais il est équipé d'une ventilation mécanique dans le salon où le poêle est localisé (il n'est pas précisé dans le questionnaire si la ventilation est en état de fonctionnement). La concentration hebdomadaire moyenne de dioxyde de carbone est de 900 ppm dans le logment H03, concentration la plus faible des six logements échantillonnés, alors que le poêle est utilisé dans un salon non ventilé. On peut penser que cet appareil de chauffage est effectivement utilisé en appoint et par intermittence.

Volontaire	Concentration de CO_2 (ppm)		
	Valeur minimale	Valeur maximale	Moyenne hebdomadaire ± S.D.
H01	440	3260	1082 ± 810
H02	650	3490	1596 ± 837
H03	500	2765	900 ± 422
H04	500	3270	1714 ± 960
H05*	450	3265	1092 ± 786
H06	500	4430	1173 ± 992

* Mesures faites sur 4 jours

Tableau 36. Concentrations de CO_2 mesurées dans les logements

L'aération de ces maisons ne semble pas suffisante au regard des sources de CO_2 présentes. L'étude menée par l'OQAI à l'échelle nationale en 2003-2005 [*OQAI, 2007*] indique des concentrations moyennes hebdomadaires de CO_2 comprises entre 277 et 2702 ppm parmi 503 logements échantillonnés, la médiane se situant à 756 ppm. Tous les logements de notre étude se situent au-dessus de la valeur médiane.

La mise en parallèle de la durée d'utilisation moyenne quotidienne du poêle à pétrole avec la concentration moyenne de CO_2 pendant les mesures montre une relation de type linéaire (Figure 44). Plus le poêle à pétrole fonctionne, plus la concentration de CO_2 mesurée est élevée, ce qui est normal.

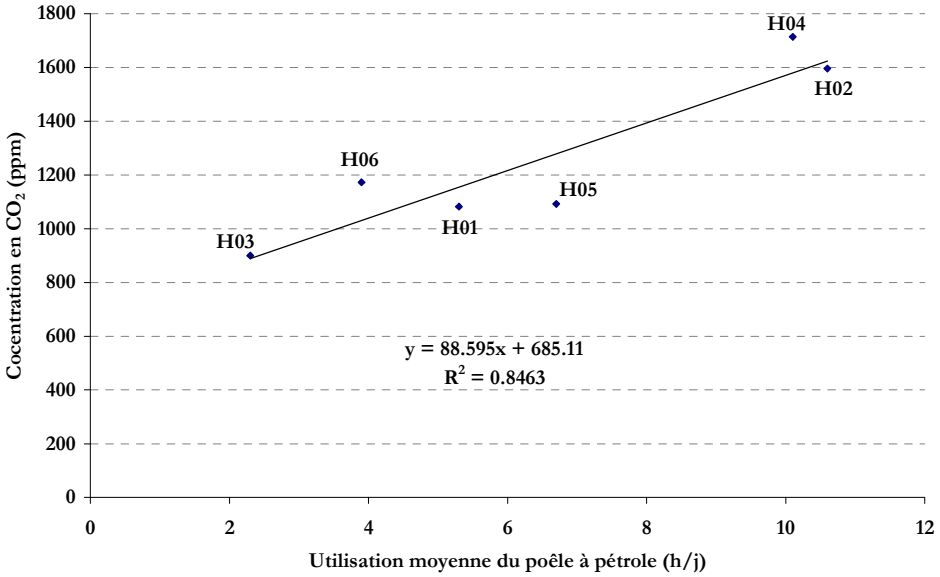


Figure 44. Concentration moyenne hebdomadaire de CO_2 en fonction de la durée moyenne d'utilisation quotidienne du poêle à pétrole

V.4.2. MONOXYDE DE CARBONE

Les moyennes glissantes des concentrations de **monoxyde de carbone** mesurées sont calculées avec différents pas de temps pour faciliter la comparaison avec les valeurs guides en air intérieur préconisées par l'OMS, et regroupées dans le Tableau 37.

Volontaire	Valeur maximale (ppm)	Moyenne glissante maximale (ppm)		
		sur 1 h	sur 8 h	Sur 24 h
H01	0	0	0	0
H02	13	12	8	7
H03	6	5	4	3
H04	2	0	0	0
H05*	0	0	0	0
Valeur guide en air intérieur (OMS, 2010)	86 (sur 15 min)	30	9	6

* Mesures faites sur 4 jours

Tableau 37. Moyennes glissantes des concentrations de CO mesurées dans les logements

Les concentrations de CO mesurées dans les logements équipés de poêles à pétrole électroniques (H01, H04 et H05) sont quasi nulles. Cela n'est pas étonnant puisque le poêle électronique que nous avions testé en laboratoire, similaire à ceux utilisés par les volontaires, émet peu de CO, et seulement à l'allumage.

Il n'y a aucun dépassement de la valeur guide sur 15 minutes ou sur 1 h. En revanche les concentrations mesurées dans le logement H02 sont du même ordre de grandeur que la limite préconisée par l'OMS sur 8 et 24

h. Ce logement ne possède pas de garage attenant, et la seule source de CO, autre que le poêle à pétrole, peut être la cheminée, utilisée pendant une trentaine d'heures pendant la semaine, soit un peu plus de 4 h par jour. Néanmoins la source la plus probable de CO reste le poêle à pétrole à mèche, âgé d'une dizaine d'années, jamais révisé ni entretenu, et qui a fonctionné en moyenne 10 h 30 par jour pendant la semaine de mesures. Paradoxalement, le volontaire déclare utiliser son poêle à pétrole en tant que chauffage d'appoint. L'influence de l'entretien du poêle sur les émissions de CO n'est pas clairement établie. Les volontaires H02 et H03 possèdent tous deux un poêle à mèche dont le second a été révisé une fois par un professionnel.

L'agencement du logement et la position de la sonde Dräger ont certainement une influence sur les concentrations de CO mesurées, mais la différence observée entre H02 et H03 peut potentiellement être due à la révision du poêle H03. La mesure des facteurs d'émission de ces appareils de chauffage au laboratoire pourrait confirmer cette hypothèse.

Les niveaux de concentration de CO relevés dans les logements sont bien inférieurs aux 61 ± 24 ppm mesurées au sein d'un dortoir à l'université de Jérusalem par Amitai et al. [*1998*], probablement en raison de la taille des pièces, mais peut-être également en raison du modèle de poêle. La concentration maximale obtenue lors de notre étude n'excède pas non plus les 24 ppm relevées par Chambon et Schadkowski [*2004*] parmi 23 logements du Nord-Pas-de-Calais. Nos mesures sont en revanche sensiblement identiques à celles réalisées par Cooper et Alberti [*1984*] dans 14 logements américains situés en Virginie avec une moyenne de 6,8 ± 5,9 ppm, un minimum de 0 et un maximum de 14 ppm pour une durée de mesure variant entre 1 et 24 h.

V.4.3. TEMPERATURE ET HUMIDITE

La température moyenne hebdomadaire des logements est comprise entre 15 et 20 °C (Tableau 38). Ces températures sont inférieures à la médiane de 21 °C relevée dans 517 logements par l'OQAI en 2003-2005, dont les températures étaient comprises entre 12,5 et 29,2 °C [*OQAI, 2007*]. L'humidité relative moyennée sur la durée des prélèvements est comprise entre 38 et 63 %. Deux logements dépassent la valeur médiane de 49,5 % fournie par l'OQAI (fourchette comprise entre 21 et 81 %).

Volontaire	Paramètres de confort des logements (moyenne sur la durée des mesures)		
	Température (°C)	Humidité relative (%)	Concentration d'eau (molécules.cm^{-3})
H01	16,1 ± 2,6	63 ± 3	$2{,}9.10^{17}$ ± $4{,}6.10^{16}$
H02	19,9 ± 1,7	38 ± 7	$2{,}2.10^{17}$ ± $3{,}8.10^{16}$
H03	19,0 ± 1,5	49 ± 2	$2{,}7.10^{17}$ ± $3{,}0.10^{16}$
H04	19,1 ± 2,0	47 ± 3	$2{,}6.10^{17}$ ± $2{,}8.10^{16}$
H05*	14,8 ± 2,6	54 ± 3	$2{,}3.10^{17}$ ± $4{,}0.10^{16}$
H06	19,1 ± 1,7	49 ± 5	$2{,}7.10^{17}$ ± $4{,}0.10^{16}$

* Mesures faites sur 4 jours

Tableau 38. Température et humidité relative moyenne chez les volontaires

L'écart-type de température du logement H03 donné dans ce tableau ne reflète pas les fluctuations dues à l'emploi du poêle à pétrole, mais il est le reflet d'une ligne de base, à tendance plutôt croissante sur la semaine de mesures, avec une influence possible de la température extérieure.

L'humidité relative est la plus élevée chez le volontaire H01, qui déclare dans le questionnaire « Cadre de vie » qu'il trouve que l'air de son logement est parfois humide (traces de condensation sur les vitres). Les teneurs en eau mesurées chez les volontaires H03 et H06 sont les mêmes. Ils signalent tous deux oberver parfois des traces de condensation sur les vitres (particulièrement sur les vitres de la chambre chez H06), mais aucune trace de moisissure. Le volontaire H04 signale dans le questionnaire « Cadre de vie » qu'il observe parfois de la condensation sur les vitres de son logement, et qu'il y a des traces de moisissure dans la chambre, mais il est difficile de les corréler à l'utilisation du poêle à pétrole dans le salon. Les volontaires H02 et H05 n'ont pas constaté de moisissure ou de condensation dans leur logement (exception faite lors des activités de cuisine ou lors des bains dans le logement H02).

V.4.4. OXYDES D'AZOTE ET COV

Les résultats d'analyse des badges passifs Ogawa, UME^{x} 100 et G.A.B.I.E.™ sont regroupés dans le Tableau 39. Ils sont mis en parallèle avec les durées d'utilisation moyenne des poêles à pétrole et des gazinières par les occupants des logements.

Logement	Pièce échantillonnée	Durée du prélèvement (jours)	Utilisation moyenne quotidienne (h/j)		Concentration (ppb)			Autres COV détectés
			Poêle à pétrole	Gazinière	NO_2	NO_x	Formaldéhyde	
H01	Bureau	3	5,2	0,7	103	252	-	-
		4	4,4	0,8	95	226	-	-
		7	5,3	0,7	89	232	10	toluène, éthylbenzène, xylènes
	Salon	3			71	178	-	-
		4			66	148	-	-
		7			54	139	7	éthylbenzène, xylènes
H02	Couloir	7	10,6	1,1 (électrique)	38 ± 3 (n=2)	64 ± 7 (n=2)	12	toluène, xylènes
H03	Salon	7	2,3	0	16	54	8	toluène, octane, xylènes, nonane
H04	Salon	7	10,1	0,3	118	716	7	toluène, xylènes, α-pinène
H05	Salon	4	6,7	0,4	33	271	8	n.d.
H06	Salon	7	3,9	1,0 (électrique)	31	186	8	trichloréthylène, toluène, octane, xylènes, nonane

Tableau 39. Résultats des prélèvements passifs de NO_x, formaldéhyde et COV (n.d.: non détecté)

Des prélèvements de NO_x sont faits à deux reprises dans plusieurs pièces du logement H01, pendant différentes durées (3, 4 et 7 jours). Le but est de détecter une éventuelle saturation des filtres, car leur capacité maximale d'adsorption n'est pas connue. En raison d'une durée d'exposition plus importante dans le logement que lors d'essais en laboratoire (1 à 3 h 30 en enceinte expérimentale), le protocole analytique des badges Ogawa a dû être modifié. En effet, le premier lot de badges exposés a conduit à la saturation du spectrophotomètre UV. L'absorbance ne pouvant dépasser 2 sur le modèle utilisé, nous n'avons pu en déduire que des valeurs minimales de teneur en NO_x, correspondant à des solutions trop concentrées en nitrites et pour lesquelles la loi de Beer-Lambert [1] ne s'applique plus. Une étape de dilution a donc été ajoutée au protocole et testée avec succès lors des analyses du deuxième lot de badges. Ce changement de protocole analytique permet aussi de conserver une partie de l'échantillon pour renouveler les analyses en cas de besoin (nouvelle dilution si l'absorption est encore trop importante, ou utilisation de l'échantillon pur dans le cas contraire).

Les teneurs en NO_x sont plus élevées dans le bureau que dans le salon, en raison de la présence du poêle à pétrole. On note en revanche que les oxydes d'azote se dispersent dans toute la maison, en particulier jusqu'à la chambre située à l'étage (20 - 30 ppb de NO_2 sur 3 à 7 jours d'exposition du badge). Le poêle à pétrole n'est pas le seul appareil en cause, puisque la gazinière a également fonctionné pendant la semaine de prélèvement, générant ainsi des oxydes d'azote (8 h 30 de fonctionnement pendant les 7 jours de prélèvement pour la gazinière, 68 h pour le poêle à pétrole).

Dans le logement H02, les prélèvements sont réalisés simultanément sur deux badges Ogawa placés au même endroit, et les résultats sont identiques à 10 % près.

La Figure 45 représente les niveaux d'oxydes d'azote mesurés en fonction de la durée de fonctionnement quotidienne moyenne du poêle à pétrole. Il est difficile de trouver une corrélation directe entre la durée de fonctionnement du poêle et les concentrations mesurées par badges passifs, en raison d'une part de leur localisation puisqu'ils ne sont pas systématiquement à la même distance du poêle (distance particulièrement grande dans le logement H02), mais aussi en raison des autres sources de NO_x présentes dans les différents logements (en particulier plusieurs autres poêles à pétrole dans le logement H04, dont le fonctionnement n'a pas été renseigné).

[1] Rappel de la loi de Beer-Lambert : $A = \varepsilon l C$, avec A : absorbance ; ε: coefficient d'absorption molaire en $L.mol^{-1}.cm^{-1}$; l : largeur de la cuve en cm ; et c : concentration de la solution en $mol.L^{-1}$.

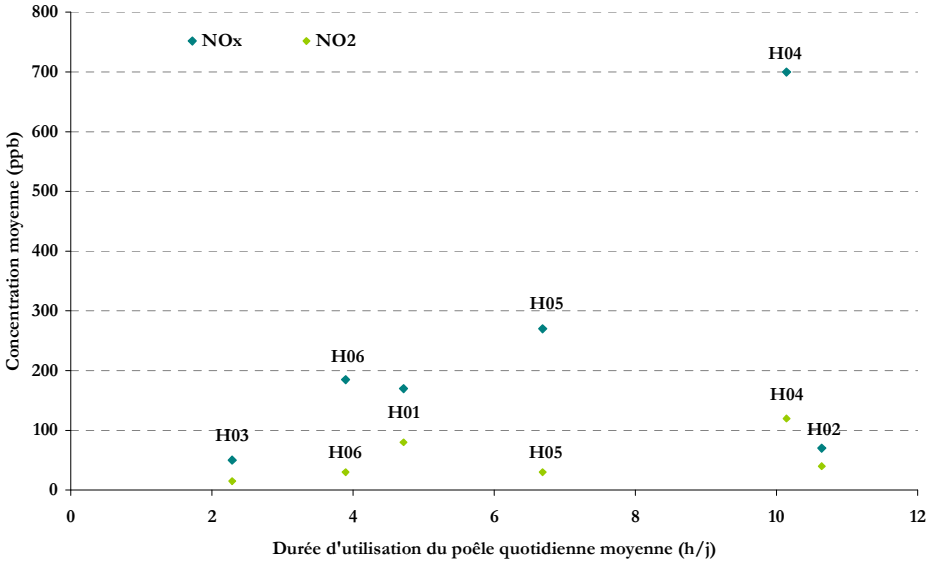


Figure 45. Niveaux de concentration de NO_2 et NO_x en fonction de la durée moyenne d'utilisation quotidienne du poêle à pétrole

Les concentrations calculées à partir des prélèvements sur badges passifs sont plus difficilement comparables aux valeurs guides en air intérieur. En effet, l'OMS [*2010*] préconise des valeurs guides pour le dioxyde d'azote sur 1 h (105 ppb) et sur 1 an (21 ppb). Un logement dépasse le seuil de 105 ppb (H04), peut-être en raison du fonctionnement simultané de plusieurs poêles à pétrole. Le logement H01 est à la limite avec 103 ppb mesurés sur 3 jours. Les concentrations de NO_2 chez les six volontaires sont globalement comprises entre une dizaine et une centaine de ppb. Les concentrations de NO_x sont comprises entre une cinquantaine et quelques centaines de ppb (jusqu'à environ 700 ppb chez H04).

Des mesures de terrain ont été réalisées dans des logements équipés de poêles à pétrole, dans plusieurs pays. Un niveau moyen de concentration de NO_2 égal à 114,5 ppb a été mesuré au Japon par Kawamoto et al. [*1993*]. Plus récemment, Ruiz et al. [*2010*] ont mesuré une concentration moyenne de NO_2 égale à 65,4 ± 15,9 ppb dans des logements chiliens équipés de poêles à pétrole, tandis qu'un niveau de 26 ppb est mesuré dans des logements témoins. Nos mesures sont en bon accord avec les résultats de ces études antérieures.

Concernant le formaldéhyde, les concentrations mesurées par prélèvement passif sont comprises entre 7 et 12 ppb pour l'ensemble des logements. Ces valeurs ne dépassent ni la valeur guide de l'OMS [*2010*] sur 30 minutes (80 ppb), ni la valeur guide de l'ANSES [*2007*] sur 2 h (40 ppb). En revanche, le niveau de concentration est du même ordre de grandeur que la valeur guide donnée par l'ANSES pour une exposition à long terme (< 1 an) de 8 ppb. Nos mesures sont inférieures au niveau de concentration de formaldéhyde en air intérieur recommandé en France de 25 $\mu g.m^{-3}$ (soit 16 ppb) rapporté par Mosqueron et Nedelec [*2004*] et Mandin [*2005*].

Des prélèvements actifs de composés carbonylés ont été réalisés dans le logement H01. L'air du bureau (pièce où fonctionne le poêle) a été prélevé par pompage sur cartouche DNPH pendant environ deux heures, à trois moments de la semaine indiqués sur la Figure 46.

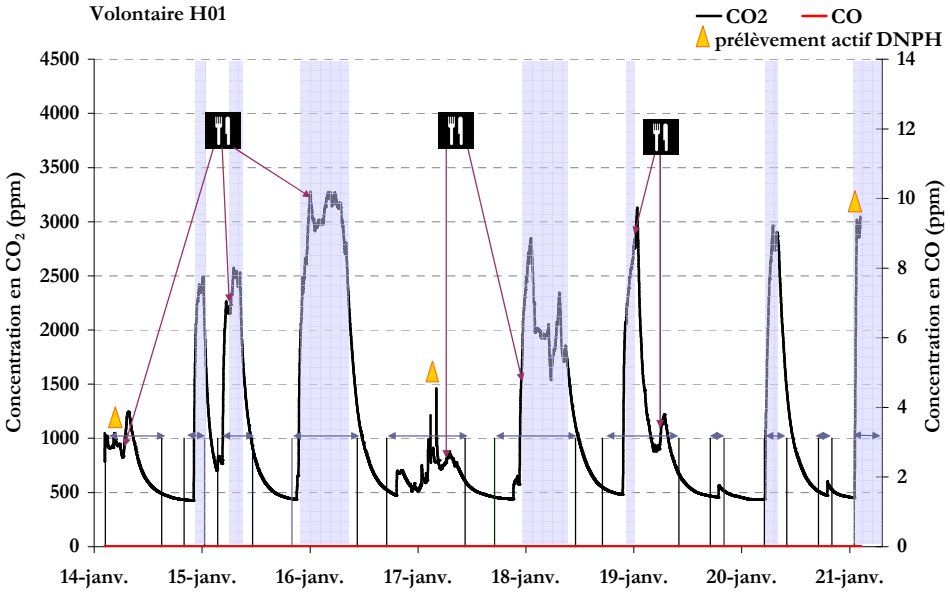


Figure 46. Prélèvements de composés carbonylés par pompage sur cartouche DNPH chez H01

Les composés carbonylés recherchés et quantifiés figurent dans le Tableau 40. L'acroléine et le crotonaldéhyde n'ont pas été détectés par notre méthode.

Composé	formaldéhyde	acétaldéhyde	acétone	propionaldéhyde	méthacroléine	2-butanone/butyraldéhyde	benzaldéhyde	valéraldéhyde	tolualdéhyde	hexaldéhyde
14/01/2011	0,53	0,24	0,84	0,03	0,01	0,06	0,02	0,05	0,01	0,08
17/01/2011	0,31	0,23	0,57	0,03	0,01	0,06	0,02	0,06	0,01	0,07
21/01/2011	0,69	0,51	0,64	0,04	0,01	0,06	0,02	0,05	0,01	0,08

Tableau 40. Concentration (en ppb) des composés prélevés sur cartouche DNPH chez H01

Les résultats montrent des concentrations très faibles de composés carbonylés dans le bureau. Il n'y a pas de différence significative entre les mesures réalisées pendant le fonctionnement du poêle (le 21 janvier), et lorsqu'il est éteint (14 et 17 janvier). Le poêle à pétrole ne semble pas être une source significative de composés carbonylés dans ce logement par rapport au niveau de fond.

Des COV ont été détectés mais non quantifiés dans l'ensemble des logements à l'exception de H05, chez qui aucun autre COV n'a été détecté. Le benzène n'a pas été identifié ; d'après les tests en laboratoire, le benzène est essentiellement émis à l'allumage du poêle, et sa mesure en conditions réelles est plus délicate à cause d'un effet de dilution important, en raison du grand volume des logements.

Les badges G.A.B.I.E.™ sont adaptés aux mesures de terrain, en particulier en milieu professionnel. Le développement de la méthode analytique nécessite d'être poursuivi afin de quantifier ces composés lors d'une prochaine campagne de mesures.

V.4.5. CONCENTRATIONS ESTIMEES ET CONCENTRATIONS MESUREES EN LOGEMENT

Il est possible d'évaluer les concentrations stationnaires théoriques des différents polluants lors de l'utilisation des poêles à pétrole en conditions réelles d'utilisation, à partir des facteurs d'émission, du volume de la pièce, du taux de renouvellement d'air et des taux de décroissance des polluants considérés [*Traynor et al., 1982 ; Cáceres et al., 1983*]. Les taux de décroissance correspondent à la disparition des polluants par adsorption sur les surfaces et par réaction avec d'autres composés.

Le taux de décroissance des composés est évalué à 0 pour CO et NO, et proche de 1 dans le cas de NO_2 et SO_2 [*Cáceres et al., 1983*], bien que ces valeurs dépendent des matériaux et de l'ameublement de la pièce considérée. Le taux de décroissance du formaldéhyde n'est pas déterminé en raison de la durée d'échantillonnage, et il ne peut pas être déterminé avec la technique analytique que nous avons employée. Il n'est pas mentionné dans la littérature. Par conséquent, son taux de décroissance est considéré comme égal à zéro [*Cáceres et al., 1983*].

A partir des facteurs d'émission moyens des poêles à pétrole étudiés au laboratoire et donnés au chapitre IV, nous avons calculé les concentrations maximales attendues en tenant compte du volume et du taux de renouvellement d'air de chaque logement, ainsi que du type de poêle utilisé (à mèche ou électronique).

Le taux de renouvellement d'air de chaque logement est déterminé à partir de la décroissance du niveau de concentration de CO_2, gaz considéré comme inerte. Ce taux dépend de la taille et de la ventilation de la pièce considérée. Le volume des pièces pris en compte dans ce calcul n'est pas toujours clairement défini, car le poêle ne fonctionne généralement pas dans une pièce porte close. Il est difficile de décider s'il faut prendre en compte le volume de la pièce où fonctionne le poêle ou l'intégralité du volume du logement (hypothèse qui serait fausse en cas de portes fermées à l'intérieur du logement).

De plus, les taux de génération utilisés dans ce calcul sont ceux mesurés au laboratoire, et ne correspondent pas nécessairement aux poêles à pétrole des volontaires. Nous avons par conséquent ajouté un facteur correctif qui prend en compte la puissance des poêles des logements par rapport à ceux que nous avons utilisés. La puissance maximale des poêles électroniques a été prise en compte dans les calculs.

Enfin, le taux de génération a été pondéré par la durée d'utilisation moyenne quotidienne.

Les concentrations maximales estimées et les concentrations maximales mesurées dans les logements sont regroupées dans le Tableau 41.

Logement	V (m^3)	Taux de renouvellement d'air (h^{-1})	Type de poêle		NO_2	NO	NO_x	CO	CO_2	SO_2	HCHO	H_2O
H01	71	0,5	électronique	$C_{Estimée}$	0,045	0,198	0,243	1	1066	0,010	0,004	1211
				$C_{Mesurée}$	0,089	0,143	0,232	0	3260	-	0,010	8800
H02	200	0,6	mèche	$C_{Estimée}$	0,043	0,063	0,106	9	1242	0,014	0,008	1310
				$C_{Mesurée}$	0,038	0,026	0,064	13	3490	-	0,012	8800
H03	206	0,6	mèche	$C_{Estimée}$	0,009	0,013	0,022	2	262	0,003	0,002	277
				$C_{Mesurée}$	0,016	0,038	0,054	6	2765	-	0,008	8000
H04	223	0,5	électronique	$C_{Estimée}$	0,031	0,136	0,167	1	732	0,007	0,003	832
				$C_{Mesurée}$	0,118	0,598	0,716	2	3270	-	0,007	10000
H05	188	0,5	électronique	$C_{Estimée}$	0,024	0,107	0,131	1	574	0,005	0,002	652
				$C_{Mesurée}$	0,033	0,238	0,271	0	3265	-	0,008	8000
H06	104	0,5	électronique	$C_{Estimée}$	0,026	0,112	0,138	1	604	0,006	0,002	676
				$C_{Mesurée}$	0,031	0,155	0,186	-	4430	-	0,008	9600

Tableau 41. Concentrations mesurées et estimées dans les logements (en ppm)

Les concentrations mesurées dans les logements sont toujours supérieures aux concentrations maximales estimées à partir des facteurs d'émission des poêles à pétrole étudiés en laboratoire. Cette différence s'explique par la présence de plusieurs autres sources dans le logement, qui contribuent également aux niveaux de concentration mesurés. Les concentrations de NO_x sont cependant surestimées de 40 % par le calcul chez H02. Le choix des facteurs d'émission des polluants, considérés proportionnels à ceux déterminés en laboratoire, peut être une source d'erreur, tout comme le volume du logement utilisé pour ce calcul. Néanmoins, les mesures de terrain ne mettent pas en défaut les concentrations estimées.

V.4.6. COMPORTEMENT DES UTILISATEURS DE POELES A PETROLE

Parmi les raisons invoquées pour justifier l'utilisation de poêles à pétrole dans leur logement, la raison économique a été citée par 82 % des volontaires de l'étude menée par Chambon et Schadkowski [*2004*]. Concernant notre propre étude, les raisons d'utilisation de ces appareils sont variées. La moitié des volontaires déclare utiliser ce mode de chauffage pour des raisons économiques et pratiques. Deux participants apprécient l'efficacité de chauffage de leur poêle à pétrole et leur programmabilité. Un volontaire mentionne la simplicité d'utilisation de son poêle électronique. Deux foyers ont choisi cette solution de chauffage en attendant mieux, ou parce que leur logement n'est pas raccordé au gaz de ville.

Les niveaux de concentration de polluants dans les logements sont déterminés par un ensemble de caractéristiques de l'habitation (volume, taux de renouvellement d'air, isolation thermique, etc) et de comportement des habitants (aération, utilisation de sources de pollution, etc). Les questionnaires remplis par les participants ont permis d'établir un certain nombre de constats.

Deux volontaires déclarent utiliser leur poêle à pétrole en mode de chauffage principal. Or, au regard de la durée moyenne d'utilisation quotidienne sur la semaine, on constate que trois volontaires utilisent leur poêle à pétrole plus de six heures par jour. Les utilisateurs de poêles à pétrole n'ont pas nécessairement la notion d'appoint associée à l'usage de ces appareils de chauffage. Les notices des poêles à pétrole ne précisent d'ailleurs pas à l'utilisateur la durée maximale quotidienne de fonctionnement, comme précédemment souligné dans le chapitre I. Le même constat a été fait par Chambon et Schadkowski [*2004*]. Cela met en évidence une utilisation du poêle à pétrole en tant que source de chauffage principale (plus de 6 h par jour) dans 80 % des logements, alors que seulement 48 % déclaraient l'utiliser comme tel.

Tous les participants déclarent sentir des odeurs gênantes à l'allumage et à l'extinction de leur appareil, ce qui était déjà un des résultats de l'étude de Cooper et Alberti [*1984*], où 100 % des 29 volontaires sentaient une odeur caractéristique du poêle à pétrole à l'allumage et à l'extinction. Deux volontaires sentent ces odeurs pendant son fonctionnement. Ces odeurs ont également été signalées par 86 % des volontaires de l'étude menée

en 2003 dans le Nord-Pas-de-Calais [*Chambon et Schadkowski, 2004*]. Seul un volontaire dit aérer son logement pendant le fonctionnement du poêle à pétrole. On ne sait pas s'il aère ponctuellement à l'allumage et/ou l'extinction, auquel cas le pas de temps de 15 min de la fiche « Activités du logement » est inadapté, s'il a oublié de le renseigner, ou s'il n'a simplement pas aéré pendant la semaine de mesures, contrairement à ses habitudes. Il est possible que certaines notices ne précisent pas d'aérer à l'allumage ou à l'extinction, car souvent c'est le qualificatif de ventilation « suffisante » qui est mentionné. Les poêles à pétrole étant utilisés pour produire de la chaleur, les utilisateurs n'ouvrent pas les fenêtres pendant leur fonctionnement.

Un volontaire déclare faire fonctionner son poêle lorsqu'il dort ou pendant la nuit. La moitié des participants font fonctionner leur appareil pendant leur absence du domicile. Cela révèle un comportement non conforme aux prescriptions de sécurité fournies avec les appareils.

Les filtres de deux poêles électroniques sont nettoyés régulièrement par leurs propriétaires. Un poêle à mèche et un poêle électronique ont fait l'objet d'une révision par un professionnel trois ans après leur achat, soit deux ans avant la réalisation de la campagne de mesures. L'entretien des poêles est donc effectif pour quelques utilisateurs, mais pas pour l'ensemble.

V.4.7. CONNAISSANCES RELATIVES AUX RISQUES D'UTILISATION DE POELES A PETROLE

Les risques générés par l'utilisation de poêles à pétrole ne sont pas connus de l'ensemble des participants de cette campagne de mesures. En effet, en réponse au questionnaire sur les risques relatifs à l'utilisation d'un poêle à pétrole, deux volontaires ont déclaré ignorer le risque d'incendie et un volontaire ignorait les risques de brûlures.

Concernant le risque d'émission de CO, trois volontaires ont déclaré le connaître, deux volontaires « un peu » et un volontaire « pas du tout ». Les conséquences d'une inhalation trop prolongée ou trop importante de CO sont connues par 5 volontaires. En revanche toutes les personnes ont su dire à l'enquêteur quel comportement adopter afin d'éviter une intoxication au CO. Aucun logement n'était pour autant équipé d'un détecteur de CO.

L'information sur ces risques n'a majoritairement pas été faite lors de l'achat du poêle à pétrole en magasin. En effet, 5 foyers ont déclaré ne pas avoir été informés des risques liés aux poêles à pétrole par un vendeur lors de l'achat et un volontaire ne se rappelle pas. Ces données vont dans le même sens que celles récoltées lors de la campagne de mesures menée par Chambon et Schadkowski [*2004*], indiquant que 87 % des volontaires se déclaraient non sensibilisés par un vendeur aux risques potentiels de l'utilisation d'un poêle à pétrole. Dans notre étude, l'information sur les risques est essentiellement passée par la notice d'utilisation de l'appareil. Or, bien que

trois volontaires aient déclaré être suffisamment informés par la notice d'utilisation sur les risques liés au CO et les précautions à prendre, un volontaire l'a jugée insuffisante, un volontaire ne sait pas, et le dernier déclare ne pas l'avoir lue.

V.5. CONCLUSION

La campagne de mesures menée dans six maisons individuelles avait pour but d'évaluer l'exposition effective des personnes aux polluants émis par les chauffages d'appoint à pétrole, par la recherche de composés identifiés en laboratoire. Elle nous a permis de tester nos outils méthodologiques pour la collecte des données, de mettre en oeuvre nos protocoles analytiques et de proposer des pistes d'amélioration.

Chaque foyer volontaire a été équipé, pendant une semaine, d'un badge Ogawa spécifique aux émissions de NO_x et NO_2, d'un badge G.A.B.I.E.™ pour le prélèvement passif des COV, d'un badge UME^x 100 spécifique au formaldéhyde, d'une sonde environnementale pour la mesure de la température, de l'humidité relative et de CO_2, ainsi que d'un appareil portable mesurant le niveau de CO.

Nous avons ajusté nos protocoles d'analyse aux prélèvements réalisés en conditions réelles, de façon à préparer une campagne de mesures. Les niveaux de concentration de CO et CO_2, ainsi que la température et l'humidité présentent de grandes variations d'un logement à l'autre. Les causes sont liées au comportement des utilisateurs (s'ils utilisent leur poêle à pétrole comme source de chauffage principale ou d'appoint, s'ils cuisinent, etc.), au volume du logement, à son isolation thermique et aux conditions de ventilation.

CO_2 est un excellent indicateur du fonctionnement des poêles à pétrole dans les six logements considérés, et sa teneur révèle un manque d'aération pour l'ensemble des maisons étudiées.

Un logement a présenté un niveau moyen de CO voisin de la recommendation de l'OMS en air intérieur sur 8 h (9 ppm) et sur 24 h (6 ppm), les niveaux des autres logements étant inférieurs.

Les niveaux de concentrations de NO_x mesurés sont variables d'un logement à l'autre, et probablement influencés par la distance de prélèvement au poêle à pétrole et par la présence d'autres sources. Deux logements dépassent ou avoisinent la recommandation de l'OMS concernant la concentration de NO_2 sur 1 h (105 ppb).

Le formaldéhyde est présent en quantité non inquiétante dans l'ensemble des logements et son niveau de concentration ne dépasse aucune des recommendations de l'OMS ou de l'ANSES. D'autres COV sont identifiés, mais non quantifiés (toluène, éthylbenzène, xylènes, octane, nonane, α-pinène et trichloréthylène). La méthode d'analyse des COV par prélèvement sur badges G.A.B.I.E.™ nécessite d'être davantage développée pour quantifier les composés détectés dans les logements.

La mesure des polluants extérieurs (CO et NO_x en particulier), à proximité du logement s'avère également nécessaire, en particulier pour les logements proches de sources de pollution importantes qui peuvent avoir un impact non négligeable sur la qualité de l'air intérieur.

Nous avons pu confronter nos résultats de laboratoire avec les mesures de terrain, et constater que nos résultats ne sont pas nécessairement généralisables à l'ensemble des poêles à pétrole. Des difficultés supplémentaires d'interprétation des résultats engendrées par des configurations de logement et des utilisations différentes d'un foyer à l'autre peuvent l'expliquer. Par exemple, avec les poêles électroniques, il n'a pas été possible de mettre en évidence une production de NO_x supérieure aux émissions des poêles à mèche. La relation entre les niveaux de CO et de suies présentes sur le poêle à pétrole n'a également pas été faite, car l'accumulation de suies sur le poêle n'a pas été renseignée par l'enquêteur.

Cette campagne de mesures a permis de mettre en avant un certain nombre de points de vigilance, relatifs à son déroulement et aux résultats obtenus. Les questionnaires doivent être davantage adaptés aux situations différentes d'un logement à l'autre, et pour cela la formation des enquêteurs est essentielle. Ils doivent être capables de prendre du recul par rapport aux questionnaires et avoir l'esprit critique par rapport à ce que peuvent dire les volontaires, afin que toute information utile à l'interprétation des résultats soit consignée dans le dossier du logement échantillonné. L'exploitation des données recueillies nécessite un traitement dans un laps de temps le plus court possible, en mettant en parallèle les mesures de CO et CO_2 avec les activités du logement, afin d'identifier d'éventuelles incohérences et de faire des vérifications auprès des volontaires, ou des mesures complémentaires. Il est encore nécessaire d'améliorer les questionnaires, avec les pistes suivantes :

- Concernant la ventilation, faire vérifier le fonctionnement des VMC par l'enquêteur, et se renseigner sur l'entretien qui en est fait. Se renseigner sur le fonctionnement effectif des hottes lors des activités de cuisine en cas d'utilisation de gazinières.
- Même si le poêle ne fonctionne pas dans une pièce, mais par exemple dans un couloir (cas du logement H02), il faut toujours faire préciser la ventilation du lieu où fonctionne le poêle à pétrole.
- Concernant les plans du logement, un plan à l'échelle serait idéal, mais difficilement réalisable en pratique. Par contre, il est nécessaire de faire identifier par l'enquêteur le volume dans lequel les émissions du poêle à pétrole diffusent, et de mieux préciser la localisation d'autres sources de pollution (chauffe-eau, chaudière, gazinière…).
- Concernant les autres sources de pollution, il est nécessaire d'apporter des précisions sur les axes routiers les plus proches du domicile (type de route en particulier), et de réaliser des prélèvements en air extérieur. Il faut revoir l'agencement des colonnes de la fiche « Activités du logement » pour permettre aux volontaires ayant plusieurs types de chauffage de renseigner correctement leur utilisation (souvent pas un seul chauffage principal, mais plusieurs sources).
- Il est souhaitable d'ajouter une question sur l'éventuel ou les éventuels déplacements du poêle à pétrole pendant la semaine de mesures.
- La question sur le nombre de fumeurs dans le logement doit être agrémentée d'une précision sur le lieu de consommation des cigarettes (intérieur du logement ou extérieur).

- Concernant la perception des odeurs par l'utilisateur, il faut faire préciser si l'odeur est également sentie pendant le fonctionnement du poêle à pétrole, et demander s'il aère à l'allumage et à l'extinction de l'appareil de façon ponctuelle et non reportée sur la fiche « Activités du logement ».
- A propos de l'entretien du filtre des poêles à pétrole électroniques, faire préciser par le volontaire le type d'entretien réalisé (aspirateur, chiffon, lavage à l'eau…).
- Concernant la révision des poêles, renseigner le prix de la révision et la façon de trouver un professionnel pour la réaliser.
- A propos du changement de carburant, en plus de demander où le volontaire a acheté son nouveau carburant, faire préciser si c'est au même endroit que la fois précédente. Revoir la question portant sur la désaromatisation, et n'y répondre que si le combustible est particulièrement désaromatisé.

Amitai Y., Zlotogorski Z., Golan-Katzav V., Wexler A. and Gross D. (1998). Neuropsychological impairment from acute low-level exposure to carbon monoxide. *Arch. Neurol.*, 55 : 845-848.

ANSES (2007). Valeurs guides de qualité d'air intérieur : le formaldéhyde. *Rapport du groupe de travail Afsset*, 83 p (disponible sur www.afsset.fr le 04/11/2011).

APPA (2003). Les « Sentinelles de l'air » - Etude de l'exposition individuelle aux NO_x, CO et BTEX dans les agglomérations de Lille et Dunkerque. Bilan de deux campagnes de mesures. *Rapport APPA Nord-Pas-de-Calais*, 150 p.

Buzica D., Gerboles M. and Amantini L. (2003). Laboratory and field inter-comparisons of NO_2 diffusive samplers. *EUR report 20860*, 33 p. (disponible sur http://publications.jrc.ec.europa.eu le 21/11/2011.)

Bytnerowicz A., Tausz M., Alonso R., Jones D., Johnson R. and GrulkeN. (2002). Summer-time distribution of air pollutants in Sequoia National Park, California. *Environ. Pollut.*, 118 : 187-203.

Cáceres T., Soto H., Lissi E. and Cisternas R. (1983). Indoor house pollution : appliance emissions and indoor ambient concentrations. *Atm. Environ.*, 17(5) : 1009-1013.

Chambon C. et Schadkowski C. (2004). Diagnostic de l'impact des feux à pétrole sur le monoxyde de carbone dans les logements. *Rapport APPA Nord-Pas-de-Calais*.

Cooper K.R. and Alberti R.R. (1984). Effect of kerosene heater emissions on indoor air quality and pulmonary function. *Am. Rev. Respir. Dis.,* 129 : 629-631.

Delcourt J. and Sandino J.P. (2000). Exposition professionnelle aux solvants - Comparaison des badges GABIE® et 3M®. *INRS Cahiers de notes documentaires - Hygiène et sécurité du travail*, 180 : 61-66, 3ème trimestre 2000.

Glasius M., Carlsen M.F., Hansen T.S. and Lohse C. (1999). Measurements of nitrogen dioxide on Funen using diffusion tubes. *Atm. Environ.*, 33 : 1177-1185.

Górecki T. and Namieśnik J. (2002). Passive sampling. *Trends in Analytical Chemistry,* 21(4) : 276-291.

Griess P. (1879). Bemerkungen zu der abhandlung der H.H. Weselsky und Benedikt "Ueber einige azoverbindungen". *Chem. Ber.*, 12 : 426-428.

Hafkenscheid T., Fromage-Mariette A., Goelen E., Hangartner M., Pfeffer U., Plaisance H., De Santis F., Saunders K., Swaans W., Tang Y.S., Targa J., Van Hoek C. and Gerboles M. (2009). Review of the application of diffusive samplers in the European Union for the monitoring of nitrogen dioxide in ambient air. *JRC Scientific and Technical Reports,* EUR 23793 EN - 2009, 80 pages.

Kawamoto T., Matsuno K., Arashidani K., Yoshikawa M., Kayama F. and Kodama Y. (1993). Personal exposure to nitrogen dioxide from indoor heaters and cooking stoves. *Arch. Environ. Contam. Toxicol.,* 25 : 534-538.

Krupa S.V. and Legge A.H. (2000). Passive sampling of ambient gaseous air pollutants: an assessment from an ecological perspective. *Environmental Pollution,* 107 : 31-45.

Lee S.C. and Wang B. (2006). Characteristics of emissions of air pollutants from mosquito coils and candles burning in a large environmental chamber. *Atm. Environ.*, 40(12) : 2128-2138.

Levin J.-O., Lindhal R. and Andersson K. (2007). Determination of formaldehyde using the SKC UME^{x} 100 diffusive sampler. *SKC Inc. research report n°1608*, 7 p (disponible sur www.skcinc.com le 21/11/2011).

Liard R., Zureik M., Le Moullec Y., Soussan D., Glorian M., Grimfeld A. and Neukirch F. (1999). Use of personal passive samplers for measurement of NO_2, NO, and O_3 levels in panel studies. *Environmental Research Section A*, 81 : 339-348.

Mandin C. (2005). Formaldéhyde : état des lieux des techniques analytiques et niveaux de concentration mesurés. *Rapport final LCSQA*, INERIS-DRC/ERSA-05-65005-CMa-242, 17 p (disponible sur le site www.lcsqa.org le 04/11/2011).

Mosqueron L., Momas I. and Le Moullec Y. (2002). Personal exposure of Paris office workers to nitrogen dioxide and fine particles. *Occup. Environ. Med.*, 59 : 550-556.

Mosqueron L. et Nedellec V. (2004). Inventaire des données françaises sur la qualité de l'air à l'intérieur des bâtiments : actualisation des données sur la période 2001-2004. *Rapport final OQAI n°2004-10*, 61 p (disponible sur le site de l'OQAI).

Mukerjee S., Smith L.A., Norris G.A., Morandi M.T. Gonzales M., Noble C.A., Neas L.M. and Ozkaynak A.H. (2004). Field method comparison between passive air sampling and continuous monitors for VOCs and NO_2 in El Paso, Texas. *J. Air & Waste Manage. Assoc.*, 54 : 307-319.

Myers G.E. (1983). Formaldehyde emission from particleboard and plywood panelling: measurement, mechanism, and product standards. *Forest Products Journal,* 33(5) : 27-37.

Nazaroff W.W. and Weschler C. (2004). Cleaning products and air fresheners: exposure to primary and secondary air pollutants. *Atm. Environ.*, 38(18) : 2841-2865.

OMS (2010). WHO guidelines for indoor air quality: Selected pollutants. Copenhagen, *WHO Regional Office for Europe, 454 pp.*

OSHA Method 1007 (2005). Formaldehyde (Diffusive samplers), May 2005. (disponible en ligne sur www.osha.gov le 09/12/2009).

OQAI (2007). Campagne nationale logements : état de la qualité de l'air dans les logements français. *Rapport final*, 183 p (disponible sur www.developpement-durable.gouv.fr le 04/11/2011).

Ruiz P.A., Toro C., Cáceres J., Lopez G., Oyola P. and Koutrakis P. (2010). Effects of gas and kerosene space heaters on indoor air quality : A study in homes of Santiago, Chile. *J. Air & Waste Manage. Assoc.* 60 : 98-108.

Sather M., Slonecker E., Matthew J., Daughtrey H and Williams D. (2007). Evaluation of Ogawa passive sampling devices as an alternative measurement method for the nitrogen dioxide annual standard in El Paso, Texas. *Environ. Monit. Assess.*, 124 : 211-221.

Schadkowski C. (2003). Exposition individuelle aux oxydes d'azote et au monoxyde de carbone: premiers résultats de l'étude "Sentinelles de l'air" en région Nord-Pas-de-Calais. *Air pur*, 64 : 14-29.

Singer B.C., Hodgson A.T., Hotchi T. and Kim J.J. (2004). Passive measurement of nitrogen oxides to assess traffic-related pollutant exposure for the East Bay Children's Respiratory Health study. *Atm. Environ.,* 38 : 393-403.

SKC (2004). EPA IP-6 method update : Determination of formaldehyde and other aldehydes in indoor air. *SKC publication 1661 revision 1001*, 31 p (disponible sur www.skcinc.com le 04/11/2011).

SKC (2007). UME^{x} 100 Passive Sampler for formaldehyde operating instructions. 4 p (disponible sur www.skcinc.com le 04/11/2011.)

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

Yu C.H., Morandi M.T. and Weisel C.P. (2008). Passive dosimeters for nitrogen dioxide in personal/indoor air sampling : a review. *Journal of Exposure Science and Environmental Epidemiology*, 18 : 441-451.

CONCLUSION GENERALE

La dénomination « poêles à pétrole » regroupe plusieurs types d'appareils, se différenciant principalement par le système d'introduction du carburant dans la chambre de combustion (mèche imprégnée ou injection). Les appareils commercialisés en France répondent aux critères de la norme NF-128, qui ne fixe des concentrations maximales que pour l'émission de CO, CO_2 et NO_x, dans des conditions contrôlées de laboratoire. Lors de leur utilisation en conditions réelles, seule la teneur en CO_2 est contrôlée. Ces normes, qui permettent de contrôler les produits disponibles à la vente et d'éviter la présence de produits dangereux sur le marché, ont une portée limitée car elles laissent supposer que l'usage de poêles à pétrole est totalement inoffensif. Ces poêles se distinguent cependant des autres sources de chauffage par leur absence d'évacuation des produits de combustion vers l'extérieur du logement, et on dénombre chaque année de nombreuses intoxications oxycarbonées qui peuvent leur être imputées, notamment en Région Nord-Pas-de-Calais.

Une étude bibliographique portant sur les émissions des poêles à pétrole a montré que les seules données disponibles sont anciennes et ne reflètent ni l'évolution de la qualité des carburants et les avancées technologiques des poêles à pétrole, ni les disparités qui peuvent exister entre les pays (différences de législation portant sur les carburants, type de modèles en vente…). De plus, les résultats sont parfois difficilement comparables ou exploitables en raison de la diversité des protocoles de mesure des polluants (mesures de terrain, mesures en chambres environnementales de tailles et de configurations variées…). Ces données bibliographiques nous ont néanmoins fourni des indications sur les composés émis les plus préoccupants tels que CO, NO_x, SO_2, le benzène, le formaldéhyde, les particules, les HAP et les nitro-HAP). Notre objectif a donc été d'actualiser les facteurs d'émissions de polluants, en utilisant des modèles récents de poêles à pétrole et les carburants disponibles sur le marché, actuellement en Région Nord-Pas-de-Calais.

Deux modèles de poêles à pétrole ont été étudiés au laboratoire dans une enceinte expérimentale instrumentée de 8 m^3 : un poêle à mèche radiant, et un poêle soufflant à régulation électronique. Ces deux poêles ont été achetés au début de l'étude, et ont été utilisés sans modification, afin de reproduire les conditions habituelles d'utilisation de ce type d'appareil. Les produits de combustion gazeux majoritairement émis par les deux types de poêles à pétrole testés en laboratoire sont le dioxyde de carbone CO_2, l'eau H_2O et les oxydes d'azote NO_x.

En plus d'une émission continue pendant le fonctionnement des poêles, on note une émission transitoire de polluants lors de l'allumage, notamment de monoxyde de carbone et de particules, mais aussi de formaldéhyde et de benzène, émission liée à une température de combustion plus faible lors de l'allumage. Les concentrations augmentent rapidement pendant les dix premières minutes de fonctionnement pour atteindre une valeur

maximale, avant de décroître. Inversement, le dioxyde de soufre, les oxydes d'azote et le dioxyde de carbone sont produits pendant toute la durée de fonctionnement du poêle à pétrole.

L'influence du type de poêle a été mise en évidence par la quantification des émissions, avec notamment un facteur d'émission de NO_x plus important pour le poêle électronique que pour le poêle à mèche. Les émissions de CO sont plus faibles dans le cas du poêle électronique. Lors de l'usage du poêle à mèche, des suies s'accumulent sur les parois, conduisant à une augmentation du facteur d'émission de CO, provenant de l'oxydation de la suie et non directement de la combustion du kérosène. Ceci peut effectivement engendrer des intoxications oxycarbonées aiguës ou chroniques. L'entretien du poêle à mèche est ainsi un paramètre important.

Concernant le poêle à mèche, les facteurs d'émission de NO obtenus sont de l'ordre de 130 $\mu g.g^{-1}$, à l'exception d'un carburant « bio », contenant des esters méthyliques d'huile végétale, pour lequel le facteur d'émission est de 260 $\mu g.g^{-1}$. Ces facteurs d'émission sont proches de ceux déterminés lors d'une étude récente, mais supérieurs de quelques dizaines de $\mu g.g^{-1}$ aux facteurs d'émissions des études plus anciennes. Avec le poêle à mèche les facteurs d'émission de NO_2 sont d'environ 140 $\mu g.g^{-1}$, légèrement plus faibles que ceux reportés dans les études précédentes, proches de 200 $\mu g.g^{-1}$. La seule exception est là encore le carburant « bio », qui produit 340 µg de NO_2 par gramme de carburant consommé. L'inadéquation de ce carburant avec le poêle à mèche reste inexpliquée.

Les facteurs d'émission de CO en régime continu, comme pendant les premiers instants de la combustion, sont faibles, de 1 à 4 $mg.g^{-1}$, comparables aux facteurs d'émission déterminés dans toutes les études antérieures. Nous ne pouvons conclure si les différences avec les facteurs d'émission publiés sont imputables à l'évolution des carburants ou à celle de la technologie des poêles à pétrole.

Dans le cas du poêle électronique, les facteurs d'émission de chacun de ces polluants sont similaires, quel que soit le carburant utilisé. Il n'y a pas d'études antérieures sur ce type de poêle pour comparer nos mesures. Les facteurs d'émission de NO obtenus sont globalement compris entre 250 et 500 $\mu g.g^{-1}$, et les facteurs d'émission de NO_2 sont du même ordre. En revanche en régime continu les facteurs d'émission de CO sont négligeables (de l'ordre de 0,5 $mg.g^{-1}$), et faibles pendant les premiers instants de la combustion (1 $mg.g^{-1}$).

Seul un carburant, acheté en Belgique, où les normes sur la teneur en soufre dans les combustibles liquides sont moins strictes qu'en France, est à l'origine d'émissions non négligeables de dioxyde de soufre SO_2 (230 $\mu g.g^{-1}$), émissions qui restent cependant bien inférieures aux valeurs déterminées dans toutes les études antérieures. Si le décret n° 2004-945 du 1er septembre 2004 impose l'usage de combustible français pour le fonctionnement des chauffages d'appoint à pétrole, en raison de la proximité de la frontière belge, une partie de la population du Nord-Pas-de-Calais se fournit cependant en Belgique, et elle est donc probablement exposée à des concentrations en SO_2 dans l'air plus importantes.

Parmi les composés carbonylés, seuls le formaldéhyde, l'acétaldéhyde et l'acétone ont été détectés et quantifiés. Leurs facteurs d'émission montrent une large dispersion, particulièrement pour l'acétone émise lors de l'utilisation du carburant belge. Les facteurs d'émission de formaldéhyde du poêle à mèche et du poêle électronique étudiés en laboratoire sont respectivement de l'ordre de 15 et 8 $\mu g.g^{-1}$. Ces valeurs sont généralement inférieures aux résultats publiés, jusqu'à 270 $\mu g.g^{-1}$. Parmi les COV, on note à l'allumage des poêles une émission transitoire de l'ordre de 100 $\mu g.g^{-1}$ de benzène.

Nous avons également mis en évidence la production de particules fines et de HAP qu'il ne nous est pas possible de quantifier pour l'instant. Lors de l'allumage et de l'extinction du poêle à mèche, on constate une production importante de particules ultrafines, de diamètre aérodynamique compris entre 15 et 30 nm. De plus, on observe une augmentation du nombre de particules de diamètre supérieur à 3 µm après une heure de fonctionnement du poêle à mèche, ce qui laisse supposer un phénomène de coagulation de particules. L'étude des émissions particulaires, à l'origine non prévue dans le cadre de ce travail, est délicate en raison de la remise en suspension des particules dans l'air, de la teneur en particules du niveau de fond, de la présence d'autres sources de particules, leur coagulation et leur vieillissement, … et de l'inadéquation de l'enceinte expérimentale à ce type de mesures. La caractérisation des particules inhalées par les utilisateurs de poêles à pétrole ne peut donc se faire que par une étude sur le terrain.

Les résultats concernant les émissions polluantes que nous avons pu obtenir avec ce choix limité de poêles et de carburants ne sont peut-être pas généralisables à tous les carburants et tous les poêles disponibles en France et dans les régions limitrophes. Une étude exhaustive sortirait du cadre de cette thèse, et ne reproduirait pas les conditions réelles d'utilisation des poêles, notamment leur vieillissement et leur entretien éventuel par les particuliers. Néanmoins, nous avons identifié le type de poêle (poêle à mèche vs. poêle électronique) et la composition des carburants comme étant des facteurs déterminants.

Dans une deuxième phase, une étude de faisabilité de la mesure de l'exposition effective des personnes aux polluants émis par les chauffages d'appoint à pétrole a été menée dans six maisons individuelles localisées dans un rayon de trente kilomètres autour de Lille. Les composés identifiés au laboratoire (NO_x, CO_2, CO, COV) ont été recherchés dans l'air des logements. Cette étude nous a permis de tester nos outils méthodologiques (questionnaires) pour la collecte des données, de mettre en oeuvre nos protocoles analytiques et de donner des pistes d'amélioration pour une future campagne de mesures.

Le comportement des utilisateurs, et notamment la durée d'utilisation moyenne du poêle à pétrole, le volume du logement, son isolation thermique et les conditions de ventilation sont les paramètres clés des niveaux de polluants mesurés dans les logements. Le dioxyde de carbone est un excellent indicateur de fonctionnement du poêle à pétrole dans les six logements considérés, et sa teneur révèle un manque d'aération pour l'ensemble des maisons étudiées. Un seul logement a présenté une concentration moyenne de monoxyde de carbone voisine des

recommandations de l'OMS en air intérieur sur 8 h (9 ppm) et sur 24 h (6 ppm), les niveaux de concentrations dans les autres logements étant inférieurs à ces valeurs. Les niveaux de concentrations en oxydes d'azote mesurés sont variables d'un logement à l'autre, et probablement influencés par la distance de prélèvement au poêle à pétrole et par la présence d'autres sources. Deux logements dépassent ou sont proches de la recommandation de l'OMS concernant la concentration de NO_2 sur 1 h (105 ppb). Les concentrations de formaldéhyde ne dépassent aucune des recommandations de l'OMS ou de l'ANSES. D'autres COV ont été identifiés, mais non quantifiés (toluène, éthylbenzène, xylènes, octane, nonane, α-pinène et trichloréthylène).

Les concentrations mesurées dans les logements sont en accord satisfaisant avec les estimations effectuées à partir des données de facteurs d'émission obtenues en laboratoire, même si nous n'avons pas pu mettre en évidence par exemple la surproduction de NO_x par les poêles électroniques par rapport aux poêles à mèche.

Dans l'ensemble, les protocoles de mesure mis en place pour cette campagne se sont révélés adaptés. Seule la méthode analytique de quantification des COV nécessite d'être développée davantage. Il sera nécessaire également à l'avenir de mesurer les concentrations de polluants (CO et NO_x en particulier) à l'extérieur des logements, car la proximité de sources extérieures de pollution peut avoir un impact non négligeable sur la qualité de l'air intérieur.

Pour interpréter correctement les mesures, il sera nécessaire d'une part de modifier les questionnaires pour qu'ils soient adaptés aux situations différentes d'un logement à l'autre, et d'autre part d'améliorer la formation des enquêteurs afin de collecter toutes les données pertinentes.

Cette étude de terrain a confirmé les résultats des études précédentes sur les raisons, surtout économiques, de l'utilisation des poêles à pétrole, et sur les connaissances des utilisateurs concernant les risques (incendie, brûlure, intoxication oxycarbonée) afférents au fonctionnement des poêles à pétrole, qui ne sont généralement pas connus. Parmi les situations à risque relevées mentionnons l'utilisation du poêle à pétrole en tant que mode de chauffage principal, une aération insuffisante, un fonctionnement pendant la nuit ou en l'absence de surveillance. Les utilisateurs eux-mêmes reconnaissent l'absence d'information sur ces risques, que ce soit de la part des vendeurs lors de l'achat ou dans la notice d'utilisation.

Ce double travail de laboratoire et de terrain doit se poursuivre par une étude consacrée à l'impact sanitaire de l'utilisation des poêles à pétrole sur la fonction pulmonaire, par la mesure de biomarqueurs de l'inflammation pulmonaire chez des enfants exposés aux émissions de chauffages d'appoint à pétrole, et par des mesures simultanées de leur exposition aux NO_x, COV et particules. L'objectif est de fournir des données aux services publics pour orienter des campagnes de prévention, visant à réduire le risque sanitaire lié à l'utilisation de ces appareils de chauffage, dont l'utilisation dans les logements est interdite dans certains états des Etats-Unis d'Amérique (Californie, Massachussetts, Wisconsin), ou dans certaines villes, notamment New York.

Le dispositif expérimental mis en place au laboratoire pendant cette thèse sera utilisé pour déterminer les facteurs d'émission d'autres poêles, ou avec d'autres carburants, complétant ainsi nos données. Il pourra être utilisé également pour quantifier les émissions d'autres sources de polluants en air intérieur, comme les cheminées au bioéthanol par exemple, produits disponibles sur le marché mais dont l'impact sur la qualité de l'air n'a pas forcément fait l'objet d'une attention particulière.

ANNEXES

Annexe 1. Analyse de composition des carburants

PTX 2000			Power belge			Zibro Bio			Zibro Optimal		
T.R. (min	Composé	remarque	T.R. (min)	Composé	remarque	T.R. (min)	Composé	remarque	T.R. (min)	Composé	remarque
			1.518	1-Propanesulfonyl chloride		1.813	Methylene Chloride		1.832	Methylene Chloride	
3.853	methylcyclohexane										
4.916									3.986		
									4.756		
			5.013		91				4.932		
5.143									5.158		
5.432	1,3 dimethyl cyclohexane										
5.516											
5.722											
5.839											
6.103			6.100	octane							
6.351											
									6.591		
									6.81		
7.149			7.145	2,6diméthylheptane							
7.305											
7.394			7.392	ethylcyclohexane					7.391		
7.531			7.535	1,1,3trimethylcyclohexane							
7.936											
8.132	1,2,4 trimethylcyclohexane					8.121	Cyclohexane, 1,2,4-trimethyl-, (1.alpha.				
			8.182	2,3-diméthylheptane					8.191		
			8.381	ethylbenzene							

						8.458	Hexane, 3-ethyl-				
8.472			8.478	4-methyl-octane					8.477		
8.544			8.549	2-methyl-octane		8.531	Octane, 2-methyl-		8.549		
8.708			8.729	p-xylene							
8.787			8.787	4-isopropyl-heptane		8.779	2-Decene, 5-methyl-, (Z)-	ramifié alcane	8.807		
9.02			9.012	1,1,2trimethylcyclohexane	ramifié	9.004	Cyclohexane, 1,2,3-trimethyl-, (1.alpha.				
9.168						9.161	Cyclohexane, 1,2,4-trimethyl-				
9.299			9.333	1-methyl-2-propylcyclopentane		9.286	Cyclohexane, 1,2,4-trimethyl-				
9.455	1-Ethyl-4-methylcyclohexane		9.457	1-ethyl-2-methylcyclohexane		9.442	1-Ethyl-4-methylcyclohexane				
9.593			9.586	p-xylene		9.580	Cyclohexane, 1-ethyl-4-methyl-, cis-				
									9.716		
9.913	Nonane	oui	9.908	Nonane		9.885	Nonane	oui	9.886		
						10.070	Cyclohexane, 1,2,3-trimethyl-, (1.alpha.				
						10.170	Cyclohexane, 1-ethyl-2-methyl-, cis-				
									10.238		
						10.314	Cyclohexane, 1-methyl-4-(1-methylethyl)-				
						10.485	Hexane, 2,4-dimethyl-		10.443		
						10.658	Cyclohexane, 1,1'-(1,5-pentanediyl)bis-				
						10.706	Acetic acid, trifluoro-, tetradecyl este	55, 97 Cyclane			
						10.767	Decane, 2,6,8-trimethyl-		10.781		
						10.90	Cyclooctane, 1-methyl-3-		10.92		

						3	propyl-		2		
11.060	Cyclohexane, propyl-		11.058	Cyclohexane, octyl-	dérivé	11.048	Cyclohexane, propyl-				
11.156	Silane, trichlorodocosyl-	ramifié	11.158	Heptadecane, 2,6-dimethyl-		11.155	Silane, trichlorodocosyl-	ramifié			
11.166	Silane, trichlorodocosyl-	ramifié									
11.364	Heptane, 3-ethyl-2-methyl-		11.356	Heptane, 3-ethyl-2-methyl-		11.354	Cyclopropane, 1-(2-methylbutyl)-1-(1-met		11.358		
						11.449	Cyclooctane, 1,4-dimethyl-, trans-				
						11.592	6-Tridecene, (Z)-	55 97 cyclane			
						11.676	1-Dodecyne	41 67 ???			
						11.744	Cyclohexane, 1,1,3,5-tetramethyl-, trans		11.75		
			11.900	No Match	91,120	11.900	1-Nonadecene	41 69 ???	11.91		
			12.068	Cyclohexane, 1,1,2,3-tetramethyl-		12.055	Cyclohexane, 1,1,2,3-tetramethyl-		12.097		RAMIFIE
						12.101	Dichloroacetic acid, 6-ethyl-3-octyl est	69 111 ???			
12.186	Octane, 2,3-dimethyl-		12.179	No Match	105 ,120	12.172	2-Undecene, 4,5-dimethyl-, [R*,S*-(Z)]-	ramifié	12.179		RAMIFIE
						12.236	Cyclohexane, 1-ethyl-2-propyl-				
12.322	Nonane, 2-methyl-		12.312	Nonane, 2-methyl-		12.309	Nonane, 2-methyl-		12.302		RAMIFIE
						12.383	6,10,13-Trimethyltetradecanol	ramifié	12.39		RAMIFIE
			12.483	Benzene, 1,3,5-trimethyl-							
12.552	Nonane, 3-methyl-		12.546	Nonane, 3-methyl-		12.553	Nonane, 3-methyl-		12.546	Decane, 2,2,5-trimethyl-	
						12.620	1-Methyl-4-(1-methylethyl)-cyclohexane		12.679	Pentadecane	ramifié

			12.796	Benzene, 1-ethyl-4-methyl-		12.727	Cyclooctane, ethyl-				
						12.797	1-Methyl-4-(1-methylethyl)-cyclohexane				
						12.806	1-Methyl-4-(1-methylethyl)-cyclohexane				
						12.870	Cyclohexane, 1-ethyl-2,3-dimethyl-				
									12.918	Octane, 2,2,6-trimethyl-	
13.028	Cyclohexane, 1-ethyl-2-methyl-, cis-		13.018	Cyclohexane, 1-ethyl-2-methyl-, cis-	ou dérivé	13.024	Cyclohexane, 1-ethyl-2-methyl-, cis-				
						13.090	Cyclohexane, (2-methylpropyl)-		13.089	Heptadecane, 2,6-dimethyl-	
			13.159	Cyclohexane, 1-methyl-2-propyl-		13.162	Cyclohexane, 1-methyl-2-propyl-				
						13.213	Cyclooctane, ethyl-		13.205	Heptadecane, 2,6,10,14-tetramethyl-	
						13.262	Cyclohexanepropanol-	cyclo			
						13.329	No Match	43 69 111			
						13.367	No Match	43 81			
			13.380	Benzene, 1,2,3-trimethyl-		13.379	No Match	43 57 81ramifié?	13.380	Undecane, 4,7-dimethyl-	
13.476	Cyclohexane, 1-ethyl-2-methyl-, cis-					13.468	Cyclohexane, 1-ethyl-2-methyl-, cis-				
						13.484	Cyclohexane, 1-methyl-2-propyl-				
						13.523	Cyclohexane, 1-ethyl-2-methyl-, cis-		13.527	Octane, 2,6,6-trimethyl-	
									13.547	Octane, 2,6,6-trimethyl-	
13.639	Decane	oui	13.643	Decane		13.660	Decane	oui	13.599	Decane	

									13.630	Tridecane, 6-methyl-	
									13.692	Nonane, 2,6-dimethyl-	
									13.737	Undecane, 4,7-dimethyl-	
						13.849	Cyclohexane, 2-ethyl-1,3-dimethyl-		13.858	Decane, 2,5,6-trimethyl-	
									13.890	Decane, 2,5,6-trimethyl-	
									13.904	Octane, 2,5,6-trimethyl-	
			13.926	Benzene, (1-methylpropyl)-							
						13.951	Cyclohexane, 1,1'-(1-methyl-1,3-propaned		13.978	Decane	
									13.990	Decane	
						14.024	Cyclooctane, tetradecyl-	69 111 OK	14.007	Decane	
						14.054	Ether, heptyl hexyl	ramifié	14.046	Pentadecane	
						14.069	Cyclopentane, (1-methylbutyl)-		14.059	Undecane, 2,7-dimethyl-	
						14.125	1-Tridecyne	41, 81 ???	14.148	Decane	
						14.182	Cyclohexane, 1,4-dimethyl-2-octadecyl-				
			14.233	Nonane	dérivé C11	14.233	Cyclohexanol, 2-(1,1-dimethylethyl)-				
									14.252	Nonane, 2,5-dimethyl-	
14.351	Heptadecane, 2,6-dimethyl-		14.357	Decane, 2,6,7-trimethyl-		14.378	Decane, 2,6,7-trimethyl-		14.370	Decane, 2,6,7-trimethyl-	
14.367	Heptane, 3-ethyl-5-methyl-		14.471	2,3-Epoxycarane, (E)-	91,119,134	14.477	Cyclohexaneethanol, .beta.-methyl-		14.427	Octane, 3,5-dimethyl-	
						14.53	Decane, 2-cyclohexyl-		14.51	Heptadecane, 2,6,10,14-tetramethyl-	

						7			5		
									14.568	Heptadecane, 2,6,10,14-tetramethyl-	
						14.584	Tetracontane, 3,5,24-trimethyl-		14.586	Heptadecane, 2,6,10,14-tetramethyl-	
						14.606	5-Tridecene, (Z)-	**cyclo ???**	14.600	Heptadecane, 2,6,10,14-tetramethyl-	
						14.633	Cyclooctane, 1-methyl-3-propyl-				
						14.647	Cyclooctane, 1,4-dimethyl-, trans-				
						14.658	trans-2-Methyl-4-n-butylthiane, S,S-diox	cyclo			
						14.676	Cyclopropane, 1-pentyl-2-propyl-		14.670	Decane, 2,5,6-trimethyl-	
									14.730	Decane	
14.750	Cyclohexane, octyl-		14.748	Cyclohexane, propyl-		14.763	Cyclohexane, (2-methylpropyl)-				
			14.792	No Match							
									14.808	Heptadecane, 2,6,10,14-tetramethyl-	
									14.819	Heptadecane, 2,6,10,14-tetramethyl-	
			14.838	Pentafluoropropionic acid, decyl ester	???	14.854	Cyclopentane, nonyl-		14.838	Decane, 2-methyl-	
									14.905	Hexane, 2,3,4-trimethyl-	
14.913	Dodecane, 2,6,10-trimethyl-		14.916	Decane, 3-methyl-					14.920	Heptane, 2,4-dimethyl-	
			14.965	Silane, trichlorodocosyl-	???	14.933	Dodecane, 2,6,10-trimethyl-		14.992	Hexane, 3-ethyl-	
						14.975	5-Octadecene, (E)-				
						14.986	6-Tridecene, (Z)-				

						15.068	Cyclohexene, 1-decyl-		15.074	Decane, 2,5,6-trimethyl-	
			15.134	1-Ethyl-2,2,6-trimethylcyclohexane		15.143	E-2-Octadecadecen-1-ol		15.126	Tetradecane	
			15.226	Benzene, 1,4-diethyl-		15.211	Cyclohexane, 1-ethyl-2-propyl-		15.219	Tridecane, 6-methyl-	
						15.267	Cyclohexane, 1-(cyclohexylmethyl)-4-ethy		15.250	Tridecane, 6-methyl-	
						15.331	17-Pentatriacontene	43, 69, 111	15.326	Octane, 2,5,6-trimethyl-	
			15.353	Benzene, 1-methyl-3-propyl-		15.366	Cyclopentane, 1,2-dibutyl-		15.341	Decane, 2,6,8-trimethyl-	
						15.385	Cyclopentane, 1,2-dibutyl-		15.372	Tridecane, 6-methyl-	
			15.422	2-Piperidinone, N-[4-bromo-n-butyl]-	???	15.406	Cyclooctane, 1-methyl-3-propyl-		15.442	Octane, 3-ethyl-	
						15.419	Cyclooctane, 1-methyl-3-propyl-		15.450	Decane, 5,6-dipropyl-	
						15.485	3-Isopropyl-5-methyl-hex-4-en-2-one	69 111	15.474	Nonane, 4-methyl-5-propyl-	
15.540	2,6,6-Trimethyl-bicyclo[3.1.1]hept-3-yla	ramifié	15.543	No Match	91,119,134	15.546	Heptane, 4-ethyl-		15.562	Decane, 5-methyl-	
						15.557	Heptane, 4-ethyl-				
15.648	5-Nonadecen-1-ol	**??? Cyclane ?**	15.673	Decane, 4-methyl-		15.671	5-Nonadecen-1-ol	???	15.688	Decane, 2,6,7-trimethyl-	
15.812	Decane, 2-methyl-		15.835	No Match		15.841	Decane, 2-methyl-		15.861	Heptadecane, 2,6-dimethyl-	
									15.871	Heptadecane, 2,6-dimethyl-	
									15.891	Heptadecane, 2,6-dimethyl-	
									15.909	Heptadecane, 2,6-dimethyl-	
									15.94	Dodecane, 2,2,11,11-tetramethyl-	

									3		
									15.991	1-Undecene, 10-methyl-	RAMIFI 2
16.014	2,3-Dimethyldecane		16.041	Decane, 3-methyl-		16.046	Tetracontane, 3,5,24-trimethyl-				
									16.101	Pentadecane	
									16.115	Undecane, 3,7-dimethyl-	
			16.209	Benzene, 2-ethyl-1,4-dimethyl-		16.215	Cyclohexane, 1-methyl-4-(1-methylethyl)-				
						16.238	Cyclohexane, 1-methyl-4-(1-methylethyl)-				
						16.249	Cyclopentaneethanol, .beta.,2,3-trimethy				
						16.264	E-2-Octadecadecen-1-ol	55, 97 ???	16.269	Octane, 2,4,6-trimethyl-	
			16.296	Benzene, 1-methyl-2-(1-methylethyl)-					16.285	Pentadecane	
									16.340	Pentadecane	
									16.353	Pentadecane	
			16.383	No Match	97, 117,132						
						16.423	Cyclohexane, 1-(cyclohexylmethyl)-2-meth		16.445	No Match	
16.501	Cyclohexane, 1-methyl-2-propyl-		16.505	No Match	97, 119,132	16.538	Cyclohexane, 1-methyl-2-propyl-		16.516	Octane, 2,4,6-trimethyl-	
									16.566	Decane	
									16.578	Heptadecane, 2,6,10,14-tetramethyl-	
									16.594	Decane	

						16.628	7-Tetradecene	55, 83 ???			
									16.647	1-Octanol, 2-butyl-	
16.676	Cyclopentane, 1,2-dipropyl-		16.679	Cyclopentane, 1-pentyl-2-propyl-		16.703	Cyclopentane, 1-pentyl-2-propyl-				
									16.684	Decane, 2,5,6-trimethyl-	
						16.717	Cyclohexane, 1,1'-(1,2-dimethyl-1,2-etha				
			16.775	(2-Methylbutyl)cyclohexane					16.772	Undecane, 4,7-dimethyl-	
									16.782	Dodecane	
						16.839	5-Methyl-5-octen-1-ol	41, 95, 125	16.821	Decane, 2,5,6-trimethyl-	
									16.856	Decane, 2,5,6-trimethyl-	
16.884	Cyclohexane, 1-(cyclohexylmethyl)-2-meth								16.869	Decane, 2,5,6-trimethyl-	
						16.922	3-Dodecylcyclohexanone	55, 97	16.928	Decane	
			16.898	17-Pentatriacontene	???	16.938	1-Cyclohexylnonene	55, 97	16.943	Heptadecane, 2,6,10,14-tetramethyl-	
									16.956	Hexadecane	
									16.976	Hexadecane	
									16.989	Pentadecane	
17.060	Tridecane	n C11				17.047	1-Octanol, 2-butyl-	ramifié	17.023	Heptadecane, 2,6,10,14-tetramethyl-	
			17.135	Tridecane	n C11	17.147	Undecane	oui	17.115	No Match	
			17.199	Undecane, 4,7-dimethyl-		17.161	Undecane	oui à sommer	17.199	Undecane, 5,7-dimethyl-	

			17.228	Undecane, 4,7-dimethyl-		17.219	2-Piperidinone, N-[4-bromo-n-butyl]-	ramifié	17.219	Heptadecane, 2,6,10,14-tetramethyl-	
						17.249	2,3-Dimethyldecane		17.247	Pentadecane	
									17.269	Pentadecane	
									17.298	Heptadecane, 2,6,10,14-tetramethyl-	
			17.313	No Match	105.119	17.321	5-Nonadecen-1-ol	55, 81			
			17.381	Decane, 2,6,8-trimethyl-							
						17.404	2-Piperidinone, N-[4-bromo-n-butyl]-	ramifié			
						17.414	2-Piperidinone, N-[4-bromo-n-butyl]-	ramifié			
						17.443	Pentadec-7-ene, 7-bromomethyl-	41, 111	17.443	Octane, 2,4,6-trimethyl-	
						17.454	Cyclododecanemethanol	**55, 97, Cyclo**	17.456	Octane, 2,4,6-trimethyl-	
17.514	trans-Decalin, 2-methyl-										
			17.541	2,6-Dimethyldecane							
						17.559	E-2-Tetradecen-1-ol	???			
						17.590	1,9-Tetradecadiene	55, 83	17.581	Decane, 2,6,8-trimethyl-	
17.668	E-2-Octadecadecen-1-ol	97 Cyclane	17.688	Benzene, 1,2,3,4-tetramethyl-		17.668	E-2-Tetradecen-1-ol	57, 85 ???	17.612	Decane, 2,4-dimethyl-	
						17.721	3-Dodecylcyclohexanone	Cyclo	17.716	Eicosane	
									17.769	Heptadecane, 2,6,10,14-tetramethyl-	
									17.781	Heptadecane, 2,6,10,14-tetramethyl-	
17.81	Heptadecane	ramifié							17.80	Heptadecane, 2,6,10,14-tetramethyl-	

7									7		
			17.855	Hydroxylamine, O-decyl-	???						
						17.871	Heptadecane				
						17.921	No Match	95	17.906	Dodecane, 2,6,10-trimethyl-	
18.018	Naphthalene, decahydro-2-methyl-								18.026	Pentadecane	
			18.042	1-Methyldecahydronaphthalene							
						18.065	1-Methyldecahydronaphthalene	137, 1620K	18.061	Decane, 2,5,6-trimethyl-	
			18.098	Pentadecane	Ramifié						
						18.110	Tetracontane, 3,5,24-trimethyl-				
18.153	Cyclohexane, octyl-								18.152	Pentadecane	
			18.180	Cyclohexane, octyl-							
						18.200	Cyclohexane, octyl-				
									18.224	Undecane, 6-methyl-	
18.246	E-2-Octadecadecen-1-ol	ramifié ?									
			18.288	Trifluoroacetic acid, n-heptadecyl ester	???, 119, 134	18.288	1-Tridecanol	41, 83 ???			
									18.303	Decane, 2,6,8-trimethyl-	
			18.343	Benzene, 1,3-diethyl-5-methyl-							
									18.366	Pentadecane	

						18.377	Benzocyclodecene, tetradecahydro-				
			18.427	Benzene, 1-methyl-4-(1-methylpropyl)-		18.427	Cyclohexane, [6-cyclopentyl-3-(3-cyclope				
									18.439	Heptacosane, 1-chloro-	
									18.470	Heptadecane, 2,6-dimethyl-	
			18.519	No Match	119	18.527	Hydroxylamine, O-decyl-	ramifié			
			18.577	Indan, 1-methyl-					18.575	Heptadecane, 2,6-dimethyl-	
						18.593	Cyclohexane, 1-methyl-2-pentyl-		18.590	Heptadecane, 2,6-dimethyl-	
									18.606	Heptadecane, 2,6-dimethyl-	
									18.639	Decane, 3,4-dimethyl-	
18.674	2-Piperidinone, N-[4-bromo-n-butyl]-	57 ramifié	18.669	Benzene, 1-ethyl-2,3-dimethyl-							
18.704	E-2-Tetradecen-1-ol	ramifié									
			18.725	Hexadecane, 1-chloro-	Pas de cl	18.722	2-Piperidinone, N-[4-bromo-n-butyl]-	ramifié			
						18.738	2-Piperidinone, N-[4-bromo-n-butyl]-	ramifié	18.733	Tridecane, 6-methyl-	
									18.767	Tridecane	
									18.793	Undecane, 5-methyl-	
18.851	2-Piperidinone, N-[4-bromo-n-butyl]-	ramifié				18.857	Tetracontane, 3,5,24-trimethyl-				
18.885	9-Eicosyne	alcéne ?	18.891	No Match	105, 119, 148	18.881	Tridecane, 4-methyl-				
									18.917	Tridecane, 4-methyl-	
19.01	Heptadecane, 2-								19.02	Decane, 2,6,8-trimethyl-	

7	methyl-								3		
			19.058	Heptadecane, 2-methyl-		19.053	Heptadecane, 2-methyl-		19.074	Pentadecane	
									19.122	Eicosane	
									19.147	Tetracontane, 3,5,24-trimethyl-	
19.200	Tridecane, 3-methyl-										
			19.240	Tridecane, 3-methyl-		19.235	Tridecane, 3-methyl-				
19.261	Naphthalene, decahydro-2,6-dimethyl-								19.264	Undecane, 3-methyl-	
						19.315	2-Piperidinone, N-[4-bromo-n-butyl]-	ramifié			
									19.338	Decane, 2,6,8-trimethyl-	
			19.350	Benzene, 1-methyl-4-(1-methylpropyl)-							
						19.365	3-Methyl-Z,Z-4,6-hexadecadiene	55, 97			
									19.386	Eicosane	
19.440	Decalin, syn-1-methyl-, cis-	ok 152	19.452	3,11-Tetradecadien-1-ol	peut-être	19.460	Bicyclo[4.1.0]heptan-3-one, 4,7,7-trimet	152	19.435	Eicosane	
									19.510	Pentadecane	
									19.519	Pentadecane	
19.544	17-Pentatriacontene	ramifié									
19.560	11,13-Dimethyl-12-tetradecen-1-ol acetat	**41, 69, 95**				19.564	17-Pentatriacontene	55, 97			
			19.581	1-Bromodocosane	pas de brome				19.576	Hexane, 2,2,3,3-tetramethyl-	

									19.609	1-Octanol, 2-butyl-	
									19.622	Dodecane	
						19.634	Naphthalene, decahydro-2,3-dimethyl-	0K 151, 166			
									19.642	Pentadecane	
									19.690	Eicosane	
19.722	E-2-Octadecadecen-1-ol	**55, 97**				19.738	E-2-Octadecadecen-1-ol	ramifié ?			
									19.751	6,10,13-Trimethyltetradecanol	
			19.762	No Match	128				19.761	6,10,13-Trimethyltetradecanol	
									19.834	Octane	
19.847	Cyclohexane, 1,1'-(1,2-dimethyl-1,2-etha		19.849	No Match	119, 148						
						19.870	Cyclopentane, 1-pentyl-2-propyl-				
									19.887	Hexatriacontane	
									19.899	Pentadecane	
19.916	E-2-Octadecadecen-1-ol	**55 97**	19.920	No Match	117				19.916	Pentadecane	
19.934	E-2-Octadecadecen-1-ol	**55 97**				19.933	E-2-Octadecadecen-1-ol	55, 97			
						19.941	E-2-Octadecadecen-1-ol	55, 82, 97			
									19.972	Decane	
									20.007	Dotriacontane	

						20.017	Dodecane, 1-cyclopentyl-4-(3-cyclopentyl	ok 69, 111	20.019	Tetracosane	
			20.059	No Match	133, 148	20.049	6,10,13-Trimethyltetradecanol	55, 97			
20.080	1-Octanol, 2-butyl-	ramifié				20.090	1-Octanol, 2-butyl-	ramifié	20.096	Pentadecane	
									20.109	Tridecane	
20.180	Pentadecane	n C12							20.182	6,10,13-Trimethyltetradecanol	
						20.208	Pentadecane	n C12			
			20.237	Tridecane	n C12	20.224	Pentadecane	n C12 à sommer			
						20.295	Silane, trichlorodocosyl-	ramifié			
			20.302	Hexane, 3,3-dimethyl-							
20.328	Cyclodecane, octyl-										
			20.355	No Match	133, 148	20.347	Cyclodecane, octyl-				
20.370	1-Decanol, 2-hexyl-	ramifié				20.377	17-Pentatriacontene	ramifié	20.370	Pentadecane	
			20.397	Heptadecane, 2,6-dimethyl-							
									20.471	Dodecane	
20.499	Decane, 2,6,8-trimethyl-										
			20.522	Decane, 2,6,8-trimethyl-		20.518	Undecane, 2,6-dimethyl-				
									20.574	Pentadecane	
20.590	2-Piperidinone, N-[4-bromo-n-butyl]-	43, 85 ramifié				20.596	2-Hexyl-1-octanol	43, 85 ramifié ?			
			20.60	No Match	133, 148						

			9								
									20.630	Pentadecane	
20.695	Nonadecane	ramifié				20.695	Dodecane, 2,6,11-trimethyl-		20.697	Pentadecane	
			20.710	Pentadecane	ramifié				20.712	Pentadecane	
						20.749	Cyclohexane, 2-butyl-1,1,3-trimethyl-				
20.802	E-2-Octadecadecen-1-ol	55, 97				20.797	Cyclohexane, 2-butyl-1,1,3-trimethyl-		20.801	Heptadecane, 2,6-dimethyl-	
			20.813	No Match	105,119,133,162						
									20.838	Decane, 2,5,6-trimethyl-	
20.900	Heptadecane, 2-methyl-		20.904	No Match	???	20.890	Heptadecane, 2,6,10,14-tetramethyl-		20.900	Dodecane, 2-methyl-	
						20.953	2H-Benzocyclohepten-2-one, decahydro-4a-		20.948	Hexane, 1-(hexyloxy)-5-methyl-	
			20.973	No Match	???				21.012	Heptadecane, 2,6-dimethyl-	
21.040	Naphthalene, 2-ethyldecahydro-	OK 137, 166				21.060	1-Cyclohexanol, 2-(2-ethylbutyl)-	137, 166	21.068	Heptadecane	
			21.101	Benzene, 1,4-diethyl-2-methyl-					21.106	Dodecane, 4,6-dimethyl-	
						21.150	Undecane, 6-cyclohexyl-				
			21.176	1,7,7-Trimethyl-2-vinylbicyclo[2.2.1]hep	105,119,133,162						
						21.227	9-Hydroxy-2,2-dimethyl-dec-5-en-3-one	57, 85			
			21.262	No Match	???				21.241	Pentadecane	
21.308	Cyclohexane, hexyl-					21.307	Cyclohexane, hexyl-				
			21.318	Heptylcyclohexane							

						21.356	Cyclododecane				
21.363	Cyclopentane, nonyl-		21.368	Cyclopentane, hexyl-					21.365	Dotriacontane	
						21.416	Undecane, 5-cyclohexyl-				
			21.427	No Match	???				21.431	Pentadecane	
						21.469	5-Nonadecen-1-ol	???			
			21.484	No Match	133				21.489	Undecane, 2-methyl-	
									21.507	Eicosane	
									21.532	Nonadecane	
						21.567	Tetracontane, 3,5,24-trimethyl-		21.577	Undecane, 2,5-dimethyl-	
21.589	2-Piperidinone, N-[4-bromo-n-butyl]-	ramifié							21.588	Undecane, 2,5-dimethyl-	
			21.601	Dodecane, 6-methyl-							
						21.615	Undecane, 2,4-dimethyl-				
21.641	2-Piperidinone, N-[4-bromo-n-butyl]-	ramifié							21.638	Pentadecane	
			21.656	1-Undecene, 4-methyl-	alcane	21.660	1H-Imidazole, 1-(cyclohexylcarbonyl)-	**69, 83, 111 cyclo**			
									21.688	Pentadecane	
						21.695	No Match	**idem**	21.691	Pentadecane	
			21.717	No Match	133.162						
						21.759	Undecane, 2,3-dimethyl-				

									21.779	Eicosane	
21.786	2-Piperidinone, N-[4-bromo-n-butyl]-	ramifié									
			21.805	Undecane, 2,3-dimethyl-		21.811	No Match	67, 95			
						21.830	No Match	43, 125	21.835	Octadecane	
									21.861	Octadecane	
			21.871	No Match	91.162						
						21.916	Heptadecane, 2,6,10,15-tetramethyl-				
									21.934	Heptadecane, 2,6,10,14-tetramethyl-	
21.943	Tetratetracontane	ramifié									
21.952	Tetracontane, 3,5,24-trimethyl-										
			21.965	Heptadecane, 2-methyl-		21.965	Borinic acid, diethyl-, 1-cyclododecen-1	165, à voir ?			
			22.015	No Match	105,119, 162	22.028	No Match	55, 109	22.023	Tetracontane, 3,5,24-trimethyl-	
									22.038	Tetracontane, 3,5,24-trimethyl-	
									22.055	Decane, 2,6,8-trimethyl-	
									22.112	Tridecane, 2-methyl-	
						22.128	Octane, 2,3,7-trimethyl-				
22.172	Heptadecane, 2,6-dimethyl-		22.179	Heptadecane, 2,6-dimethyl-							
						22.183	2-Piperidinone, N-[4-bromo-n-butyl]-	ramifié			
									22.21	Eicosane	

									3		
						22.221	2-Piperidinone, N-[4-bromo-n-butyl]-	ramifié			
			22.230	No Match							
									22.242	Heptadecane	
						22.299	1-Dodecanol, 3,7,11-trimethyl-	41,83, 125			
									22.312	Pentadecane	
22.327	1-Dodecanol, 3,7,11-trimethyl-	ramifié									
			22.340	No Match	119.162						
									22.367	Decane, 2,6,6-trimethyl-	
			22.423	Benzene, 2,4-dimethyl-1-(1-methylpropyl)							
									22.431	Pentadecane	
						22.473	7-Tetradecene	55, 97 peut-être			
			22.510	No Match	97, 131				22.519	Octane, 2,4,6-trimethyl-	
									22.585	Undecane, 2,4-dimethyl-	
						22.629	7-Tetradecene	55, 83,111 ?à voir ?			
									22.636	Eicosane	
22.665	7-Tetradecene		22.668	3-Dodecene, (E)-							
						22.691	Cyclohexane, 1-ethyl-1-methyl-	55, 97			

									22.707	Nonadecane	
22.730	3-Dodecylcyclohexanone	**55 97**									
			22.754	No Match	119						
						22.764	Cyclopentane, 1-pentyl-2-propyl-		22.761	Octadecane	
									22.792	Heptane, 4,4-dimethyl-	
						22.803	17-Pentatriacontene	55, 97			
			22.812	Naphthalene, 1,2,3,4-tetrahydro-6-methyl							
									22.861	Nonadecane	
									22.885	Heptadecane, 2,6-dimethyl-	
						22.928	Pentadecane	n C13	22.937	Pentadecane	
						22.950	Pentadecane	n C13 à sommer			
									22.984	Dotriacontane	
									22.999	Eicosane	
23.039	Pentadecane	n C 13	23.043	Tridecane	n C13	23.076	Nonadecane	ramifié	23.014	Dodecane, 2,6,11-trimethyl-	
			23.130	Pentadecane	ramifié	23.115	17-Pentatriacontene	à voir	23.124	Pentadecane	
									23.154	Eicosane	
									23.162	Octadecane	
			23.174	Nonadecane	ramifié						

						23.180	2-Hexyl-1-octanol	ou ramifié ?	23.187	Octadecane	
						23.228	Dodecanoic acid, hex-3-enyl ester	ester 82 ?			
23.236	Pentafluoropropionic acid, octadecyl est	ramifié	23.232	Heptadecane, 2,6-dimethyl-					23.234	Eicosane	
			23.287	No Match	119				23.280	Pentadecane	
									23.296	Tetracosane	
						23.344	Pentadecane	ramifié			
									23.364	Heptadecane, 2,6-dimethyl-	
									23.395	Octacosane	
23.406	Tridecane, 6-methyl-		23.405	Tridecane, 2,5-dimethyl-		23.411	Heptylcyclohexane		23.404	Eicosane	
						23.423	Cyclohexane, 1,1'-(1-methyl-1,2-ethanedi				
									23.470	Octadecane	
			23.522	No Match	119				23.534	Pentadecane	
						23.545	Cyclopentaneundecanoic acid, methyl este	ester74, 87	23.548	Octadecane	
									23.565	Octadecane	
			23.608	Naphthalene, 1,2,3,4-tetrahydro-2,6-dime							
						23.625	Decane, 2,6,8-trimethyl-		23.634	Tetracontane, 3,5,24-trimethyl-	
						23.660	Cyclohexane, 1-ethyl-1-methyl-				
									23.683	Eicosane	
			23.76	5-Isopropyl-2-	à voir				23.77	Heptadecane	

			3	methylphenethyl acetate					4		
						23.795	Tetracontane, 3,5,24-trimethyl-				
23.847	5-(1-Bromo-1-methyl-ethyl)-2-methyl-cycl	137	23.846	Tetracontane, 3,5,24-trimethyl-							
									23.857	Eicosane	
			23.895	No Match	91.119						
									23.912	Eicosane	
									23.927	Heptacosane	
			24.010	No Match	119				24.032	Heptadecane	
									24.067	Nonadecane	
									24.081	Eicosane	
									24.102	Pentadecane	
									24.117	Pentadecane	
			24.135	No Match	118						
						24.150	Cyclohexane, octyl-				
									24.185	Heptadecane, 2,6-dimethyl-	
24.203	Heptylcyclohexane	55 83 OK									
24.212	Heptylcyclohexane	55 83 OK	24.213	7-Heptadecene, 17-chloro-	pas de cl						
						24.224	Eicosane	ramifié	24.222	Eicosane	

			24.274	Pentadecane	Ramifié						
24.285	Tridecane, 6-methyl-								24.289	Pentadecane	
						24.308	Undecane, 2,4-dimethyl-				
									24.348	Octadecane	
24.359	Decane, 2,4,6-trimethyl-		24.352	Decane, 2,4,6-trimethyl-							
									24.384	Eicosane	
			24.408	No Match	106				24.408	Nonadecane	
									24.431	Octadecane	
						24.447	Tridecane, 4-methyl-				
			24.493	Tridecane, 4-methyl-							
24.507	Tridecane, 4-methyl-										
									24.515	Octadecane	
									24.586	Decane, 2,6,8-trimethyl-	
						24.604	Tetracontane, 3,5,24-trimethyl-				
									24.638	Eicosane	
			24.652	Heptadecane, 2-methyl-					24.741	Eicosane	
24.665	Heptacosane, 1-chloro-	ramifié									
									24.761	No Match	
						24.77	Dotriacontane	ramifié			

						7					
			24.825	Hexadecane, 3-methyl-							
24.838	Tetracontane, 3,5,24-trimethyl-								24.836	Octadecane	
									24.874	Pentadecane	
						24.900	Heptadecane, 2,6,10,14-tetramethyl-				
			24.952	Pentadecane	ramifié						
24.976	Nonadecane	ramifié							24.979	Octacosane	
									25.050	Decane, 2,6,8-trimethyl-	
									25.110	Tridecane	
									25.130	Eicosane	
			25.230	No Match	154				25.234	Eicosane	
									25.249	Octacosane	
									25.284	Nonadecane	
									25.307	Hexadecane	
									25.330	No Match	
						25.362	Cyclopentane, 1-hexyl-3-methyl-				
									25.377	Nonadecane	
			25.407	No Match	119						
									25.425	Tridecane, 6-methyl-	

									25.445	Silane, trichlorodocosyl-	
						25.453	1-Eicosanol	55, 97			
			25.487	Naphthalene, 1,2,3,4-tetrahydro-5,7-dime							
25.500	Cyclohexane, 1-methyl-2-pentyl-	55 97 cyclane							25.496	Heptadecane	
						25.562	Pentadecane	n C14			
									25.599	Pentadecane	
									25.609	Heptadecane	
									25.628	Heptadecane	
			25.651	Pentadecane	n C14						
25.685	Pentadecane	n C14							25.699	Tetracosane	
									25.800	Heptacosane	
									25.857	Heptadecane	
									25.869	Decane, 2,6,8-trimethyl-	
									25.885	Decane, 2,6,8-trimethyl-	
			25.942	Naphthalene, 2,6-dimethyl-					25.942	Heptadecane, 2,6,10,14-tetramethyl-	
									25.955	Eicosane	
									26.048	Decane, 2,6,8-trimethyl-	
									26.063	Decane, 2,6,8-trimethyl-	
			26.11	No Match	ramifié						

			0								
									26.130	Heptadecane, 2,6,10,14-tetramethyl-	
									26.198	Octadecane	
									26.229	Dotriacontane	
			26.255	Naphthalene, 1,4-dimethyl-							
									26.286	Tridecane, 4-methyl-	
									26.357	Heptadecane	
			26.374	Naphthalene, 2,6-dimethyl-							
									26.443	Octacosane	
									26.489	Octadecane	
									26.614	Octadecane	
									26.700	Eicosane	
									26.710	Pentadecane	
			26.777	No Match							
									26.798	Tridecane	
			26.819	No Match					26.823	Heptadecane	
						26.850	Cyclopentane, heneicosyl-				
			26.882	17-Pentatriacontene	alcane				26.897	Pentadecane	
26.905	Cyclopentane, heneicosyl-										

									26.952	Octacosane	
			27.037	Tridecane, 4-methyl-		27.012	Hexatriacontane				
									27.041	Eicosane	
27.059	Hexatriacontane	ramifié				27.064	Heptadecane, 2,6,10,14-tetramethyl-				
			27.097	Heptadecane, 2,6,10,14-tetramethyl-							
27.127	Pentadecane	ramifié									
						27.161	1-Iodo-2-methylundecane	ramifié			
			27.191	Octacosane	ramifié				27.195	Heptadecane, 2,6,10,14-tetramethyl-	
27.217	Tricosane, 2-methyl-										
						27.329	Eicosane	ramifié			
			27.358	1-Iodo-2-methylundecane	pas l'iode				27.360	Hexadecane, 3-methyl-	
27.383	Octacosane	ramifié									
									27.802	Nonadecane	
									27.970	Pentadecane	
			28.111	Eicosane	n C15	28.069	Eicosane	n C15			
28.164	Eicosane	n C15									
						28.757	Dodecanoic acid, methyl ester	ester			
29.609	Tetracosane		29.594	Octacosane							
30.49	Eicosane	n C16	30.45	Eicosane	n C16	30.43	Eicosane	n C16			

2			9			6					
31.5		ramifié	31.5		ramifié						
32.713	Eicosane	n C 17	32.701	Eicosane	n C17	32,.686		n C17			
						33.282	Methyl tetradecanoate	ester			
34.833	Eicosane	n C19	34.833	Eicosane	n C19	34. 8		n C18			
34.938		ramifié									
36.86		n C20	36.86		n C20						
						37.377	9-Octadecenoic acid, 12-(acetyloxy)-, me	ester 74, 87			
38, 8		n C21	38, 8		n C21						
40.66		n C22	40.66		n C22						
42.428		n C23	42.428		n C23						
			44.129		n C24						
			45.756		n C25						
			47.329		n C26						
			48.840		n C29						
			50.287		n C30						

Annexe 2. Concentrations en COV mesurées dans l'enceinte expérimentale lors du fonctionnement des poêles à pétrole (échantillonnage sur 5 h, canisters de 6L, taux d'échantillonnage de 18 mL.min^{-1}, taux de renouvellement d'air de 6,6 h^{-1})

Type de poêle	**Poêle à mèche**		**Poêle électronique**		**Poêle à mèche**	
Carburant	**PTX 2000**		**Zibro Optimal**		**Zibro Bio**	
Durée de prélèvement (h)	***4.7***		***5.0***		***4.3***	
Composé	concentration (ppb)	concentration/ niveau de fond	concentration (ppb)	concentration/ niveau de fond	concentration (ppb)	concentration/ niveau de fond
1,2,3-triméthylbenzène	nd	nd	0,01	1,0	0,73	6,3
1,2,4-triméthylbenzène	0,44	4,6	nd	nd	1,22	7,9
1,3,5-triméthylbenzène	0,14	6,1	0,34	2,6	1,03	8,7
1,3-butadiène	**5,02**	**121,3**	**1,10**	**17,2**	**6,16**	**201,9**
2,2,3-triméthylbutane	0.22	0.2	nd	nd	0.24	45.2
2,2-diméthylbutane	1.37	33.6	0.18	2.2	1.81	32.6
2,2-diméthylpentane	nd	nd	nd	nd	nd	1.0
2,3-diméthylbutane	0.12	2.1	nd	nd	nd	nd
2,3-diméthylpentane	0.03	0.0	0.13	0.1	nd	nd
2,4-diméthylpentane	nd	nd	nd	nd	0.05	3.1
2-méthylhexane	0.10	0.1	0.27	0.3	nd	nd
2-méthylpentane	nd	nd	0.09	1.3	0.27	1.9
3,3-diméthylpentane	0.14	0.1	nd	nd	0.10	8.1
3-méthylbut-1-ène	0,28	0,3	0,12	10,8	0,38	0,4
3-méthylpentane	0,08	1,5	0,01	1,1	nd	nd
benzène	**7,76**	**12,6**	**1,52**	**5,1**	**12,63**	**53,1**
but-1-ène	3,64	83,8	1,53	13,3	3,80	109,7
but-1-yne	0,14	0,1	0,02	0,0	0,16	0,2
C_5_coélués: 2-méthyl-2-butène 1-pentène 2-méthyl-1-butène	1,30	31,4	0,32	2,4	1,69	19,8
cis-but-2-ène	0,37	0,4	0,20	3,4	0,45	25,6
cis-pent-2-ène	0,18	0,2	0,08	4,1	0,24	19,0
cyclohexane	0,17	0,2	0,20	0,2	0,04	1,3
cyclopentène	0,39	0,4	nd	nd	0,29	0,3
éthane	56,35	14,5	3,09	1,5	6,60	3,7
éthylbenzène	0,28	4,5	0,05	1,3	0,45	4,5
éthylène	**64,75**	**36,7**	**32,41**	**19,1**	**101,91**	**120,5**
hex-1-ène	0,71	31,8	0,22	3,0	1,04	8,4
isobutane + acétylène	**33,13**	**52,8**	**11,11**	**9,2**	**97,15**	**198,8**
isobutène	2,24	34,0	nd	nd	**1,93**	**37,4**
isooctane	0,31	6,3	0,03	1,3	0,47	5,5
isopentane	0,04	1,1	nd	nd	nd	nd
isoprène	0,65	3,3	0,21	1,2	0,71	2,6
m,p-xylènes	0,23	2,0	nd	nd	0,35	2,0
n-butane	0,15	1,1	nd	nd	nd	nd
néopentane	nd	nd	nd	nd	nd	nd
n-heptane	nd	nd	nd	nd	0,08	1,9
n-hexane	0,01	1,0	0,17	2,0	0,07	1,7
n-octane	0,08	3,0	nd	nd	0,10	2,7
n-pentane	0,08	1,2	0,04	1,1	nd	nd
o-xylène	0,35	5,1	nd	nd	0,18	2,6
propane	0,53	1,2	0,11	1,0	0,61	1,4
propène	**19,23**	**47,2**	**6,62**	**17,0**	**22,27**	**116,8**
propyne	1,61	42,2	0,54	11,1	1,74	82,9
toluène	1,56	5,4	0,15	1,1	1,61	3,5
trans-but-2-ène	0,47	73,3	0,97	12,4	0,55	31,8
trans-pent-2-ène	0,26	0,3	0,11	3,1	0,36	16,4

Annexe 3. Protocole de prélèvement et d'analyse des badges Ogawa

3.1. Protocole de prélèvement

Ouvrir un côté du badge en retirant le couvercle diffusif, retirer la première grille à l'aide d'une pince et placer sur la seconde le filtre de collection spécifique aux NO_x. Le recouvrir de la première grille et refermer le badge à l'aide du couvercle diffusif. Procéder de la même façon avec l'autre couvercle diffusif, de façon à placer le filtre de collection spécifique à NO_2. Placer ensuite le badge passif dans un pochon refermable, puis dans une boîte en plastique. Conserver le tout au réfrigérateur jusqu'à emploi.

Sur le lieu de prélèvement, retirer le badge Ogawa de sa boîte et le sortir du pochon. Noter l'heure de début et de fin d'exposition, ainsi que le lieu échantillonné.

3.2. Protocole analytique

Matériel et produits

Balance de précision, réfrigérateur, spectrophotomètre UV,

Spatule, pince, propipette (5 mL)

Verre de montre, béchers, fioles jaugées (1 L, 100 mL), vials (22 mL)

Eau distillée

Acide orthophosphorique (qualité HPLC, 85%, Fluka)

N-(1-Naphtyl)-éthylènediamine (NEDA) (réactif ACS, pureté ≥ 98 %, Fluka)

Nitrite de sodium (99,999 %, Sigma Aldrich)

Sulfanilamide (pureté ≥ 99 %, Sigma Aldrich)

Préparation de la gamme d'étalonnage

Préparer une solution standard stock de nitrites (1,5 mg nitrites/mL) :

Sécher le nitrite de sodium à l'étuve pendant **4h** à 105-110°C. Peser **1,5 g** de nitrite de sodium. Transvaser le nitrite de sodium dans une fiole de **1L**, et la compléter jusqu'au trait de jauge avec de l'eau distillée.

Préparer les solutions de calibration de nitrites

Diluer la solution standard stock de nitrites par 100. Pour cela, prélever 1 mL de la solution, le mettre dans une fiole de 100 mL et la compléter avec de l'eau distillée. On obtient ainsi une **solution standard à 10 µg nitrites/mL.** Prélever les quantités indiquées dans le Tableau A de cette solution dans des fioles jaugées de 100 mL. Compléter avec de l'eau distillée.

Solutions de la gamme étalon (µg nitrites/mL)	0,00	0,05	0,10	0,15	0,25	0,40
Solution standard à 10 µg nitrites/mL (mL)	0,00	0,50	1,00	1,50	2,50	4,00
Eau distillée (mL)	100,0	99,5	99,0	98,5	97,5	96,0

Tableau A. Contenu des solutions de calibration

Verser 8 mL de chaque solution de la gamme étalon dans un vial de 22 mL préalablement étiqueté, fermer les vials et les entreposer au réfrigérateur (2-6 °C) pendant 30 min minimum.

Préparation de l'échantillon

Récupérer le filtre de collection exposé :

Remplir un vial en verre de 22 mL avec **8 mL** d'eau distillée et y mettre le filtre Ogawa à l'aide d'une pince. Fermer le vial et l'agiter de façon ponctuelle pendant **30 min.** Placer le vial au réfrigérateur (2-6°C) pendant 30 min minimum.

Préparer les blancs (filtres de collection non exposés) :

Mettre 3 filtres non exposés spécifiques à NO_2 et aux NO_x dans des vials vides. Ajouter **8 mL** d'eau distillée dans chaque vial. Fermer les vials et les agiter de temps à autre pendant **30 min.** Les placer au réfrigérateur.

Préparer le réactif de coloration :

Préparer la solution de **sulfanilamide** dans une fiole jaugée de 1L en versant 700 mL d'eau distillée et 200 mL d'acide ortho-phosphorique concentré. Peser puis dissoudre **80 g** de sulfanilamide. Compléter la fiole jusqu'au trait de jauge avec de l'eau distillée.

Préparer la solution de **N-(1-Naphtyl)-éthylènediamine (NEDA)** dans une fiole jaugée de 100 mL. Pour cela, peser puis dissoudre **0,56 g** de NEDA dans 100 mL d'eau distillée. Stocker la solution au réfrigérateur.

Préparer le **réactif de coloration JUSTE AVANT USAGE** en mélangeant la solution de sulfanilamide (10 volumes) à la solution de NEDA (1 volume).

Ajouter le réactif de coloration aux solutions de la gamme étalon et aux échantillons :

Sortir la gamme étalon et les échantillons du réfrigérateur.

⇒ Pour les échantillons suspectés trop concentrés :

Diluer les échantillons par 10. Pour cela, prélever 0,8 mL de surnageant et le transférer dans un autre vial préalablement étiqueté. Ajouter 7,2 mL d'eau distillée et 2 mL de réactif de coloration à chaque vial (solutions étalon et échantillons dilués).

⇒ Pour les échantillons moins concentrés :
Prélever 4 mL de surnageant et les transférer dans un autre vial préalablement étiqueté. Ajouter 1 mL de réactif de coloration.

Mélanger ensuite rapidement et replacer le vial au réfrigérateur pendant 30 min.

Analyse

Sortir le vial à T_{amb}, environ 20 min. Utiliser le spectrophotomètre UV réglé à **545 nm** pour relever les valeurs d'absorbance**.** L'exploitation des résultats se fait en traçant la droite de calibration.

Annexe 4. Ecarts relatifs calculés entre les mesures de NO_x par badges Ogawa et les mesures de l'analyseur à chimiluminescence en laboratoire.

Date de prélèvement	Date d'analyse	ACH*	Temps de prélèvement (min)	[NO_2] (ppb) mesure par badge Ogawa	[NO_2] (ppb) mesure par chimiluminescence	Ecart relatif NO_2 (%)	[NO_x] (ppb) mesure par badge Ogawa	[NO_x] (ppb) mesure par chimiluminescence	Ecart relatif NO_x (%)	Poêle	Carburant
10/05/2010 (2)		7	165	231	160	44				Electronique	PTX 2000
11/05/2010		7	183	277	195	42				Electronique	PTX 2000
12/05/2010 (1)	09/07/2010	7	137	352	274	29				Electronique	PTX 2000
12/05/2010 (2)		7	119	171	101	70				Electronique	PTX 2000
05/07/2010		7	143	318	226	41				Radiant	Zibro Bio
21/07/2010 (1)		30	65	179	206	36				Radiant	Zibro Bio
21/07/2010 (2)		25	60	219	205	27				Radiant	Zibro Bio
21/07/2010 (3)		7	60	490	325	33				Radiant	Zibro Bio
22/07/2010 (1)		10	61	395	247	59				Radiant	Zibro Bio
22/07/2010 (3)		18	61	255	169	49				Radiant	Zibro Bio
26/07/2010 (1)	06/09/2010	36	206	98	87	10				Radiant	Zibro Bio
26/07/2010 (2)		36	206	91	92	3				Radiant	Zibro Bio
27/07/2010 (1)		36	206	92	89	1				Radiant	Zibro Bio
27/07/2010 (2)		7	113	479	386	24				Radiant	Zibro Bio
28/07/2010 (1)		7	113	468	360	29				Radiant	Zibro Bio
28/07/2010 (2)		7	116	508	433	17				Radiant	Zibro Bio
20/09/2010		5	60	286	184	56				Radiant	PTX 2000
21/09/2010		5	116	239	142	68				Radiant	PTX 2000
22/09/2010		5	115	243	170	43				Electronique	Zibro Bio
28/09/2010	28/10/2010	5	115	309	224	38				Electronique	Zibro Bio
29/09/2010		5	114	235	156	51				Radiant	PTX 2000
30/09/2010		5	125	210	171	23	705	490	44	Electronique	Zibro Bio
04/10/2010		5	113	243	164	48	647	657	81	Radiant	PTX 2000

05/10/2010	5	113	231	145	59	636	319	99	Radiant	Zibro Optimal
06/10/2010	5	113	247	151	64	708	364	95	Radiant	Zibro Optimal
12/10/2010 (1)	5	113	247	175	41	718	468	54	Radiant	Zibro Optimal
12/10/2010 (2)	5	113	245	191	29	694	455	53	Radiant	Zibro Optimal
13/10/2010	5	116	285	189	51	637	433	47	Radiant	Zibro Optimal
14/10/2010 (1) [1]	5	115	316	245	29	884	708	25	Electronique	Zibro Optimal
14/10/2010 (2)	5	115	307	239	29	897	674	33	Electronique	Zibro Optimal
15/10/2010 (2)	5	115	238	187	27	700	518	35	Electronique	PTX 2000
18/10/2010	5	115	249	220	13	793	618	28	Electronique	PTX 2000
* Taux de renouvellement d'air par heure		**moyenne**			**37**			**54**		
		écart-type			***18***			***27***		

[1] Date de changement de lot de filtres spécifiques à NO_2.

Annexe 5. Protocole de prélèvement et d'analyse des badges G.A.B.I.E.™

5.1. Protocole de prélèvement

Enlever le capuchon de protection du badge sur le lieu de prélèvement. Noter si le badge est placé dans une boîte ou directement dans l'enceinte. Noter l'heure de l'échantillonnage. Noter les conditions ambiantes (T, RH, ventilation). En fin d'échantillonnage, refermer soigneusement le badge et noter l'heure. Conserver les prélèvements à l'abri de toute source de pollution.

5.2. Protocole analytique

Matériel et produits

Vials 22 mL, béchers

Seringue 5 mL + aiguille

Entonnoir

Disulfure de carbone (CS_2) (Pureté ≥ 99,9 %, Sigma-Aldrich)

Acétate de butyle (réactif ACS, pureté ≥ 99,5 %, Sigma-Aldrich)

Préparation de l'échantillon

Vérifier l'intégrité du badge (bien fermé, non abîmé), enlever le bouchon en polyéthylène transparent (couvercle d'isolement). Exercer une légère pression sur le capot en le dévissant pour le retirer et ôter l'entretoise ainsi que le disque de mousse en polyuréthane. Faire attention de ne pas éparpiller les grains de charbon actif.

A l'aide d'une pince, retirer la grille de maintien du support de piégeage et verser le contenu du badge dans le vial grâce à un entonnoir. Vérifier qu'il n'y ait pas de grain piégé dans la grille. Peser ensuite le vial contenant le charbon actif.

Prélever 5 mL de disulfure de carbone à l'aide de la seringue, en retournant la bouteille et en perçant le septum. Redresser la bouteille avant de retirer l'aiguille du septum (SINON FUITES!!!). Verser la solution dans le vial et le refermer. Peser de nouveau le vial.

Mettre 0,5 µL d'acétate de butyle dans le vial (étalon interne) et l'agiter pendant 30 min, puis injecter l'échantillon immédiatement après.

Analyse

Les analyses par GC-FID (GC HP6890 Series) sont faites avec les paramètres suivants :

Colonne : Agilent HP-5 (5%-diphényl-35%-diméthylpolysiloxane) : 30 m x 0,32 mm x 0,25 µm

Programmation en température du four : de 40 à 65 °C à 3 °C/min, puis de 65 à 185 °C à 10

°C/min, et enfin de 185 à 250 °C à 1,5 °C/min.

Gaz vecteur : Hélium (1 mL/min)

Délai de solvant : 2,5 min

$T_{injecteur}$: 250°C

$T_{détecteur}$: 280°C

$V_{injecté}$: 1 µL

Temps de rétention du benzène : 2,9 min

Les analyses par GC-MS (Hewlett Packard G 1800 B GCD System) sont faites avec les paramètres suivants :

Colonne : Agilent HP-5 (5%-diphényl-35%-diméthylpolysiloxane) : 30 m x 0,25 mm x 0,25 µm

Programmation en température du four : de 40 à 65 °C à 3 °C/min, puis de 65 à 185 °C à 10 °C/min, et enfin de 185 à 250 °C à 1,5 °C/min.

Gaz vecteur : Hélium (1 mL/min)

Délai de solvant : 2,5 min

$T_{injecteur}$: 300 °C

$T_{détecteur}$: 300 °C

$V_{injecté}$: 1 µL

Gamme de m/z : 10-450

Annexe 6. Protocole de prélèvement et d'analyse des badges UME^{x} 100

6.1. Protocole de prélèvement

Ouvrir l'étui d'aluminium et retirer l'échantillonneur

Indiquer la date et le lieu d'échantillonnement sur le badge. Relever également la température et la pression du lieu échantillonné.

Positionner le badge de façon parallèle au flux d'air

Faire glisser le couvercle sur la position « on » pour démarrer le prélèvement, et inscrire l'heure de début d'échantillonnage au dos du badge.

Pour arrêter le prélèvement faire glisser le couvercle en sens inverse sur la position « off ». Noter l'heure de fin de prélèvement.

Placer immédiatement le badge dans l'étui d'aluminium et stocker au réfrigérateur avant analyse (maximum 3 semaines). Le stockage des badges avant et après le prélèvement doit être fait dans un environnement à 4°C. En effet, à des températures plus élevées, la 2,4-DNPH peut se décomposer et former la 2,4-dinitroaniline, qui peut être coéluée avec le formaldéhyde hydrazone (OSHA Method 1007, 2005).

6.2. Protocole analytique

Le protocole analytique utilisé est une adaptation de méthode (OSHA Method 1007, 2005) provenant de l'administration américaine de la sécurité au travail et de la santé (Occupational Safety & Health Administration).

Matériel et produits :

Pince, propipette (5 mL)

Bécher

Vials (4 mL)

Acétonitrile (qualité Chromasolv® pour HPLC, pureté ≥ 99,9 %, Sigma-Aldrich)

Acide orthophosphorique (qualité HPLC, 85%, Fluka)

Mélange standard de composés carbonylés (Carbonyl-DNPH Mix 1 ; 20 µg/mL dans l'acétonitrile, Supelco)

Préparation de l'échantillon :

Nettoyer une pince à l'acétonitrile. Etiqueter deux vials (4 mL) : un blanc et un échantillon. Mettre 2,0 mL d'acétonitrile dans chaque vial (solution de dérivation).

Retirer l'échantillonneur de son emballage, et faire glisser le couvercle. Retirer à l'aide de la pince la

bande de chaque compartiment, et les placer dans leur vial respectif. Agiter les vials pendant 15 minutes, puis injecter immédiatement le surnageant, car la concentration de produit dérivé diminue avec le temps s'il reste en contact avec le badge de silice.

Analyse :

Injecter 10 µL de solution contenue dans le vial dans le système HPLC équipé d'une colonne Restek Pinnacle TO-11 5 µm, 250 x 4,6 mm (35% d'eau/65% ACN/0,2% acide phosphorique, à 1 mL/min).

La détection du formaldéhyde 2,4-dinitrophénylhydrazone se fait entre 230 et 370 nm, et à 365 nm (Temps de rétention obtenus : DNPH à 3.9 min et formaldéhyde à 4.8 min.)

On utilise une méthode de calibration externe, en traçant la réponse du standard externe en fonction de l'analyte (en µg/mL). Attention, l'échantillon étant extrait avec 2 mL d'ACN, la masse par échantillon est en µg/mL x 2 mL.

Annexe 7. Fiche d'information au volontaire

Qualité de l'air intérieur des logements : quel rôle des chauffages au pétrole ?



Fiche d'information des volontaires





Objectif de l'étude :

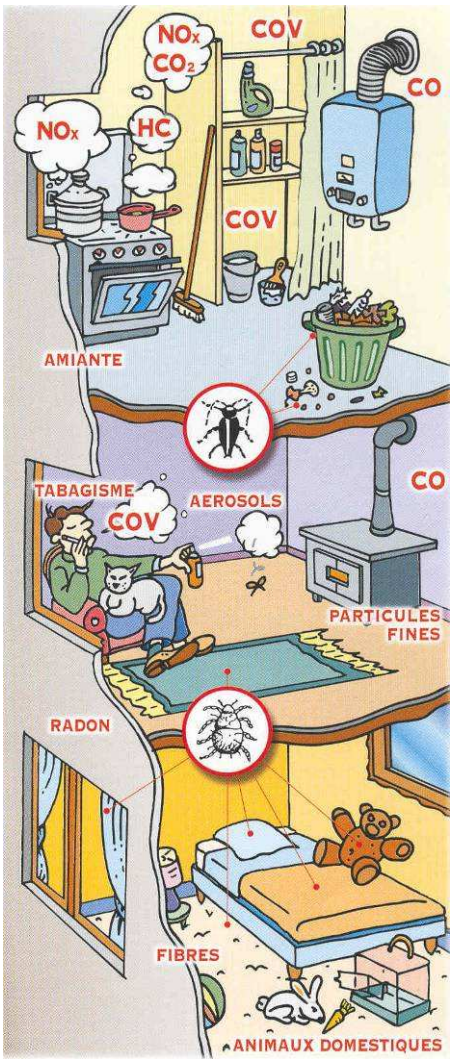


L'objectif de cette étude est de mieux connaître le rôle des chauffages au pétrole dans la pollution de l'air intérieur des logements.

Que mesure-t-on ?



Durant cette étude, nous mesurerons chez vous différents polluants[1] régulièrement retrouvés dans les logements. Les sources peuvent être le chauffage au pétrole mais aussi les produits ménagers, le tabac, les autres modes de chauffages (cf. schéma ci-contre)…





Durant 7 jours, du matériel (peu encombrant) sera installé à votre domicile (exemple sur photo de gauche). De plus amples informations sur le fonctionnement des appareils pourront vous être données lors de notre première visite.

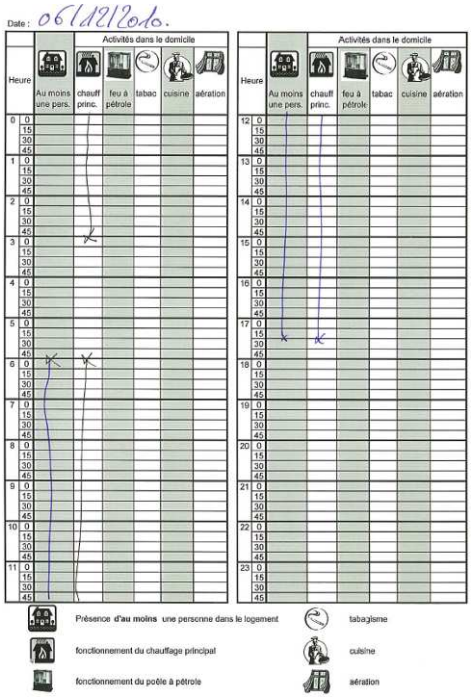
[1] dioxyde de carbone (CO_2), monoxyde de carbone (CO), oxydes d'azote (NOx), Composés Organiques Volatiles (COV), formaldéhyde.

Que vous demandera-t-on ?



Pour interpréter les résultats des mesures, nous avons besoin d'un certain nombre d'informations sur les différentes sources de polluants présentes dans votre logement. Lors de notre première visite, nous vous interrogerons donc sur le type de chauffage dont vous disposez, sur la ventilation des différentes pièces ou encore sur la réalisation de travaux récents dans votre domicile ... C'est ce qu'on appelle le « **Cadre de vie** ».

Nous vous demanderons également de remplir, durant la semaine de mesures, un planning « **activités du logement** ». Ce document nous permet de connaitre la durée de fonctionnement du chauffage au pétrole, mais aussi d'autres paramètres comme les périodes d'aération, indispensables là encore pour nous permettre d'interpréter nos mesures.



Quand ont lieu les mesures ?

La durée des mesures est de 7 jours. Les créneaux horaires exacts de nos visites seront fixés avec vous en fonction de vos disponibilités.

Comment seront exploitées les informations ?



Les données recueillies seront traitées sur le plan statistique de manière **totalement anonyme** (étude déclarée auprès de la CNIL – Commission Nationale Informatique et Liberté).

Vous obtiendrez un rendu personnalisé de vos propres résultats.

Pour de plus amples informations, n'hésitez pas à nous contacter au :



03.20.31.71.57

(Demandez Aurore Deconinck)

Vous pouvez également nous joindre par courrier électronique à l'adresse suivante :

postmaster@appanpc.fr

Ce projet est réalisé par :

l'**APPA** (Association pour la Prévention de la Pollution Atmosphérique)
et le laboratoire **PC2A** (Physicochimie des Processus de Combustion et de l'Atmosphère),
Université de Lille 1 / CNRS

Avec le soutien
du **Conseil Régional Nord – Pas de Calais**
et de
l'**ADEME**
(Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie)

Conformément aux dispositions de la loi "Informatique et libertés" n° 78-17 du 6 janvier 1978, vous disposez d'un droit d'accès, de modification, de rectification et de suppression des informations vous concernant. Pour exercer ce droit, vous pouvez vous adresser par courrier ou par mail au comité régional APPA Nord – Pas de Calais (235 avenue de la Recherche – BP 86 59373 LOOS Cedex – postmaster@appanpc.fr)

Annexe 8. Questionnaire "Cadre de vie"

Questionnaire "Cadre de vie"

Qualité de l'air intérieur des logements

:

quel rôle des chauffages au pétrole ?

2010 - 2011

Conformément aux dispositions de la loi "Informatique et libertés" n° 78-17 du 6 janvier 1978, vous disposez d'un droit d'accès, de modification, de rectification et de suppression des informations vous concernant. Pour exercer ce droit, vous pouvez vous adresser par courrier ou par mail au comité régional APPA Nord – Pas de Calais (235 avenue de la Recherche – BP 86 59373 LOOS Cedex – postmaster@appanpc.fr)

Votre foyer :

1- Nombre de personnes vivant dans le foyer : _____

2- Nombre d'enfants (moins de 18 ans) : _____

3-Quelles sont les activités professionnelles des habitants de votre foyer ? (indiquer sur la première ligne le demandeur de l'étude)

	Sexe (H/F)	Age (en années)	Activité professionnelle
Personne 1 (demandeur de l'étude)			
Personne 2			
Personne 3			
Personne 4			
Personne 5			

Votre logement :

4- En semaine, la circulation routière dans un rayon de 100 mètres autour de votre domicile est elle ?

☐ Dense / flux continu de véhicules
☐ Moyenne / flux discontinu de véhicules
☐ Légère / quelques véhicules parfois

5- Quel est le type de votre logement ? …...

☐ Maison indépendante
☐ Appartement
☐ Autre (préciser)……

Quelle est, la surface totale de votre logement (en m²) ?

☐ Moins de 40 m²
☐ De 40m² à moins de 70m²
☐ De 70m² à moins de 100m²
☐ De 100m² à moins de 150m²
☐ 150m² ou plus

6- S'il s'agit d'un immeuble, à quel étage habitez-vous ? ……..……./___//___/
(Indiquer 0 pour rez-de-chaussée)

7- Description des pièces principales de votre logement :

	Surface (en m²)	**Hauteur de plafond (en m)**	**Ouvertures (1)**	**Ventilation (2)**	**Revêtement de sol (3)**	**Revêtement mural (4)**
Cuisine						
Séjour						
Bureau						
Chambre 1						
Chambre 2						
Chambre 3						

(1)Ouvertures donnant directement sur l'extérieur (nombre)
(2)Ventilation Mécanique Contrôlée (VMC) – **en état de fonctionnement**, Ventilation Naturelle (VN), Aucune Ventilation (AV)
(3) Moquette, revêtement plastique, carrelage, lambris…
(4) Moquette, tapisserie, crépi, revêtement plastique, carrelage, lambris…

8- Avez-vous un garage ouvrant directement sur votre domicile ? ☐ Oui ☐ Non

9- Vous arrive-t-il de trouver que l'air de votre logement est trop humide ?
☐ Jamais
☐ Parfois
☐ Souvent
☐ Toujours
☐ NSP

9bis– Y-a-t-il parfois des traces de condensation sur les vitres de votre logement ?

☐ Jamais
☐ Parfois
☐ Souvent
☐ Toujours
☐ NSP

10- Y a-t-il eu des moisissures sur une surface quelconque à l'intérieur de la maison (mur, plafond, joint de carrelage...) ?

☐ Oui **(**Préciser) _____
☐ Non
☐ NSP

Est-ce que cela s'est produit dans les 12 derniers mois ?

☐ Oui **(**Préciser) _____
☐ Non
☐ NSP

11- Quel type de cuisinière utilisez-vous ? (Cochez la ou les bonnes réponses)

☐ Electrique
☐ Gaz
☐ Mixte (gaz / électrique)
☐ Combustible solide (bois, charbon…)
☐ Autre (préciser)……

12- Utilisez-vous une hotte **?**

☐ Oui, avec un filtre qui renvoie l'air vers la cuisine
☐ Oui, avec une évacuation vers l'extérieur
☐ Non

13- Possédez-vous un chauffe eau au gaz non raccordé ?

☐ Oui (localisation :_____)
☐ Non

Activités de votre logement

14- Combien de personnes (vous inclus) fument dans votre foyer ? …… /___/ /___/

15- Depuis ces 12 derniers mois, votre logement a-t-il était l'objet de rénovation ?

☐ Oui
☐ Non

Si oui : Quelle est la date de fin de ces travaux ? (date du jour si en cours)

/__/__/ jour /__/__/ mois /__/__/__/__/ année

15bis- Y avait il des travaux de peintures, de papier peint, de vernissage, … ?

☐ Oui
☐ Non
☐ Autres travaux **(**Préciser) : _____

16- Avez-vous introduit dans votre logement des nouveaux meubles en bois aggloméré au cours des 6 derniers mois ?

☐ Oui
☐ Non
☐ NSP

17- Est-ce que vous-même ou une autre personne de votre logement a pratiqué l'une des activités suivantes **au cours de la semaine qui vient de s'écouler ?** (Cochez la ou les bonnes réponses)

☐ Bricolage
☐ Loisirs créatifs
☐ Jardinage (fleurs d'intérieur)
☐ Nettoyage intérieur important
☐ Autres :

18- Préciser quels produits ont été utilisés lors de ces activités :

☐ Solvants (précisez :_____)
☐ Colle (précisez :_____)
☐ Pesticides (précisez :_____)
☐ Peinture (précisez :_____)
☐ Produits de nettoyage (précisez :_____)
☐ Autres :

19- Est-ce que vous-même ou une autre personne de votre logement a utilisé des désodorisants d'intérieur **au cours de la semaine qui vient de s'écouler ?** (Cochez la ou les bonnes réponses)

☐ Désodorisants en aérosols
☐ Désodorisants - prise
☐ Désodorisants – autres (préciser :
.....)
☐ Bougies / bâtonnets d'encens

Votre chauffage :

20- Comment utilisez-vous votre poêle à pétrole ?

☐ Comme chauffage principal
☐ Comme chauffage d'appoint

21- Possédez-vous une cheminée dont vous faites usage?

☐ Oui
☐Non

22- Au domicile, quels sont vos types de chauffage ? (Cochez la ou les bonnes réponses)

Types de chauffage :	**Localisation :**
☐ Chauffage collectif	_____
☐ Electrique	_____
☐ Gaz	_____
☐ Bois	_____
☐ Charbon	_____
☐ Fioul	_____
☐Autre (préciser) : _____	

23- Possédez-vous des moyens de chauffage complémentaires ?

24- **Si oui**, précisez le (les) quel(s) et la / les pièces concernée(s)

Commentaire libre :

25- Combien possédez-vous de poêle à pétrole ? /___/

	POELE A PETROLE 1	**POELE A PETROLE 2**	**POELE A PETROLE 3**	**POELE A PETROLE 4**
Quelle est la marque de votre poêle ? ***Prendre une photo de la plaque signalétique du poêle*** ***Marque + modèle du poêle***	☐ Corona ☐ Zibro ☐ Inverter ☐Autre : _____	☐ Corona ☐ Zibro ☐ Inverter ☐Autre : _____	☐ Corona ☐Zibro ☐ Inverter ☐Autre : _____	☐ Corona ☐ Zibro ☐ Inverter ☐Autre : _____
De quel type de poêle s'agit-il ?	☐Chauffage à mèche ☐Chauffage électronique	☐Chauffage à mèche ☐Chauffage électronique	☐Chauffage à mèche ☐Chauffage électronique	☐Chauffage à mèche ☐Chauffage électronique
Quel âge a-t-il ?	_____ ans	_____ ans	_____ ans	_____ ans
Votre poêle possède-t-il un filtre ? (poêle électroniqu ***Regarder avec la personne***	☐ Oui ☐ Non	☐ Oui ☐ Non	☐ Oui ☐ Non	☐ Oui ☐ Non

Réalisez-vous un entretien régulier du filtre ? **Si oui à quelle fréquence ?**	☐ Oui ☐ Non Fréquence : _____	☐ Oui ☐ Non Fréquence : _____	☐ Oui ☐ Non Fréquence : _____	☐ Oui ☐ Non Fréquence : _____
Votre poêle a-t-il déjà été révisé ?				

Si Oui, quelle est la date de sa dernière révision? **Par qui ?**	**Date :** ☐Un professionnel ☐Vous-même	**Date :** ☐Un professionnel ☐Vous-même	**Date :** ☐Un professionnel ☐Vous-même	**Date :** ☐Un professionnel ☐Vous-même
Votre poêle possède-t-il un système de sécurité ?	☐ Oui ☐ Non	☐ Oui ☐ Non	☐ Oui ☐ Non	☐ Oui ☐ Non
Si oui de quel(s) type(s) ? **(cocher la/les bonne(s) réponse(s))**	☐Anti-renversement ☐ Anti–CO ☐Autre : _____	☐Anti-renversement ☐ Anti–CO ☐Autre : _____	☐Anti-renversement ☐ Anti–CO ☐Autre : _____	☐Anti-renversement ☐ Anti–CO ☐Autre : _____
Dans quelle pièce de la maison se trouve t-il ?				

Y a-t-il une ventilation dans cette pièce ?	☐ Oui ☐ Non	☐ Oui ☐ Non	☐ Oui ☐ Non	☐ Oui ☐ Non
Si oui, de quel type ?	☐ Grille ☐ Mécanique ☐ Naturelle	☐ Grille ☐ Mécanique ☐ Naturelle	☐ Grille ☐ Mécanique ☐ Naturelle	☐ Grille ☐ Mécanique ☐ Naturelle
Aérez-vous la pièce lorsque le poêle fonctionne ?	☐ Oui ☐ Non	☐ Oui ☐ Non	☐ Oui ☐ Non	☐ Oui ☐ Non
Quelle est, en Watt, la puissance de votre poêle à pétrole ?	_____ **W**	_____ **W**	_____ **W**	_____ **W**
Quel est le réglage de votre poêle à pétrole ? (température)				
Votre poêle émet-il des odeurs gênantes ?	☐ Non ☐ Oui ☐ Parfois	☐ Non ☐ Oui ☐ Parfois	☐ Non ☐ Oui ☐ Parfois	☐ Non ☐ Oui ☐ Parfois
Si Oui, à quel moment ?				

Est-ce qu'il vous arrive de faire fonctionner votre poêle pendant la nuit/lorsque vous dormez ?	☐ Non ☐ Oui ☐ Parfois	☐ Non ☐ Oui ☐ Parfois	☐ Non ☐ Oui ☐ Parfois	☐ Non ☐ Oui ☐ Parfois
Est-ce qu'il vous arrive de faire fonctionner votre poêle lorsqu'il n'y a personne dans votre logement ?	☐ Non ☐ Oui ☐ Parfois	☐ Non ☐ Oui ☐ Parfois	☐ Non ☐ Oui ☐ Parfois	☐ Non ☐ Oui ☐ Parfois

26- Quel type de pétrole utilisez-vous comme combustible ? _____

27- Où stockez-vous votre pétrole ? _____

28- Quel type de pétrole utilisez-vous comme combustible ? _____

29- Où stockez-vous votre pétrole ? _____

30- Est-ce du pétrole désaromatisé ? ☐ Oui
☐ Non

31- **Si Oui** quel est le pourcentage d'aromatique ? _____

32- Dans quel type de magasin achetez-vous votre pétrole ? ☐ Dans une grande surface
☐ Dans un magasin de bricolage
☐ Autre : _____

33- Ce magasin se trouve t-il ? ☐ En France
☐ En Belgique

34- Achetez-vous toujours votre pétrole au même endroit ? ☐ Oui
☐ Non
Si non précisez : _____

35- Pourquoi avez-vous choisi le poêle à pétrole comme type de chauffage ?

_____

_____

_____

Nous vous remercions d'avoir pris le temps de répondre à ces questions

Annexe 9. Fiche "Activités du logement"

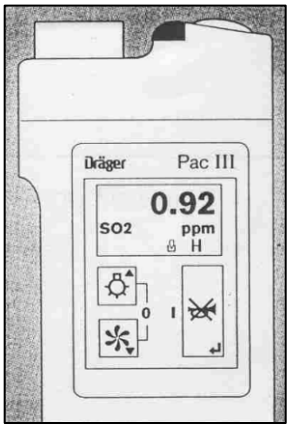
			Activités dans le domicile					
Heure		 Au moins une pers.	 chauff princ.	 feu à pétrole	 tabac	 cuisine	 aération	**DIVERS** (exemple: Allumage de la Cheminée,,,)
0	0							
	15							
	30							
	45							
1	0							
	15							
	30							
	45							
2	0							
	15							
	30							
	45							
3	0							
	15							
	30							
	45							
4	0							
	15							
	30							
	45							
5	0							
	15							
	30							
	45							
6	0							
	15							
	30							
	45							
7	0							
	15							
	30							
	45							
8	0							
	15							
	30							
	45							
9	0							
	15							
	30							
	45							
10	0							
	15							
	30							
	45							
11	0							
	15							
	30							
	45							

Annexe 10. Fiche technique simplifiée du Dräger Pack III

1. Mise en marche / Arrêt de l'appareil



Pour **mettre en marche l'appareil** : appuyer sur la touche  (trompette barrée), plusieurs messages défilent avant d'afficher la concentration de CO en ppm (partie par million).

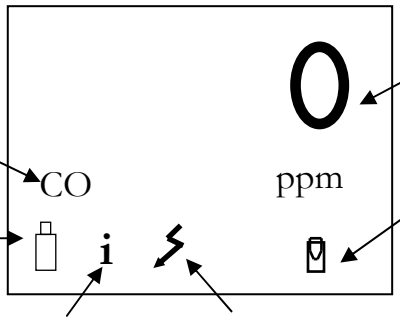


Pour éteindre l'appareil : appuyer simultanément sur les touches :

 et  pendant quelques secondes.

Dans les deux cas **l'appareil émet un son** strident.

2. Affichage



Abréviation du gaz mesuré (ici le monoxyde de carbone : CO)

Valeur de la concentration en CO en ppm (partie par million)

Pile Hors Service

Indique que l'appareil enregistre les données

Présence d'un avertissement (sans caractère urgent)

Présence d'un défaut

3. Alarmes

Pour différentes raisons, l'appareil peut se mettre à **sonner**, voici les cas les plus courants, et consignes à adopter :

Le Dräger peut sonner pour différentes raisons :

Différents cas	Pourquoi ?	Comportement à adopter
Dépassement d'une concentration de CO	EN EFFET LE DRÄGER EST CONFIGURE POUR SONNER LORSQUE LE TAUX DE CO DANS L'AIR DEPASSE LES 60 PPM. IL AFFICHE ALORS SUR L'ECRAN DES TENEURS SUPERIEURES A 60 PPM.	Dans ce cas il suffit d'appuyer sur le bouton (Trompette barrée) sur le Dräger pour arrêter la sonnerie. Les concentrations de CO étant importantes, nous vous conseillons d'**éteindre l'appareil** de chauffage, **d'ouvrir les fenêtres** et de **changer de pièce**.
Interférence avec l'alcool (parfum, cuisine alcoolisée, vaporisateur, ...)	Dans ce cas l'appareil affiche des valeurs de CO très élevé et se met à sonner alors qu'il n'y a aucun danger d'intoxication au CO.	VOUS POUVEZ **ARRETER LA SONNERIE** EN APPUYANT SUR LE BOUTON SYMBOLISANT UNE TROMPETTE BARREE : POUR EVITER QUE L'APPAREIL SONNE DE NOUVEAU, NOUS VOUS CONSEILLONS D'**ELOIGNER** LA SOURCE DU DRÄGER ET D'**AERER** LA PIECE. SI LA SONNERIE PERSISTE VOUS POUVEZ ETEINDRE L'APPAREIL (CF. ***1***). NE PAS OUBLIER DE LE REMETTRE EN MARCHE ENSUITE (CF. ***1***)
Problème de pile	Si le niveau de charge (pile) du Dräger est trop faible, ce dernier se met à sonner (une pile s'affiche sur l'écran)	Eteindre l'appareil (cf. ***1***) et nous contacter.
Autres dysfonctionnements	Le Dräger sonne si un dysfonctionnement apparaît (un éclair s'affiche sur l'écran)	Eteindre l'appareil (cf. ***1***) et nous contacter.

Source *: Mode d'emploi de l'appareil portatif de détection et de mesure de gaz : PAC III E. Dräger*

Dans tous les cas, n'hésitez pas à nous contacter au : 03.20.31.71.57 (APPA)

Annexe 11. Questionnaire de fin d'exposition

QUESTIONNAIRE DE FIN D'EXPOSITION

CODE VOLONTAIRE : / H / /__/__/

1- Est-ce que vous-même ou une autre personne de votre logement a pratiqué l'une des activités suivantes au cours de la semaine écoulée ? (Cochez la ou les bonnes réponses)

☐ Peinture
☐ Loisirs créatifs
☐ Bricolage
☐ Jardinage (fleurs d'intérieur)
☐ Nettoyage intérieur important
☐ Autres :

2- Préciser quels produits ont été utilisés lors de ces activités :

☐ Solvants (précisez :_____)
☐ Colle (précisez :_____)
☐ Pesticides (précisez :_____)
☐ Peinture (précisez :_____)
☐ Produits de nettoyage (précisez :_____)
☐ Autres :

3- Avez-vous changé de pétrole durant la semaine ?

☐ Oui
☐ Non

Si oui, est-ce du pétrole désaromatisé ?

☐ Oui
☐ Non

Quel est le pourcentage d'aromatique ? _____
Dans quel type de magasin avez-vous acheté votre pétrole ?

☐ Dans une grande surface
☐ Dans un magasin de bricolage
☐ Autre : _____

Ce magasin se trouve-t-il ?

☐ En France
☐ En Belgique

Annexe 12. Questionnaire d'évaluation

Evaluation de la semaine :

4- Avez-vous éprouvé des difficultés à remplir les questionnaires ?

☐ Oui
☐ Non

Si Oui, lesquelles : _____

5- Les explications concernant le fonctionnement de l'appareil de mesure (Dräger Pac III) vous ont-elles parues suffisamment claires ?

☐ Oui
☐ Non

6- Le Dräger a-t-il représenté une gêne pendant la semaine de mesure ?

☐ Oui
☐ Non

Si Oui, lesquelles : _____

7- Etes-vous partant pour participer à la campagne été 2011 ?

☐ Oui
☐ Non

Commentaire :

_____
_____
_____

Nous vous remercions d'avoir répondu à notre appel et pour l'attention portée à notre étude.

Annexe 13. Questionnaire "Connaissance des risques" relatif au CO

Connaissance des risques :

8- Connaissez–vous les risques liés à l'utilisation de votre poêle à pétrole ?

	Oui	Un peu	Pas du tout
Risques d'incendies			
Risques de brûlures			
Risques liés au CO			

9- Possédez – vous dans votre habitation un détecteur à monoxyde de carbone ?

☐ Oui
☐ Non

10- Avez-vous eu des renseignements sur les risques liés au poêle à pétrole par le vendeur lors de votre achat ?

☐ Oui
☐ Non
☐ Ne sait pas

11- La notice livrée lors de l'achat vous a-t-elle suffisamment renseignée sur les risques liés au CO et sur les précautions à prendre pour éviter l'intoxication ?

☐ Oui
☐ Non
☐ Ne sait pas

12- Connaissez-vous les conséquences d'une inhalation (trop importante ou trop prolongée) de monoxyde de carbone ?

☐ Oui
☐ Non

13- Connaissez – vous les précautions à prendre pour éviter une intoxication au monoxyde de carbone ?

☐ Oui
☐ Non