



Etude de la pollution de l'air par les composés carbonylés à l'intérieur de différents locaux

Study of indoor air pollution by carbonyl compounds

Frédérique GRIMALDI, Pascale BOTTI, Michel BOUTHIBA, Fernand GOUZO, Alain VIALA (*)
(Collaboration technique : S. CASABLANCA, E. MULS, J. FIGOS, N. ESBERARD, N. MASQUELEZ)

Résumé

Les composés carbonylés, du fait de leurs teneurs parfois importantes dans l'air intérieur, doivent faire l'objet d'une extrême attention, notamment en raison de leurs effets irritatifs et des potentialités cancérogènes que présentent certains d'entre eux. Ils ont été prélevés dans divers locaux d'enseignement et autres par passage de l'air à analyser au travers de cartouches imprégnées de dinitro-2,4-phénylhydrazine. Les hydrazones ainsi formées ont ensuite été éluées à l'acétonitrile et analysées par chromatographie liquide à haute performance. La méthode employée est sélective et donne une réponse linéaire, reproductible et sensible. Les résultats obtenus ont mis en évidence la nécessité d'éviter les opérations de calfeutrage, d'assurer une ventilation efficace et de supprimer, ou tout au moins de limiter les phénomènes de relargage, par le recours à des matériaux, revêtements et mobiliers appropriés.

Résumé

Carbonyl compounds reach indoor occasionally high air concentrations. They must be taken into attentive considerations, particularly because of their irritative and possibly carcinogenic effects. They were sampled in air through Sep-Pak DNPH-Silica cartridges. The 2,4-dinitrophenylhydrazones formed were then eluted with acetonitrile and determined by high-performance liquid chromatography. The used method is selective and gives a linear, reproducible and sensitive response. The obtained results (for formaldehyde, acetaldehyde, acetone, acrolein, crotonaldehyde, butyraldehyde, benzaldehyde, isovaleraldehyde, o-tolualdehyde) inside teaching and other premises showed that it is necessary to avoid the stopping up, to ensure an efficient ventilation and to eliminate, at less to restrict, a possible release, by using appropriate building and coating material and furniture.

Introduction

Les composés organiques volatils (COV) constituent un groupe important de polluants de l'air à l'intérieur des locaux [1] (locaux d'habitation, de travail, ou destinés à recevoir le public). Ils peuvent y être libérés à partir de matériaux de construction (mousses d'isolation par exemple), de certains mobiliers (en bois aggloméré), revêtements (moquettes ou tapisseries encollées, peintures,...), ou provenir de diverses activités humaines (culinaires, tabagiques, scolaires, professionnelles, bricolage,...). Ils peuvent aussi être émis lors de processus extérieurs de combustion et pénétrer dans des

ambiances intérieures. Parmi ces substances, les composés carbonylés, aldéhydes et cétones, sont importants à considérer [2, 3], car ils peuvent être responsables de phénomènes d'irritation au niveau de la peau et des muqueuses (oculaires, naso-trachéales), de réactions allergiques, de toxicité pulmonaire, voire d'atteinte du système nerveux central. Certains d'entre eux (formaldéhyde, acétaldéhyde, crotonaldéhyde) seraient aussi des cancérogènes potentiels.

Nos études ont porté dans un premier temps sur le formaldéhyde et l'acétaldéhyde. Elles ont ensuite été étendues à l'acroléine, au benzaldéhyde et à l'acétone, puis au crotonaldéhyde, au butyraldéhyde, à l'isovaléraldéhyde et à l'o-tolualdéhyde. Les principales sources de ces aéro-contaminants sont indiquées dans le Tableau I [1, 2, 4]. Les dosages dans l'air ont été réalisés dans différents locaux.

(*) Laboratoire de Toxicologie et Pharmacie clinique et Association pour la Prévention de la Pollution Atmosphérique, Comité Marseille-Provence, Faculté de Pharmacie, 27, bd Jean-Moulin, F 13385 Marseille Cedex 5.



Matériels et méthodes

Principe du dosage

Les composés carbonylés présents dans l'air sont aspirés au travers d'une cartouche de silice imprégnée de dinitro-2,4-phénylhydrazine (DNPH). Les hydrazones ainsi formées sont analysées par chromatographie liquide à haute performance. La méthodologie utilisée a été mise au point et validée [5] par référence à de précédentes publications et recommandations [2, 4, 6-9].

Réactifs et étalons

Tous les réactifs sont de qualité « analytique ». Le formaldéhyde (RPE : Reagente Puro Erba), l'acétaldéhyde (RPE), l'acétone (RPE), l'acide chlorhydrique (RPE), l'acétonitrile et le tétrahydrofurane (RS : Reagente Speciale, pour CLHP préparative), la dinitro-2,4-phénylhydrazine (RPE) proviennent de Carlo Erba (Milan, Italie). L'acroléine (pfs : préparé pour Sigma), le benzaldéhyde (pfs), le crotonaldéhyde (pfs), le butyraldéhyde (pfs), l'isovaléraldéhyde (pfs) et l'o-tolualdéhyde (pfs) proviennent de Sigma-Chimie (Saint-Quentin Fallavier). Les cartouches Sep-Pak DNPH-Silice sont fournies par Millipore (Saint-Quentin-en-Yvelines), les pompes AC20 par Piot et Tirouflet (Paris) et les débit-mètres G4 par Magnol (Paris).

Les dinitro-2,4, phénylhydrazones étalons sont préparées comme suit. Un litre d'acide chlorhydrique 2M est saturé avec 8 g de DNPH par agitation magnétique maintenue une heure. Le mélange est passé sur un filtre G4. Un excès deux fois molaire de l'aldéhyde considéré ou d'acétone est ajouté au filtrat. Après agitation magnétique pendant 30 minutes et filtration, l'hydrazone formée est lavée à trois reprises, d'abord par 50 ml d'acide chlorhydrique 2M, puis par 50 ml d'eau distillée ; elle est alors desséchée pendant la nuit dans une étuve à 60 °C. Les solutions étalons sont faites dans l'acétonitrile, sauf pour les hydrazones du benzaldéhyde et du crotonaldéhyde qui sont dissoutes dans du tétrahydrofurane. Conservées à + 4 °C, elles demeurent stables pendant au moins un mois.

Procédure

L'air à analyser est aspiré à l'intérieur des locaux à tester au moyen d'une pompe Piot et Tirouflet et d'un débit-mètre Magnol à raison de 1,2 à 1,5 l par minute (100 à 300 l en tout), à travers une cartouche « Sep-Pak DNPH-Silice ».

Immédiatement après le prélèvement la cartouche est bouchée à ses deux extrémités et conservée à + 4 °C jusqu'à l'analyse ; dans ces conditions elle reste stable pendant au moins deux semaines. Les hydrazones formées sont ensuite éluées de la cartouche par 3 ml d'acétonitrile. 20 µl

de la solution ainsi obtenue sont injectés dans le chromatographe.

Appareil et paramètres chromatographiques

L'analyse chromatographique est pratiquée à l'aide d'un appareillage WATERS-MILLIPORE (Saint-Quentin-en-Yvelines) comprenant une pompe 600 E, un injecteur automatique 717, une colonne « Nova-Pak C18 » (longueur 15 cm, diamètre interne 3,9 mm, taille de particules 4 µm, température ambiante), un détecteur UV 486 affichant la longueur d'onde de 360 nm, et un système informatique 386/25 NEC Powermate. Pour la séparation un gradient d'éluion a été retenu avec deux phases mobiles :

- A : eau/acétonitrile/tétrahydrofurane, 60/30/10, v/v ;
- B : eau/acétonitrile, 40/60, v/v ;

100 % de la phase A sont utilisés pendant une minute, puis un gradient linéaire allant de 100 % de phase A à 100 % de phase B est obtenu en 10 minutes. Le débit est de 1,5 ml par minute.

Calcul

La surface de chaque pic est calculée et comparée à celles obtenues avec les solutions étalons du composé correspondant pour des concentrations comprises entre 0,1 et 10 ng par µl. Pour les concentrations supérieures à 10 ng par µl il est bon de diluer au préalable l'échantillon dans l'acétonitrile.

Performances

La figure 1 (A) montre le chromatogramme obtenu avec les solutions étalons des aldéhydes testés et de l'acétone (pour des concentrations de 5 ng par µl). Les pics correspondant aux 9 composés étudiés sont parfaitement séparés. Dans les limites de concentrations précitées (0,1 à 10 ng par µl) les relations sont linéaires. La méthode est également reproductible et sensible (limite de dosage : 1 ppb pour chacun des composés pour un échantillon de 100 l d'air).

Applications

La méthodologie précédemment élaborée a été appliquée au dosage de un à neuf composés carbonylés à l'intérieur de divers locaux, d'enseignement ou autres.

Locaux d'établissements d'enseignement [5, 10-13]

Les caractéristiques des locaux étudiés sont indiquées dans le Tableau II. Sauf dans la cuisine d'une cafétéria, les portes et fenêtres des locaux étaient fermées au moment du prélèvement. Les

Tableau I.
Principales sources des composés carbonylés dans l'air à l'intérieur des locaux
et concentrations maximales admissibles (en ppm) dans les ambiances professionnelles.
Main sources of carbonyl compounds in the air inside premises and maximum allowable concentrations (in ppm)
in professional surroundings.

Composés	Sources	VME * (France)	VLE • (France)	TLV * (ACGIH) (USA)
Formaldéhyde	Matériaux de construction, colles, mousses d'isolation, peintures, moquettes, bois agglomérés, désinfectants, conservateurs, automobiles, fumée de tabac	0,5	1	0,3
Acétaldéhyde	Matériaux de construction, colles, moquettes, automobile, fumée de tabac	100	—	25
Acétone	Solvant aux multiples usages, automobile	750	—	750
Acroléine	Graisses et huiles surchauffées, automobile, fumée de tabac	—	0,1	0,1
Crotonaldéhyde	Automobile, fumée de tabac	2	—	2
Butyraldéhyde	Automobile, fumée de tabac	pas de norme		
Benzaldéhyde	Matériaux de construction, moquettes, automobile	- id -		
Isovaléraldéhyde	Fumée de tabac	- id -		
O-Tolualdéhyde	Automobile	- id -		

- * VME = Valeur Moyenne d'Exposition
- VLE = Valeur Limite d'Exposition
- * TLV = Threshold Limit Value
- ACGIH = American Conference of Governmental Industrial Hygienists.

résultats obtenus sont présentés dans le Tableau III.

Dans un premier temps, deux locaux d'enseignement, une *salle de classe d'école maternelle* des quartiers Nord de Marseille et un *amphithéâtre de la Faculté de Pharmacie* de la ville ont fait l'objet de dosages ponctuels de formaldéhyde et d'acétaldéhyde, tous les jours ouvrables de la semaine (matin et après-midi), au cours de deux périodes, l'une sans chauffage, l'autre avec chauffage. Les mesures réalisées confirmaient tout d'abord l'émission endogène de petites quantités de formaldéhyde dans la salle de classe pendant les deux périodes. Les concentrations étaient plus élevées le matin, avant la rentrée des enfants, que l'après-midi : le formaldéhyde, vraisemblablement relargué à partir du mobilier en bois aggloméré, peut être aussi à partir d'encollages d'objets exposés dans la salle, se serait concentré dans l'atmosphère au cours de la nuit, l'aération étant moins « active » que dans la journée. L'émission du formaldéhyde était en outre plus importante lors de la période sans chauffage que pendant la période avec chauffage, peut-être en rapport avec l'hygrométrie (respectivement 70,5 et 48 % en moyenne). Quant à l'acétaldéhyde, ses teneurs moyennes dans l'air étaient plus faibles que celles du formaldéhyde, d'un ordre de grandeur similaire pour les deux périodes et sans grande différence entre le matin et l'après-midi.

A l'intérieur de l'amphithéâtre les concentrations en formaldéhyde et en acétaldéhyde étaient

très basses et pratiquement identiques au cours des deux périodes le matin, un peu plus élevées avec une prédominance de l'acétaldéhyde en fin d'après-midi, avant l'aération du local. Cela laissait supposer que ces aldéhydes étaient pour partie d'origine tabagique ; certains étudiants, en effet, fumaient (malgré l'interdiction) entre les cours, ce que confirmaient des dosages de nicotine effectués simultanément dans l'air. Quant à l'hygrométrie (60 % d'humidité relative moyenne en période sans chauffage et 53 % en période avec chauffage), elle ne semblait pas avoir d'influence significative sur les teneurs en aldéhydes.

Les mêmes aldéhydes ont par la suite été dosés dans un *bureau universitaire* dépourvu de système de ventilation ou d'aspiration. 10 cigarettes y avaient été allumées puis abandonnées à la combustion passive dans un cendrier. Au voisinage de ce dernier l'air renfermait 1,45 ppm de formaldéhyde, valeur dépassant largement les concentrations maximales admissibles en France (VME = 0,5 ppm ; VLE = 1 ppm) ou aux Etats-Unis (TLV = 0,3 ppm) dans les ambiances professionnelles (Tableau I), a fortiori la norme de 0,1 ppm fixée pour l'air intérieur aux Etats-Unis, aux Pays-Bas et en Allemagne, ainsi que le niveau de 0,04 ppm mesuré par SCHERER et al [14] et pondéré en fonction du temps dans une pièce ou 120 cigarettes avaient été consommées en 8 heures par des fumeurs. L'aéro-contamination par l'acétaldéhyde était de 1,37 ppm, teneur inférieure aux valeurs limites des Etats-Unis (TLF = 25 ppm) et de la

France (VME = 100 ppm) pour l'environnement professionnel. Ces concentrations aldéhydiques pouvaient déjà faire craindre des effets irritatifs au niveau des voies respiratoires. D'ailleurs, au cours de l'expérimentation elle-même, la personne assurant les prélèvements d'air fut atteinte de toux et de sensation de constriction thoracique dès son entrée dans la pièce enfumée. Rappelons aussi que le formaldéhyde et acétaldéhyde sont classés dans la catégorie C3, qui correspond aux substances préoccupantes en raison d'effets cancérogènes possibles.

L'air de la cuisine d'une *cafétéria universitaire* a été également analysé lors d'une opération de friture effectuée pendant une période de fréquentation maximale par des étudiants fumeurs et non fumeurs. La figure 1 (B) reproduit l'un des chromatogrammes obtenus, où est notée la présence de formaldéhyde, d'acétaldéhyde, d'acétone, d'acroléine et de traces de benzaldéhyde, tirant leurs origines principales des opérations culinaires en cours et de la fumée de tabac environnementale, aucune porte ne séparant la cuisine de la cafétéria du lieu d'accueil des étudiants. La teneur en formaldéhyde (0,11 ppm) était proche de la TLV en vigueur aux Etats-Unis, aux Pays-Bas et en Allemagne pour l'air intérieur (0,1 ppm). La concentration de l'acétaldéhyde était faible (0,09 ppm), de même que celle de l'acétone (0,05 ppm), comparativement aux normes (750 ppm) à respecter en France (VME) et aux Etats-Unis en milieu professionnel. La teneur en acroléine (0,03 ppm), substance provenant dans le cas présent de la décomposition thermique d'huiles ou graisses et/ou de la fumée de tabac environnementale, s'établissait au tiers environ des VLE et TLV (0,1 ppm) admises en France et aux Etats-Unis pour les expositions professionnelles. La faiblesse relative des concentrations en composés carbonylés pouvait s'expliquer par la mise en route d'une hotte aspirante au-dessus de la friteuse, près du point de prélèvement de l'air, et par l'existence d'une porte maintenue ouverte sur l'extérieur pour favoriser la ventilation du local.

D'autres locaux de la *Faculté de Pharmacie de Marseille* (Salle de réunion, bureaux, Salles d'enseignement dirigé, Salle d'information, Salle d'accueil de la bibliothèque universitaire) ont fait l'objet d'investigations plus larges, en ce sens que les mesures ont porté non seulement sur les composés précités, mais aussi sur le crotonaldéhyde, le butyraldéhyde, l'isovaléraldéhyde et l'o-tolualdéhyde. Les caractéristiques des différents locaux se trouvent dans le Tableau II. Les résultats obtenus sont rassemblés dans le Tableau III et illustrés par la figure 1 (C et D).

Le formaldéhyde est le composé carbonyle majeur caractérisé, sauf dans les bureaux n° 2, 3 et 4 où l'acétone domine. Il faut signaler toutefois que le bureau n° 2 avait subi une réfection un mois avant le prélèvement d'air, le bureau n°

3 était en cours de réaménagement (encollage de tissu mural) et le bureau n° 4 servait en partie de laboratoire : solvants, réactifs et produits chimiques divers y étaient conservés. Dans les autres pièces, l'acétone occupe la deuxième position. Dans l'ordre quantitatif décroissant se classent ensuite : l'acétaldéhyde, l'acroléine, le benzaldéhyde, le butyraldéhyde et, presque à égalité, le crotonaldéhyde, l'o-tolualdéhyde et l'isovaléraldéhyde. Tous les locaux étudiés renferment du mobilier en bois aggloméré, susceptible de relarguer notamment du formaldéhyde. La présence de moquette ancienne paraît aussi contribuer à ce phénomène ; ainsi, certaines personnes séjournant dans la Salle de réunion ou le Bureau n° 1, qui en étaient pourvus, présentaient des signes d'irritation oculaire et respiratoire. Après le remplacement de la moquette par des dalles autobloquantes sans colle au formol dans la Salle de réunion, les teneurs de l'air en formaldéhyde étaient pratiquement divisées par trois. Et il faut noter que dans la bibliothèque, où un changement de moquette avait eu lieu dans les mêmes conditions, des concentrations du même ordre de grandeur étaient mesurées. La présence de dalle « Gerflex » dans les locaux (Salles d'enseignement dirigé n°s 3, 7 et 11 et Salle d'informatique) semble également intervenir dans la pollution de l'air par le formaldéhyde : les concentrations y sont en règle générale plus élevées que dans les pièces pourvues d'un carrelage en grès (bureaux n°s 2, 3 et 4). L'influence éventuelle des revêtements muraux, de même que celle du chauffage et du délai séparant l'aménagement ou la réfection des pièces et le prélèvement, sont plus difficiles à saisir. La Salle d'enseignement dirigé n° 11 a été testée 16 et 18 mois après sa réfection, la première fois par temps de pluie avec une forte hygrométrie, la seconde par temps ensoleillé et sec : les analyses ont permis de constater que les concentrations en formaldéhyde et en acétaldéhyde étaient respectivement 3 et 2 fois moins importantes par temps sec que par temps humide.

La norme de 0,1 ppm à respecter pour le formaldéhyde dans l'air intérieur aux Etats-Unis, aux Pays-Bas et en Allemagne est dépassée dans tous les locaux, sauf dans les bureaux n°s 3 et 4 et la pièce-accueil de la bibliothèque. Si l'on excepte la première série de mesures dans la salle d'enseignement dirigé n° 11, toutes les valeurs obtenues par le formaldéhyde sont inférieures à celle de la VME française pour les milieux professionnels. Par contre les concentrations trouvées dans la salle de réunion et la salle d'enseignement dirigé n° 11 (premières séries de mesures) ainsi que dans le bureau n° 1 dépassent 0,3 ppm, TLV à respecter aux Etats-Unis pour l'environnement professionnel. Toutes les concentrations des autres composés carbonylés restent inférieures aux limites fixées en France ou aux Etats-Unis pour les ambiances professionnelles.

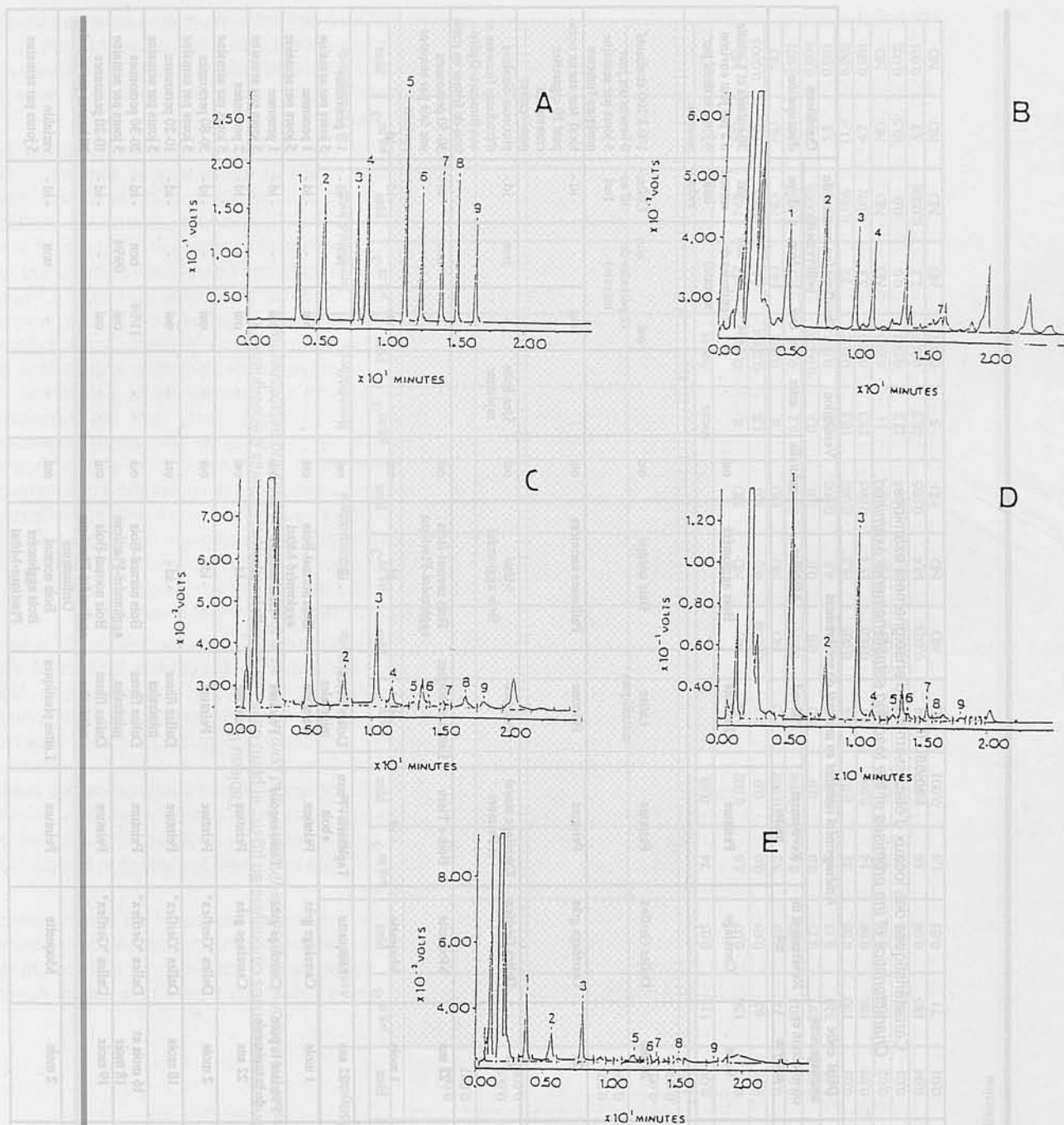


Figure 1.

Chromatogrammes des dinitro-2,4-phénylhydrazones de formaldéhyde (1), acétaldéhyde (2), acétone (3), acroléine (4), crotonaldéhyde (5), butyraldéhyde (6), benzaldéhyde (7), isovaléraldéhyde (8), o-tolualdéhyde (9).

A : Composés témoins ; B : Cuisine de cafétéria (Faculté de Pharmacie de Marseille) ; C et D : Salles d'enseignement dirigé n° 3 et n° 7 (Faculté de Pharmacie de Marseille) ; E : Intérieur du poste de contrôle du métro marseillais.

Chromatograms of dinitro-2,4-phenylhydrazone of formaldehyde (1), acetaldehyde (2), acetone (3), acrylaldehyde (4), crotonaldehyde (5), butyraldehyde (6), benzaldehyde (7), isovaleraldehyde (8), o-tolualdehyde (9).

A : Control compounds ; B : Cafeteria kitchen (Marseille School of Pharmaceutical Sciences) ; C and D : Classrooms 3 and 7 (Marseille School of Pharmaceutical Sciences) ; E : Inside the Marseille subway control station.

Tableau II.
Caractéristiques des locaux d'établissements d'enseignement examinés.
Characteristics of the premises of the teaching establishments examined.

Type de local	Volume m3	Année d'aménagement	Date de réfection	Délai entre aménagement ou réfection et analyse	Aménagement intérieur au moment du prélèvement				Ventilation		Chauffage (au moment du prélèvement)		Conditions d'occupation
					Revêtement du sol	Revêtement mural	Plafond	Mobilier	naturelle	autre	Oui	Non	
Ecole maternelle													
Salle de classe	290	plus de 30 ans	1980	9 ans	Carrelage	Peinture	Peinture	Bois aggloméré	oui	-	oui	non (2 périodes de mesure)	30 enfants et 1 adulte 6 h par jour environ 4 jours et demi par semaine
Faculté de Pharmacie													
Amphithéâtre	2400	1972	-	20 ans	Dalles Gerflex	Peinture	Peinture	Bois normal	oui	-	oui	non (2 périodes de mesure)	100 à 200 étudiants 6 heures par jour 5 jours par semaine quelques fumeurs
Bureau enfumé	35	1972	-	21	Carrelage grès	Peinture	Peinture	Paillasse carrelées	oui	-	oui	-	local test aucun occupant 10 cigarettes consommées passivement
Cuisine de cafétéria	12	1972	-	21	Dalles Gerflex	Carrelage mural et Peinture	Peinture	Métal Bois aggloméré	oui	Une hotte aspirante	-	non	plusieurs dizaines d'étudiants fumeurs et non fumeurs. Opération de friture en route
Salle de réunion	279	1972	-	22 ans	Moquette	Bois + Tissu	Lattes plastiques	Bois normal-Bois aggloméré-Plastique	oui	-	-	non	30-50 personnes une fois par semaine environ
	- id -	- id -	26/12/94 (moquette remplacée)	1 mois	Moquette	- id -	- id -	- id -	oui	-	oui	-	- id -
Bureau n° 1	105	- id -	-	22 ans	Moquette	Tapisserie-Tissu +bois	Dalles fibres minérales	- id -	oui	-	-	non	1-3 personnes 5 jours par semaine
Bureau n° 2	54	- id -	22/10/94	1 mois	Carrelage grès	Peinture	Peinture	Bois normal-Bois aggloméré-Métal	oui	-	oui	-	1 personne 5 jours par semaine
Bureau n° 3	60	- id -	01/95	Pendant la pose de la tapisserie 22 ans	Carrelage grès	Tissu encollé	Peinture	Bois normal Bois aggloméré	oui	-	oui	-	1 personne 3 jours par semaine
Bureau-Laboratoire n° 4	54	- id -	-		Carrelage grès	Peinture	Peinture	- id	oui	-	oui	-	2 personnes 5 jours par semaine
Salle ED n° 3	336	- id -	09/94	2 mois	Dalles "Gerflex"	Peinture	Peinture	- id	oui	-	oui	-	30-80 personnes 5 jours par semaine
Salle ED n° 7	94	- id -	05/93	18 mois	Dalles "Gerflex"	Peinture	Peinture	- id -	oui	-	oui	-	10-20 personnes 5 jours par semaine
Salle ED n° 11	138	- id -	05/93	16 mois et 18 mois	Dalles "Gerflex"	Peinture	Peinture	Bois normal-Bois aggloméré-Plastique	oui	-	11/94 oui	non 09/94	20-30 personnes 5 jours par semaine
Salle informatique	138	- id -	05/93	19 mois	Dalles "Gerflex"	Peinture	Peinture	Bois normal-Bois aggloméré-Plastique Ordinateurs	oui	-	oui	-	10-20 personnes 20 heures par semaine
Bibliothèque-Accueil	540	- id -	08/94 (moquette remplacée)	2 mois	Moquette	Peinture	Peinture	Bois normal Bois aggloméré Plastique-Métal	oui	-	-	non	variable 5 jours par semaine

Tableau III.
Concentrations des composés carbonyles en $\mu\text{g}/\text{m}^3$ et ppm dans l'air de locaux d'établissements d'enseignement.
Concentrations of the carbonyl compounds (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ and ppm) in the air in the premises of teaching establishments.

Type de local	Formaldéhyde		Acétaldéhyde		Acétone		Acroléine		Crotonaldéhyde		Butyraldéhyde		Benzaldéhyde		Isovalaldéhyde		o-Tolualdéhyde	
	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	ppm	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	ppm	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	ppm	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	ppm	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	ppm	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	ppm	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	ppm	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	ppm	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	ppm
Salle de Classe																		
Sans chauffage																		
- matin	33	0,03	10	0,006														
- après-midi	25	0,02	12	0,007														
Avec chauffage																		
- matin	20	0,016	17	0,009														
- après-midi	18	0,015	14	0,008														
Faculté de Pharmacie																		
Amphithéâtre																		
Avec chauffage																		
- matin	4	0,003	5	0,003														
- après-midi	6	0,005	16	0,009														
Sans chauffage																		
- matin	6	0,005	8	0,005														
- après-midi	7	0,006	11	0,006														
Bureau infirmier	1780	1,45	2470	1,37														
Cuisine de cafétéria	173	0,11	169	0,09	112	0,05	74	0,03					traces	traces				
Salle de réunion	484	0,41	118	0,07	156	0,07	5,6	0,002	ND	ND	ND	ND	8	0,002	ND	ND	ND	ND
Bureau n° 1	145	0,12	45	0,03	65	0,03	0,0	0,0	2,3	0,0008	0,0	0,0	1,8	0,0004	6,2	0,002	2,6	0,0005
Bureau n° 2	400	0,33	58	0,03	72	0,03	5,2	0,002	ND	ND	ND	ND	8	0,002	ND	ND	ND	ND
Bureau n° 3	164	0,13	28	0,02	205	0,09	8,4	0,004	3,6	0,001	8,2	0,003	6,2	0,001	0,6	0,0002	6,1	0,001
Bureau-Laboratoire n° 4	60	0,05	46	0,03	297	0,15	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,2	0,00005	3	0,0008	21,4	0,004
Salle ED n° 3	79	0,06	13	0,01	320	0,13	5	0,002	2,7	0,001	4,8	0,002	5,5	0,001	1,1	0,0003	5,8	0,001
Salle ED n° 7	134	0,11	23	0,01	130	0,05	32	0,01	8,6	0,003	16,2	0,006	10,2	0,002	22	0,006	11,4	0,002
Salle ED n° 11	283	0,23	54	0,03	186	0,08	14	0,006	7,1	0,003	13,4	0,005	27,3	0,006	5,3	0,002	4,7	0,001
Salle informatique	622	0,52	29	0,02	106	0,05	4,4	0,002	ND	ND	ND	ND	11	0,003	ND	ND	ND	ND
Bibliothèque-Accueil	202	0,16	14	0,01	98	0,04	10	0,005	6,3	0,002	10,2	0,004	12,3	0,003	0,0	0,0	10,5	0,002
	232	0,19	64	0,04	185	0,08	16	0,007	7,4	0,003	14,4	0,005	28,5	0,007	2,2	0,0006	5,3	0,001
	115	0,09	21	0,01	71	0,03	1,4	0,001	ND	ND	ND	ND	3	0,001	ND	ND	ND	ND

ND : Composé non dosé
0,0 : Composé absent ou en quantité inférieure à la limite de détection

Autres locaux [5, 12, 13]

Divers autres locaux ont fait l'objet d'investigations : leurs caractéristiques sont indiquées dans le Tableau IV et les résultats obtenus dans le Tableau V.

Nous avons porté en premier lieu notre attention sur une pièce spéciale d'un *Laboratoire de Police scientifique*, où des échantillons autopsiques étaient conservés dans une solution formolée en bocaux fermés, en attente d'un examen anatomo-pathologique. Lorsque le système d'aspiration était à l'arrêt, la concentration de l'air en formaldéhyde atteignait 0,4 ppm. Par contre, lorsque l'aspiration était en marche, seules des traces de ce composé étaient mises en évidence et les niveaux à l'intérieur et à l'extérieur de la pièce étaient semblables.

A la suite du décès suspect d'un étudiant dans son appartement où régnait une forte humidité et une grande chaleur provoquées par un robinet d'eau chaude resté ouvert pendant environ 20 heures, ainsi qu'une odeur formolée agressive, nous avons été amenés à prélever sur les murs, en vue d'examen, des *fragments de papiers peints et de plâtre* enduits de colle susceptibles de renfermer du formaldéhyde. Pour reproduire autant que possible des conditions proches de la réalité, à savoir une chaleur humide facilitant le relargage du formaldéhyde, un appareil a été spécialement mis en place (fig. 2). L'air, capté à l'extérieur, était tout d'abord privé du formaldéhyde qu'il pouvait contenir par passage au travers d'une cartouche « Sep-Pak DNPH Silice » (a), puis entraîné dans l'eau d'un barboteur, lui-même placé dans un bain-marie à 50 °C. Ainsi chauffé et humidifié l'air était alors amené dans le fond d'un ballon contenant une aliquote du prélèvement à analyser et se trouvant également dans un bain-marie à 50 °C. L'air, se chargeant du formaldéhyde éventuelle-

ment libéré de l'échantillon, était aspiré au travers d'une seconde cartouche (b) au moyen de la pompe P située en bout de chaîne, de façon à avoir un volume total de 100 litres mesuré à l'aide du compteur C.

Tous les échantillons examinés ont donné lieu au dégagement de formaldéhyde, dont la concentration a été estimée par rapport à la surface totale des murs (en m²), puis rapportée au volume total de l'appartement et exprimée en Çmg par m³ et en ppm. La concentration moyenne (et forcément approximative) ainsi déterminée était de 3,17 ppm, valeur dépassant largement celles des normes françaises et étrangères précitées. Ce résultat confirmait la présence de quantités importantes de formaldéhyde, au moment de la découverte du corps, dans l'appartement, dont les ouvertures (porte, fenêtres, gaines de ventilation) avaient été précédemment calfeutrées par son occupant. L'étudiant avait en réalité succombé à une intoxication au monoxyde de carbone (confirmée à l'autopsie et à l'analyse toxicologique du sang) en relation avec le mauvais fonctionnement d'un petit chauffe-eau à gaz et le manque d'aération, avant même d'avoir pu fermer le robinet d'eau chaude.

Par la suite deux locaux de l'*Hôpital de la Conception à Marseille* ont été étudiés. Il s'agissait d'un bloc opératoire et du couloir adjacent au bloc. Malgré l'emploi d'un désinfectant contenant du formaldéhyde, les concentrations dans l'air des deux pièces de ce composé ainsi que celles de l'acétone et de l'acétaldéhyde étaient faibles, celles des autres composés carbonyles testés étant très faibles, voire inexistantes. Ces résultats témoignaient de l'efficacité des systèmes de ventilation équipant les locaux.

Enfin à l'intérieur du *poste de commande du métro marseillais* des concentrations de formaldéhyde, d'acétone et d'acétaldéhyde légèrement supérieures à celles des locaux hospitaliers étaient

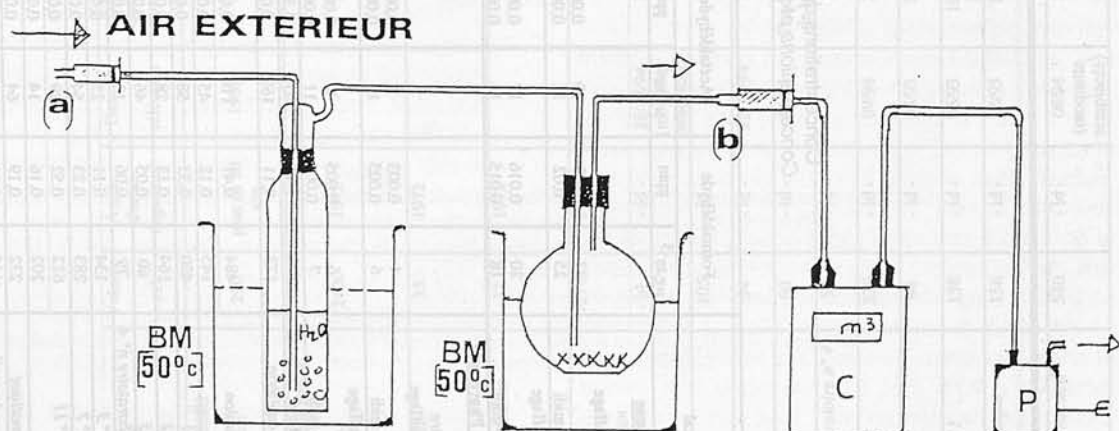


Figure 2.

Schéma de montage de l'appareil utilisé pour tester le relargage de formaldéhyde à partir de revêtements muraux.

Assembly diagram for the apparatus used to test the salting-out of formaldehyde from wall coatings.

Tableau IV
Caractéristiques d'autres locaux examinés
Characteristics of the other premises examined.

Type de local	Volume (m ³)	Année d'aménagement	Date de réfection	Délai entre aménagement ou réfection et analyse	Aménagement intérieur au moment du prélèvement				Ventilation		Chauffage (au moment du prélèvement)		Conditions d'occupation
					Revêtement du sol	Revêtement mural	Plafond	Mobilier	naturelle	autre	Oui	Non	
Labo-Police <i>Pièce à scellés</i>	30	1946	-	47 ans	Carrelage grès	Peinture	Peinture	Etagères bois normal	oui	Aspiration sur commande	-	non	Occupants du laboratoire à proximité
Appartement (2 pièces) d'un étudiant <i>Revêtement muraux</i>	80	1950	1988	5 ans	Carrelage	Tapisserie (y compris plafond d'une pièce)	Peinture (sur plafond de l'autre pièce)	Bois normal-Bois aggloméré-Plastique-Métal-Cuisinière et chauffe-eau gaz	oui (calfeutrage)	-	oui	-	Une personne Porte et fenêtre fermées
Hôpital de la Conception <i>Intérieur bloc opératoire</i> <i>Couloir attenant au bloc</i>	180 124	1983 - id -	- -	12 ans 12 ans	PVC Carrelage granito	Peinture Peinture	Staff et peinture Dalles fibres minérales	Matériel chirurgical inox Bois normal-Métal	- -	climatisation air neuf (10 vol/h) - id - (8 vol/h)	oui oui	- -	7 personnes en moyenne 5 jours par semaine Passage 5 jours par semaine
Poste commande Métro <i>Intérieur</i> <i>Extérieur</i>	350	1977	-	17 ans	Dalles plastiques sur béton	Panneaux métalliques+Peinture	Dalles fibres minérales	Plastique-Métal Ordinateurs	-	climatisation, recyclage 80 %	oui	-	8 personnes 24 heures sur 24

Tableau V
Concentrations des composés carbonylés (en $\mu\text{g.m}^{-3}$ et ppm) dans l'air des autres locaux examinés.
Concentrations of the carbonyl compounds (in $\mu\text{g.m}^{-3}$ and ppm) in the air of the other premises examined.

Type de local	Formaldéhyde		Acétaldéhyde		Acétone		Acroléine		Crotonaldéhyde		Butyraldéhyde		Benzaldéhyde		Isovalaldéhyde		o-Tolualdéhyde	
	$\mu\text{g.m}^{-3}$	ppm	$\mu\text{g.m}^{-3}$	ppm	$\mu\text{g.m}^{-3}$	ppm	$\mu\text{g.m}^{-3}$	ppm	$\mu\text{g.m}^{-3}$	ppm	$\mu\text{g.m}^{-3}$	ppm	$\mu\text{g.m}^{-3}$	ppm	$\mu\text{g.m}^{-3}$	ppm	$\mu\text{g.m}^{-3}$	ppm
Labo. Police																		
Pièce à scellé - sans aspiration - avec aspiration	490	0,40																
traces																		
Appartement d'un étudiant																		
Revetements muraux	3890	3,17																
Hôpital de la Conception																		
Intérieur bloc opératoire	42	0,03	23	0,01	25	0,01	0,0	0,0	1,3	0,0004	4,3	0,002	6,5	0,002	7,2	0,002	3	0,0006
Couloir attenant au bloc	71	0,06	19	0,01	23	0,01	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,8	0,002	6,2	0,002	2,4	0,0005
Poste commande métro																		
Intérieur	67	0,05	35	0,02	59	0,03	0,0	0,0	3,7	0,001	0,0	0,0	0,0	0,0	12,7	0,004	6,1	0,001
Extérieur	53	0,04	18	0,01	20	0,01	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	6,7	0,002	3,3	0,0007

ND : Composé non dosé
0,0 : Composé absent ou en quantité inférieure à la limite de détection

prises en évidence, alors que celles des autres composés carbonylés étaient très basses ou même nulles (fig. 1 (E)). Les quantités trouvées à l'intérieur étaient plus importantes qu'au niveau de la prise d'air extérieure, mais les différences observées ne traduisaient manifestement pas une grande influence de la pollution tabagique. Là encore, il apparaît que la climatisation avec recyclage de l'air à 80 % est suffisante pour combattre l'aérocontamination due à la fumée de tabac et aux autres sources éventuelles.

Conclusion

Grâce à la mise au point d'une méthode de chromatographie en phase liquide à haute performance, des mesures de composés carbonylés ont été réalisées à l'intérieur de divers locaux d'établissements d'enseignement ou autres. Elles ont souligné notamment la nécessité de recourir à des systèmes de ventilation efficaces, même si parfois l'aération naturelle pouvait sembler suffisante, de prendre en compte la pollution qui découle des diverses activités humaines et de s'attacher, au moment de la construction, de la réfection et de l'aménagement intérieur des locaux, à supprimer ou tout au moins à limiter considérablement le relargage de tels composés, par l'emploi de matériaux, de revêtements et de mobiliers appropriés. Ces observations montrent que la présence dans l'air intérieur de concentrations parfois élevées de composés carbonylés doit être considérée avec une très grande attention, notamment en fonction du risque toxique que leur pouvoir irritatif et les potentialités cancérogènes de certains d'entre eux peuvent courir.

Remerciements

Les auteurs remercient l'Association pour la Prévention de la Pollution Atmosphérique (APPA), Direction nationale, 58, rue du Rocher, 75008 Paris, pour son intérêt et l'aide qu'elle leur a apportée dans la réalisation de ces études.

Bibliographie

- [1] FERON V.J., TIL H.P., de VRIGER F., VAN BLADEREN P.J. Toxicology of volatile organic compounds in indoor air and strategy for further research. *Indoor Environment*, 1992, 1, 69-81.
- [2] TEJADA S.B. Evaluation of silica gel cartridges coated in situ with acidified 2,4-dinitrophenyl-hydrazine for sampling aldehydes and ketones in air. *Intern. J. Environ. Anal. Chem.*, 1986, 26, 167-185.
- [3] NAGY T., SZABO M. Investigations of aldehyde in urban air. *Egészségtudomány*, 1992, 36, 136-143.
- [4] MILLIPORE CORPORATION. Care and use manual of Waters Sep-Pak DNPH-silica cartridge, Milford (MA), USA, 1992.
- [5] GRIMALDI F., BOUTHIBA M., GOUZEO F., VIALA A. Determination of volatile aldehydic compounds

in various indoor and outdoor air samples, Leslie G. and Perry R. (eds), *International Conference of Volatile Organic Compounds*, London, Lonsdale Press, 1993, pp. 311-319.

- [6] KUWATA K., UEBORI M., YAMASAKI Y. Determination of aliphatic and aromatic aldehydes in polluted airs as their 2,4-dinitrophenylhydrazones by high-performance liquid chromatography. *J. Chromatogr. Sci.*, 1979, 17, 264-268.
- [7] KUWATA K., UEBORI M., YAMASAKI Y., KUGE Y. Determination of aliphatic aldehydes in air by liquid chromatography. *Anal. Chem.*, 1983, 55, 2013.
- [8] LIPARI F., SWARIN S.J. 2,4-dinitrophenylhydrazine-coated fluorisil sampling cartridges for the determination of formaldehyde in air. *Environ. Sci. Technol.*, 1985, 19, 70-74.
- [9] RIGGINS R.H. Compendium of methods for the determination of toxic organic compounds in ambient air. Report EPA-600/4-84-041, *US Environmental Protection Agency*, Research Triangle Park (NC), 1984.
- [10] GRIMALDI F., GOUZEO F., VIALA A., ARFI C., KALOUSTIAN J., PAULI A.M., PASTOR J. Pollution, de l'air par les aldéhydes à l'intérieur de locaux d'enseignement à Marseille. *Proceedings of the 8th Clean Air Congress*, La Haye, Elsevier Ed. Amsterdam, 1989, 1, 345-350.
- [11] GRIMALDI F., VANDAELE S., MULS E., BASCOU H., ARFI C., HENRY A., GOUZEO F., VIALA A. Etude de la pollution de l'air à l'intérieur de deux locaux d'enseignement à Marseille. *Pollution Atmosphérique*, 1992, 34, 43-53.
- [12] GRIMALDI F., BACLE D., BOUTHIBA M., VIALA A. Les polluants carbonylés de l'air à l'intérieur des locaux. *XXI^e Congrès International de la Société de Pharmacie de la Méditerranée latine*, Messine-Lipari, Octobre 1994 (à paraître dans « *Acta Technologiae et Legis Medicamenti* »).
- [13] GRIMALDI F., BOTTI P., VIALA A. Etude de la pollution de l'air par les composés carbonylés à l'intérieur de divers locaux. *Proceedings of the International Conference of SFT-IAI-APPA on « Risk Assessment in Toxicology and Air Pollution »*, Dijon, 31 mars-1^{er} avril 1995, pp. 115-121.
- [14] SCHERER G., CONZE C. v. MEYERINCK L., SORSA M., ADLKOFER F. Importance of exposure to gaseous and particulate phase component of tobacco smoke in active and passive smokers. *Int. Arch. Occup. Environ. Health*, 1990, 62, 459-466.

Mots clés

Pollution de l'air intérieur ; Composés organiques volatils ; Aldéhydes ; Acétone ; Chromatographie liquide à haute performance.

Key words

Indoor air pollution ; Volatile organic compounds ; Aldehydes ; Acetone ; High-performance liquid chromatography.