



## THESE

présentée à  
l'Université de Strasbourg

pour obtenir le grade de  
Docteur de l'Université de Strasbourg

Discipline: chimie-physique

présentée  
par Stéphane Werner

**Optimisation des cadastres d'émissions :**  
estimation des incertitudes,  
détermination des facteurs d'émissions du « black carbon »  
issus du trafic routier et estimation de l'influence  
de l'incertitude des cadastres d'émissions sur la modélisation.

Application aux cadastres ESCOMPTE et Nord-Pas-de-Calais.

Soutenue publiquement le 24 juin 2009 devant la commission d'examen:

PONCHE J-L., M.C. HDR., Université de Strasbourg, Directeur de Thèse  
CACHIER H., M.C. HDR., Paris VII (Diderot), Directeur de Thèse  
POILLERAT G., Pr., Université de Strasbourg, Rapporteur Interne  
GALLOO J-Cl. Pr., Ecole des Mines, Douai, Rapporteur Externe  
WORTHAM H., Pr., Université de Provence, Rapporteur Externe



à Anne-Laure,  
à mes parents.



Je tiens tout d'abord à remercier Mr Philippe Mirabel pour m'avoir accueilli au sein du Laboratoire de Physico-Chimie de l'Atmosphère de Strasbourg. Je tiens également à remercier mon directeur de thèse, Jean-Luc Ponche, de m'avoir permis de réaliser une thèse, ainsi que ma codirectrice de thèse, Hélène Cachier, pour m'avoir offert l'opportunité de quitter mon bureau pour des campagnes de terrain. Je n'oublie pas Valérie Nollet qui m'a permis de travailler sur le cadastre Nord-Pas-de-Calais.

J'adresse également mes sincères remerciements aux membres du jury : Jean-Claude Galloo, Henry Wortham, Gérard Poillerat, qui ont pris le temps d'examiner mes travaux et m'ont formulé des conseils pour améliorer la qualité du mémoire. Merci d'avoir présenté votre point de vue sur le travail effectué lors de ma soutenance de thèse et d'avoir alimenté le débat vers de potentielles perspectives.

Je tiens également à remercier tous les membres de l'équipe de Gif-sur-Yvette qui m'ont aidé dans les manips sur le terrain et qui ont effectué l'analyse des échantillons. Je pense notamment à Roland et Tiziana avec qui les campagnes de terrains ont été riches en résultats, mais aussi en bons moments.

Un grand merci, à tous les membres du labo, permanents, ou étudiants, avec qui j'ai construit de nombreux souvenirs, notamment Mehrez et Manu qui m'ont accueilli dans leur bureau mais également tous mes voisins de bureau: Caro, Valérie, Audrey, Eneida, Angela, Saliou. Je pense également à Anne et Stéphane M. avec qui j'ai vécu beaucoup de temps forts au labo ou ailleurs, cette amitié construite depuis la licence n'en restera pas là!

Je remercie également ma famille et ma belle famille qui m'ont donné des occasions de me changer les idées. Enfin, je remercie mes parents qui m'ont soutenu tout le long de mon cursus et Anne-Laure qui a su me pousser et m'accompagner tous les jours durant cette période de ma vie. et encore aujourd'hui!

---

## Table des matières

<b>Chapitre 1 : Pollution atmosphérique et inventaires d'émissions.....</b>	<b>20</b>
1 L'atmosphère terrestre et la pollution atmosphérique.....	21
1.1 Structure et composition de l'atmosphère.....	21
1.1.1 Composition.....	21
1.1.2 Température et pression.....	22
1.2 La pollution atmosphérique.....	25
1.2.1 Les pluies acides (Manahan, 2000).....	27
1.2.2 Pollutions photochimiques ou SMOG (Manahan, 2000).....	28
1.2.3 Destruction de la couche d'ozone (Manahan, 2000).....	31
1.2.4 L'effet de serre.....	32
2 La réglementation vis-à-vis de la pollution atmosphérique.....	35
2.1 Les principales conventions internationales.....	35
2.1.1 La convention sur la pollution transfrontalière à longue distance (CLRTAP) ..	35
2.1.2 La convention sur la protection de la couche d'ozone.....	35
2.1.3 La convention sur le changement climatique (UNFCCC) ..	36
2.2 La réglementation française.....	37
3 Les inventaires d'émissions.....	42
3.1 Définition et rôle.....	42
3.2 Les paramètres d'un cadastre d'émissions.....	43
3.3 Méthodologie ..	45
3.4 Le classement des sources d'émissions.....	47
3.5 Exemples d'inventaires et cadastres d'émissions.....	49
3.5.1 Inventaires aux échelles nationales ou internationales.....	49
3.5.1.a Le projet MAP (control of Major Air Pollutants project) ..	50
3.5.1.b L'inventaire français DGXI.....	50
3.5.1.c Le programme européen CORINE.....	50
3.5.1.d Le programme EMEP.....	52
3.5.1.e IPCC/OECD/IEA Programme on National Greenhouse Gas Inventories..	52
3.5.2 Inventaires aux échelles régionales ou inter-régionales.....	53
3.5.2.a L'inventaire d'émissions du programme REKLIP.....	53
3.5.2.b L'inventaire d'émissions du programme ESCOMPTE.....	54

---

4 Conclusion.....	57
5 Bibliographie du chapitre 1.....	58
<b>Chapitre 2 : Incertitudes et Inventaires d'émissions.....</b>	<b>63</b>
1 Incertitudes dans les inventaires d'émissions.....	64
1.1 Définition de l'incertitude.....	64
1.2 Les sources d'incertitudes.....	66
1.2.1 L'inexactitude structurelle.....	66
1.2.2 L'inexactitude sur les valeurs d'entrée.....	67
1.3 Détermination de l'incertitude.....	68
1.3.1 Evaluation interne.....	69
1.3.1.a Incertitudes sur les données d'entrée.....	69
1.3.1.b Combinaison des incertitudes sur les données d'entrée.....	71
1.3.1.c L'analyse de sensibilité.....	72
1.3.2 Évaluation externe.....	73
2 Détermination des incertitudes dans les inventaires d'émissions à l'échelle régionale.....	75
2.1 La propagation des erreurs.....	75
2.1.1 Équation de propagation des erreurs.....	76
2.1.1.a Principe.....	76
2.2 Méthode Monte-Carlo.....	77
2.2.1 Principe.....	77
2.2.2 Analyse de sensibilité.....	78
3 Application au cadastre ESCOMPTE.....	79
3.1 Les cadastres d'émissions ESCOMPTE.....	79
3.2 Détermination de l'incertitude.....	80
3.2.1 Scénario 1 : à partir des valeurs par défaut.....	81
3.2.2 Analyse de sensibilité.....	88
3.2.3 Scénario 2 : à partir de valeurs optimistes.....	91
3.2.4 Scénario 3 : recherche de meilleures estimations.....	94
3.2.4.a Le secteur du transport (SNAP 07 et 0804).....	94
3.2.4.b Les Grandes Sources Ponctuelles (GSP) et les Sources Fixes.....	95
3.2.5 Comparaison des trois scénarios.....	101
4 Détermination des incertitudes dans les inventaires d'émissions à l'échelle régionale : application au cadastre Nord-Pas-de-Calais (NPDC).....	106

---

---

4.1 Description du cadastre NPDC.....	106
4.2 Détermination de l'incertitude.....	106
4.2.1 Méthode et incertitudes utilisées.....	107
4.2.1.a Affectation des incertitudes aux données d'entrée du cadastre.....	107
4.2.1.b Propagation de l'incertitude.....	107
4.2.2 Résultats.....	108
5 Conclusion.....	114
6 Bibliographie du chapitre 2.....	115
<b>Chapitre 3 : Sensibilité des modèles de qualité de l'air aux incertitudes sur les cadastres : application au cadastre Nord-Pas-de-Calais et au modèle CHIMERE.....</b>	<b>118</b>
1.1 Modélisation de la qualité de l'air et incertitude.....	119
1.1.1 Modèle de la qualité de l'air.....	119
1.1.1.a Description générale.....	120
1.1.1.b Les termes de transport (advection et turbulence).....	121
1.1.1.c Le terme de réactions.....	121
1.1.1.d Les émissions.....	123
1.1.1.e Les dépôts (secs et humides).....	124
1.1.2 Incertitudes en modélisation de la qualité de l'air.....	124
1.1.2.a Incertitudes sur les données d'entrée.....	125
1.1.2.b Incertitudes issues de la formulation du modèle.....	125
1.2 Application au cadastre Nord-Pas-de-Calais.....	126
1.2.1 Contexte de l'étude.....	126
1.2.2 Description et configuration de la simulation étudiée.....	126
1.2.3 La configuration du modèle.....	127
1.2.4 Méthodologie.....	130
1.2.4.a Incertitudes sur les données d'entrée utilisées. ....	130
1.2.4.b Scénario « Min-Max ».....	132
1.2.4.c Scénario « Monte-Carlo ».....	133
1.2.4.d Préparation des données et mise en place des simulations.....	134
1.2.5 Résultats.....	139
1.2.5.a Scénario « Min-Max ».....	140
1.2.5.b Méthode Monte-Carlo.....	152
1.2.5.c Résultats obtenus avec la méthode Monte-Carlo.....	155
Le monoxyde d'azote (NO).....	155

---



---

Le dioxyde d'azote (NO <sub>2</sub> ).....	157
L'ozone (O <sub>3</sub> ).....	158
Le dioxyde de soufre (SO <sub>2</sub> ).....	159
Le méthane (CH <sub>4</sub> ).....	160
Le monoxyde de carbone (CO).....	161
2 Conclusion.....	162
3 Bibliographie du chapitre 3.....	164
<b>Chapitre 4 : Aérosols issus du trafic automobile : facteurs d'émissions et compositions chimiques.....</b>	<b>165</b>
1 Introduction.....	166
2 Méthode et mesures effectuées.....	167
2.1 Méthodologie.....	167
2.1.1 Description des sites et des mesures.....	168
2.1.2 Concentration massique en « black carbon ».....	169
2.1.3 Détermination du nombre de particules.....	169
2.1.4 Mesure de la concentration en dioxyde et monoxyde de carbone.....	169
2.1.5 Filtres.....	170
2.1.6 Sensibilité des mesures.....	170
3 Résultats.....	171
3.1 Traitements des données.....	171
3.2 Relation entre le nombre de particules et la concentration en BC.....	175
3.3 Rapport BC/OC – comparaison des mesures embarquées aux mesures des stations fixes.....	177
3.4 Bilan de masse chimique.....	179
3.5 Détermination des facteurs d'émissions.....	183
3.6 Comparaison des résultats avec les facteurs d'émissions relevés dans la littérature.....	189
3.7 Application de nos résultats aux calculs d'émissions : cartographie des émissions de BC annuelles dues aux transports routiers.....	191
4 Conclusion.....	192
5 Bibliographie du chapitre 4.....	194

---

## Index des tableaux

Tableau 1.1: Composition de l'atmosphère sèche (tableau adapté de Manahan, 2000).....	22
Tableau 1.2: Seuils d'alerte, de recommandation et d'information, valeurs limites et de qualité fixées par la loi pour différents polluants atmosphériques (Décret n°98-360, 2003).....	40
Tableau 1.3: Les cadastres régionaux réalisés au laboratoire entre 1990 et 2000 (Ponche, 2008) .....	56
Tableau 2.1: Heuristique d'aide au choix d'une fonction de distribution.....	72
Tableau 2.2: Émissions annuelles issues de l'inventaire ESCOMPTE pour les composés chimiques d'intérêt majeur.....	80
Tableau 2.3: Classes d'incertitude par catégorie SNAP.....	82
Tableau 2.4: Incertitudes par défaut associées à chaque classe.....	82
Tableau 2.5: Incertitudes sur les émissions par la méthode des équations de propagation des erreurs.....	83
Tableau 2.6: Incertitudes sur les émissions pour les 3 variantes de la méthode Monte-Carlo..	86
Tableau 2.7: Caractéristiques des différentes FDP des composés étudiés.....	87
Tableau 2.8: Incertitudes associées à chaque classe.....	92
Tableau 2.9: Incertitudes calculées sur les émissions totales.....	92
Tableau 2.10: Incertitudes associées à chaque composé pour le secteur du transport routier (SNAP 07).....	94
Tableau 2.11: Incertitudes associées à chaque composé pour le secteur du transport maritime (SNAP 0804).....	95
Tableau 2.12: Sources et incertitudes des facteurs d'émissions utilisés pour les émissions de SO <sub>2</sub> .....	96
Tableau 2.13: Sources et incertitudes des facteurs d'émissions utilisés pour les émissions des NO <sub>x</sub> .....	96
Tableau 2.14: Sources et incertitudes des facteurs d'émissions utilisés pour les émissions de CO <sub>2</sub> .....	96
Tableau 2.15: Sources et incertitudes des facteurs d'émissions utilisés pour les émissions de CO.....	97
Tableau 2.16: Sources et incertitudes des facteurs d'émissions utilisés pour les émissions de CH <sub>4</sub> .....	97
Tableau 2.17: Sources et incertitudes des facteurs d'émissions utilisés pour les émissions de COVNM.....	98
Tableau 2.18: Sources et incertitudes associées aux activités.....	98
Tableau 2.19: Incertitudes sur les émissions des GSP. ....	99

---

Tableau 2.20: Incertitudes sur les émissions des Sources Fixes.....	99
Tableau 2.21: Incertitudes sur les émissions calculées.....	101
Tableau 2.22: Incertitudes calculées pour chaque composé en fonction du scénario et de la méthode utilisée.....	102
Tableau 2.23: Incertitudes par défaut sur les activités associées à chaque classe. ....	107
Tableau 2.24: Valeurs des émissions et incertitude associée pour chaque composé étudié pour les sources fixes.....	108
Tableau 3.1: Caractéristiques du domaine NPDC1.....	127
Tableau 3.2: Récapitulatif des incertitudes fixées pour les données d'entrée du modèle.....	131
Tableau 3.3: Écarts des scénarios minimum et maximum par rapport au scénario de référence pour la maille Marcq-CTM.....	151
Tableau 3.4: Écarts des scénarios minimum et maximum par rapport au scénario de référence pour la maille Baisieux-Ecole.....	151
Tableau 3.5: Valeurs des concentrations et incertitudes associées aux concentrations de monoxyde d'azote pour les différents scénarios.....	156
Tableau 3.6: Valeurs des concentrations et incertitudes associées aux concentrations de dioxyde d'azote pour les différents scénarios.....	157
Tableau 3.7: Valeurs des concentrations et incertitudes associées aux concentrations d'ozone pour les différents scénarios.....	158
Tableau 3.8: Valeurs des concentrations et incertitudes associées aux concentrations de dioxyde de soufre pour les différents scénarios.....	159
Tableau 3.9: Valeurs des concentrations et incertitudes associées aux concentrations de méthane pour les différents scénarios.....	160
Tableau 3.10: Valeurs des concentrations et incertitudes associées aux concentrations de monoxyde de carbone pour les différents scénarios.....	161
Tableau 4.1 Sensibilités des appareils de mesure.....	170
Tableau 4.2: Valeurs minimales, maximales et moyennes pour les concentrations de BC et [COx] mesurées à Paris.....	173
Tableau 4.3: Valeurs minimales, maximales et moyennes pour les concentrations de BC et de [COx] mesurées à Marseille.....	174
Tableau 4.4: Variation du rapport (nombre de particules) / (concentration en BC) par rapport aux milieux clos.....	176
Tableau 4.5: Mesures de BC et de OC sur filtres – Marseille & Paris.....	178
Tableau 4.6: : Paramètres des régressions obtenus suite à la campagne de mesures faite à Paris sur les différents types de parcours.....	185
Tableau 4.7: Paramètres des régressions obtenus suite à la campagne de mesures faite à Marseille pour les différents type de parcours.....	186
Tableau 4.8: Facteurs d'émissions du black carbon.....	188

---

---

Tableau 4.9: Facteurs d'émissions du BC - Comparaison à d'autres études.....190

---

## Index des Figures

Figure 1.1: Température de l'atmosphère en fonction de l'altitude (Ahlheim, 1989).....	24
Figure 1.2: Description schématique des phénomènes chimiques et de transport des polluants dans l'atmosphère (CCSP, 2003).....	25
Figure 1.3: Échelles temporelles et spatiales de différents composés (NASA).....	26
Figure 1.4: Isoplèthes types de concentration d'ozone (Académie des Sciences, 1993).....	30
Figure 1.5: Description schématique de l'effet de serre (UNEP/GRID-Arendal).....	32
Figure 1.6: Concentrations des gaz à effet de serre de l'année 0 à 2005 (Forster, 2007).....	33
Figure 1.7: Différence du forçage radiatif entre 1750 et 2005 (Forster, 2007).....	34
Figure 1.8: Résumé schématique de la méthodologie utilisée pour construire un inventaire d'émissions (d'après Ponche, 2002).....	44
Figure 1.9: Exemple de méthodologie simplifiée de calcul des émissions pour le secteur du trafic routier (d'après Ponche et al., 2000a).....	46
Figure 1.10: Exemple d'utilisation conjointe des codes SNAP et NAPFUE (d'après Ponche, 2005a).....	49
Figure 2.1: Méthode Monte-Carlo.....	78
Figure 2.2: Carte de la zone ESCOMPTE.....	79
Figure 2.3: Fonctions de distribution des différents composés obtenues à partir de la méthode Monte-Carlo.....	84
Figure 2.4: Représentation sous forme de boîtes à moustaches des différentes distributions pour chaque composé du scénario 1.....	85
Figure 2.5: Analyse de sensibilité pour le méthane.....	89
Figure 2.6: Analyse de sensibilité pour les oxydes d'azote.....	89
Figure 2.7: Analyse de sensibilité pour le monoxyde de carbone.....	89
Figure 2.8: Analyse de sensibilité pour le dioxyde de carbone.....	90
Figure 2.9: Analyse de sensibilité pour le dioxyde de soufre.....	90
Figure 2.10: Analyse de sensibilité pour les composés organiques volatils non méthaniques.....	90
Figure 2.11: Fonctions de distribution et boîtes à moustaches des différentes distributions pour chaque composé du scénario 2.....	93
Figure 2.12: Fonctions de distribution et boîtes à moustaches des différentes distributions pour chaque composé du scénario 3.....	100
Figure 2.13: Incertitudes sur les émissions de CH <sub>4</sub> (MC : Méthode Monte-Carlo, Eq. : Méthode de propagation des erreurs).....	103
Figure 2.14: Incertitudes sur les émissions de NO <sub>x</sub> .....	103

---

Figure 2.15: Incertitudes sur les émissions de CO.....	103
Figure 2.16: Incertitudes sur les émissions de CO <sub>2</sub> .....	104
Figure 2.17: Incertitudes sur les émissions de SO <sub>2</sub> .....	104
Figure 2.18: Incertitudes sur les émissions de des COVNM.....	104
Figure 2.19: Répartition par activité de l'incertitude sur les émissions de monoxyde de carbone (CO).....	109
Figure 2.20: Répartition par activité de l'incertitude sur les émissions de dioxyde de carbone (CO <sub>2</sub> ).....	110
Figure 2.21: Répartition par activité de l'incertitude sur les émissions de dioxyde de soufre (SO <sub>2</sub> ).....	110
Figure 2.22: Répartition par activité de l'incertitude sur les émissions des oxydes d'azotes (NO <sub>x</sub> ).....	111
Figure 2.23: Répartition par activité de l'incertitude sur les émissions des composés organiques volatiles non méthaniques (COVNM).....	111
Figure 2.24: Répartition par activité de l'incertitude sur les émissions de méthane (CH <sub>4</sub> )...	112
Figure 2.25: Répartition par activité de l'incertitude sur les émissions d'ammoniac (NH <sub>3</sub> )...	112
Figure 2.26: Répartition par activité de l'incertitude sur les émissions de protoxyde d'azote (N <sub>2</sub> O).....	113
Figure 3.1: Place de l'inventaire d'émissions et du mécanisme chimique dans les modèles de la qualité de l'air (Ponche, 2005).....	123
Figure 3.2: Principe du modèle CHIMERE.....	128
Figure 3.3: Préparation des données anthropiques d'émissions pour le modèle.....	130
Figure 3.4: Structure des fichiers EMISSIONS.....	132
Figure 3.5: Principe du scénario Min - Max.....	133
Figure 3.6: Principe du scénario Monte-Carlo.....	134
Figure 3.7: Chaîne de traitements des données pour la prise en compte de l'incertitude.....	135
Figure 3.8: Opérations effectuées par le programme pour la préparation des données nécessaires aux scénarios Minimum et Maximum.....	137
Figure 3.9: Opérations effectuées par le programme pour la préparation des données nécessaires au scénario Monte-Carlo.....	138
Figure 3.10: Carte situant les 2 sites étudiés.....	139
Figure 3.11: Variations de la concentration de méthane sur le site de Baisieux-Ecole pour les différents scénarios et leur écart par rapport au scénario de référence.....	140
Figure 3.12: Variations de la concentration de méthane sur le site de Marcq-CTM pour les différents scénarios et leur écart par rapport au scénario de référence.....	141
Figure 3.13: Variations de la concentration de monoxyde de carbone sur le site de Baisieux-Ecole pour les différents scénarios et leur écart par rapport au scénario de	

---

---

référence.....	142
Figure 3.14: Variations de la concentration de monoxyde de carbone sur le site de Marcq-CTM pour les différents scénarios et leur écart par rapport au scénario de référence.....	143
Figure 3.15: Variations de la concentration de dioxyde de soufre sur le site de Baisieux-Ecole pour les différents scénarios et leur écart par rapport au scénario de référence..	144
Figure 3.16: Variations de la concentration de dioxyde de soufre sur le site de Marcq-CTM pour les différents scénarios et leur écart par rapport au scénario de référence..	144
Figure 3.17: Variations de la concentration de dioxyde d'azote sur le site de Baisieux-Ecole pour les différents scénarios et leur écart par rapport au scénario de référence..	145
Figure 3.18: Variations de la concentration de dioxyde d'azote sur le site de Marcq-CTM pour les différents scénarios et leur écart par rapport au scénario de référence.....	146
Figure 3.19: Variations de la concentration de monoxyde d'azote sur le site de Baisieux-Ecole pour les différents scénarios et leur écart par rapport au scénario de référence..	147
Figure 3.20: Variations de la concentration de monoxyde d'azote sur le site de Marcq-CTM pour les différents scénarios et leur écart par rapport au scénario de référence..	147
Figure 3.21: Variations de la concentration d'ozone sur le site de Baisieux-Ecole pour les différents scénarios et leur écart par rapport au scénario de référence.....	148
Figure 3.22: Variations de la concentration d'ozone sur le site de Marcq-CTM pour les différents scénarios et leur écart par rapport au scénario de référence.....	149
Figure 3.23: Variations des concentrations de dioxyde d'azote et d'ozone dans la maille de Baisieux-Ecole.....	150
Figure 3.24: Variations des concentrations de dioxyde d'azote et d'ozone dans la maille de Marcq CTM.....	150
Figure 4.1: Variations des concentrations en BC, en CO <sub>2</sub> +CO et nombre de particules, mardi 28 juin 2005, Marseille.....	171
Figure 4.2: Reconstruction de la masse pour la fraction des particules fines collectées à Marseille.....	181
Figure 4.3: Reconstruction de la masse pour la fraction des grosses particules collectées à Marseille.....	182
Figure 4.4: Droite de régression entre les concentrations de [CO <sub>x</sub> ] et de BC, pour le site « parking souterrain » du Vieux Port de Marseille, le 26/06/05.....	184
Figure 4.5: Trajet du gîte d'Allauch (10 km au nord – est du centre ville de Marseille) à l'observatoire en passant par La Timone. Mesures de BC et CO <sub>2</sub> +CO, Marseille, lundi le 27/06/05.....	187
Figure 4.6: Émissions annuelles spatialisées au km <sup>2</sup> de « Black Carbon » dues au secteur des transports routiers calculées pour l'année 1999.....	192

---

# **Introduction**



Les émissions anthropiques ont commencé très tôt, avec la combustion du bois par nos ancêtres il y a environ un demi-million d'années. Leurs influences ont augmenté avec la population humaine et les progrès technologiques de notre civilisation. Mais un seuil a été franchi lors de la révolution industrielle qui a marqué le début d'une augmentation importante des habitants de notre planète, de leur consommation en énergie et en produits manufacturés. Ce changement dans l'ordre de grandeur des émissions a rendu visible les influences des émissions anthropiques. Au début du XX<sup>ème</sup> siècle, sont apparus les premiers phénomènes de pollutions régionales dus aux émissions humaines. En 1930, dans la vallée de la Meuse en Belgique, a été observé le premier phénomène de SMOG. Ce phénomène est causé par la présence durant plusieurs jours à la fois d'une situation anticyclonique et de brouillards permettant l'accumulation des émissions industrielles de gaz. Le dioxyde de soufre présent dans l'atmosphère est ainsi transformé en acide sulfurique très irritant, attaquant les voies respiratoires. Durant cet épisode, ceci avait provoqué la mort directe de plus de 60 personnes. Des épisodes similaires de pollution aigüe ont pu être observés par la suite dans d'autres grandes villes comme Londres, Los Angeles, Athènes ou Marseille. Il est apparu rapidement que la fréquence de ces épisodes s'est accrue depuis les années 80.

En France, la prise en compte de la pollution atmosphérique par la réglementation date de décembre 1996 avec la Loi sur l'Air et l'Utilisation Rationnelle de l'Energie (LAURE). Celle-ci a rendu obligatoire la surveillance de la qualité de l'air au niveau local, sur l'ensemble du territoire depuis l'an 2000, ainsi que l'information du public en cas de dépassement de seuils.

Dans le cadre de la stratégie de contrôle de la pollution atmosphérique, les cadastres d'émissions jouent un rôle particulier et fondamental. Ils interviennent à la fois directement pour le recensement des émissions et comme données d'entrée pour la modélisation de la pollution atmosphérique. Cette modélisation est depuis longtemps indispensable à la gestion de la qualité de l'air, d'une part, pour la compréhension des mécanismes physico-chimiques qui conduisent aux phénomènes de pollution atmosphérique ; que ce soient les épisodes de pollution aigüe ou la pollution de fond ; et d'autre part, pour permettre une surveillance de l'ensemble du territoire à contrôler, en particulier depuis l'avènement de la LAURE, puisqu'il est impossible d'y arriver grâce aux réseaux de mesures seuls.

La qualité des cadastres est à ce titre déterminante car ils permettent d'initier et

d'alimenter les processus chimiques et physico-chimiques des mécanismes pris en compte dans les modèles. Compte tenu du développement des moyens de calculs actuels, la qualité des résultats des modélisations et leur adéquation avec la réalité de la pollution atmosphérique est directement liée à celle des données d'entrée, en particulier, des données d'émissions spatialisées (cadastres) pour les parties chimiques et physico-chimiques des modèles.

Il apparaît donc indispensable de pouvoir déterminer qualitativement et surtout quantitativement la précision des émissions calculées, modélisées voire estimées dans les cadastres afin d'en déduire les marges d'erreur sur les concentrations de polluants en sortie de modèle. Ces marges d'erreur permettent ainsi d'expliquer les différences entre les concentrations mesurées lorsqu'elles existent et les concentrations modélisées.

Ce travail a pour but l'optimisation de cadastres d'émissions, d'une part, par l'évaluation des incertitudes associées aux émissions et d'autre part, par la détermination de facteurs d'émissions particuliers, ceux des particules carbonées, afin de mieux cerner ce type d'émissions pour enrichir un cadastre pré-existant. Les évaluations des émissions de ces particules en seront améliorées substantiellement et contribueront ainsi à augmenter la qualité de cette partie des cadastres.

Le premier chapitre décrit brièvement l'atmosphère terrestre et recense les principaux phénomènes de pollution qui peuvent y prendre forme. Puis sont présentés un certain nombre de traités internationaux et la législation française relatifs à la pollution de l'air. Enfin, ce premier chapitre définit les inventaires d'émissions, leurs rôles et leur mode de construction. Le deuxième chapitre traite de l'incertitude dans les inventaires d'émissions. Il définit tout d'abord le terme d'incertitude dans les inventaires d'émissions et comment l'évaluer pour les différents paramètres d'entrée utilisés pour créer un inventaire. Ensuite, sont décrites deux méthodes pour agréger ces incertitudes afin de définir une incertitude globale pour chaque composé d'intérêt de l'inventaire.

Le troisième chapitre étudie les incertitudes d'un modèle photochimique de qualité de l'air et tout particulièrement, celles liées aux inventaires d'émissions. Deux approches sont présentées et appliquées pour identifier la sensibilité d'un modèle photochimique aux incertitudes sur l'inventaire d'émissions utilisé comme entrée pour celui-ci.

Le dernier chapitre a pour objectif la détermination du facteur d'émission (FE) pour le

Black Carbon ou carbone suie (BC) afin de compléter l'inventaire ESCOMPTE par l'ajout d'un composé supplémentaire en spécifiant la catégorie « particules » plus finement. Cette évaluation du facteur d'émission pour le BC a été effectuée lors de deux campagnes de mesures sur le terrain. Des résultats complémentaires ont été obtenus en environnements spécifiques et ont permis d'affiner l'estimation des FE du BC dans le cas de profils routiers particuliers (circulation urbaine, autoroutière, sous tunnel...).

## **Chapitre 1 : Pollution atmosphérique et inventaires d'émissions**

Ce premier chapitre va permettre de décrire brièvement l'atmosphère terrestre, lieu où se produisent les différents phénomènes de pollution atmosphérique puis de passer en revue chacun d'entre eux. Ensuite, les principales réponses des gouvernements sont abordées ainsi que les réglementations qu'ils mettent en place à l'échelle nationale et internationale pour lutter contre les émissions de substances polluantes. Enfin, la notion d'inventaire d'émissions est définie, de même que son rôle dans l'étude de la pollution atmosphérique.

## **1 L'atmosphère terrestre et la pollution atmosphérique**

### **1.1 Structure et composition de l'atmosphère**

L'atmosphère terrestre est la couche gazeuse entourant la terre. Elle a un rôle protecteur très important, permettant la vie sur la planète. Elle protège la terre de certains rayonnements cosmiques et solaires. La plupart de ces rayonnements électromagnétiques sont filtrés par l'atmosphère. Seuls ceux compris entre 300 et 2500 nm (domaines de l'ultra-violet proche, du visible, de l'infra-rouge proche) et ceux compris entre 0,01 m et 40 m (ondes radios) traversent l'atmosphère en quantité significative. L'atmosphère protège ainsi les organismes vivants en empêchant les radiations, en particulier inférieures à 300 nm, de les atteindre. De plus, en absorbant une partie de l'énergie solaire, elle stabilise la température de la Terre et évite une trop grande amplitude thermique.

L'atmosphère est une source de dioxyde de carbone nécessaire à la photosynthèse des plantes, d'oxygène indispensable pour la respiration et d'azote, élément essentiel aux molécules de la vie. De plus, l'atmosphère a un rôle important dans le cycle de l'eau en permettant son transport des océans vers les terres par un enchaînement de cycles d'évaporation au-dessus de grandes étendues d'eau et de condensation au-dessus des terres. De plus, du fait de la rotation de la terre, l'atmosphère constitue un système dynamique complexe où d'importants transferts d'énergie se déroulent, alimentés également par les radiations solaires et les transferts d'énergie inhérents au cycle de l'eau.

#### **1.1.1 Composition**

L'atmosphère sèche est principalement composée d'azote 78,08 % (en volume), d'oxygène 20,95 %, d'argon 0,93 % et de dioxyde de carbone 0,036 %. En plus de l'argon, 4 autres gaz rares se retrouvent aussi dans l'atmosphère :

- le néon ( $1,818 \times 10^{-3}$  %),
- l'hélium ( $5,24 \times 10^{-4}$  %),
- le krypton ( $1,818 \times 10^{-4}$  %)

- le xénon ( $8,7 \times 10^{-6}\%$ ).

Enfin, d'autres composés sont présents à l'état de traces (*Manahan, 2000*), (cf. tableau 1.1). L'atmosphère contient en moyenne 1 à 3 % de vapeur d'eau.

<i>Composé</i>	<i>Pourcentage en volume (en absence de pollution)</i>	<i>Sources principales</i>
CH <sub>4</sub>	$1,6 \times 10^{-4}$	biogéniques
CO	$\sim 1,2 \times 10^{-5}$	anthropiques, photochimiques
N <sub>2</sub> O	$3 \times 10^{-5}$	biogéniques
NO <sub>x</sub>	$10^{-10} - 10^{-6}$	photochimiques, éclairs, anthropiques
HNO <sub>3</sub>	$10^{-9} - 10^{-7}$	photochimiques
NH <sub>3</sub>	$10^{-8} - 10^{-7}$	biogéniques
H <sub>2</sub>	$5 \times 10^{-5}$	biogéniques, photochimiques
H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	$10^{-8} - 10^{-6}$	photochimiques
HO·	$10^{-13} - 10^{-10}$	photochimiques
HO <sub>2</sub> ·	$10^{-11} - 10^{-9}$	photochimiques
H <sub>2</sub> CO	$10^{-8} - 10^{-7}$	photochimiques
CS <sub>2</sub>	$10^{-9} - 10^{-8}$	anthropiques, biogéniques
OCS	$10^{-8}$	anthropiques, biogéniques, photochimiques
SO <sub>2</sub>	$\sim 2 \times 10^{-8}$	anthropiques, photochimiques, volcaniques
I <sub>2</sub>	0 - trace	-
CCl <sub>2</sub> F <sub>2</sub>	$2,8 \times 10^{-5}$	anthropiques
H <sub>3</sub> CCl <sub>3</sub>	$\sim 1 \times 10^{-8}$	anthropiques

Tableau 1.1: Composition de l'atmosphère sèche (tableau adapté de *Manahan, 2000*)

### 1.1.2 Température et pression

La pression atmosphérique diminue de façon exponentielle avec l'altitude. Au niveau de la mer, elle dépend essentiellement de la masse de l'atmosphère, celle-ci pouvant évoluer en fonction de la dynamique du climat, comme par exemple avec la variation de la concentration de vapeur d'eau. La pression atmosphérique peut être calculée à partir de la formule de

nivellement barométrique. Cette description implique néanmoins des approximations. De manière simple, si la température est considérée comme uniforme quelle que soit l'altitude, la pression  $P$  à une altitude  $h_1$  peut être définie par :

$$p(h_1) = p_0 e^{\frac{-Mg}{RT} z} = p_0 e^{\frac{-z}{h_s}} \quad (1.1)$$

avec

$p(h_0)$  : pression atmosphérique au niveau de la mer

$g$  : accélération de la pesanteur ( $9,807 \text{ m s}^{-2}$ )

$M$  : masse molaire moyenne des gaz de l'atmosphère ( $0,02896 \text{ kg.mol}^{-1}$ )

$R$  : constante des gaz parfaits ( $8,314 \text{ J K}^{-1} \text{ mol}^{-1}$ )

$z$  : altitude

$h_s$  : altitude caractéristique =  $\frac{RT}{Mg}$

A chaque augmentation de l'altitude d'une hauteur  $h_s$ , la pression diminue d'un facteur  $e \approx 2,72$ . L'altitude caractéristique est ainsi une mesure naturelle pour la hauteur de l'atmosphère et de l'évolution de la pression en son sein.

La température de l'atmosphère terrestre varie elle aussi avec l'altitude. Le graphique suivant (figure 1.1) montre la variation de la température et de la pression avec l'altitude. Le gradient thermique  $\partial T / \partial z$  change de signe et permet ainsi de définir quatre couches atmosphériques différentes (cf. figure 1.1) :

- La **troposphère** est la couche la plus basse de l'atmosphère. Elle s'étend de la surface de la terre jusqu'à une hauteur comprise entre 7 km au niveau des pôles et 17 km au-dessus de l'équateur. La température moyenne de la troposphère varie de  $15^\circ\text{C}$  au niveau de la mer et décroît jusqu'à une température de  $-56^\circ\text{C}$  à la tropopause qui sépare la troposphère de la stratosphère. La composition de la troposphère est relativement homogène du fait de la circulation des masses d'air. La plus grande partie des phénomènes météorologiques a lieu dans cette partie de l'atmosphère.
- La **stratosphère** s'étend à partir de la troposphère jusqu'à environ 50 km du sol. Dans cette partie de l'atmosphère, la température augmente avec l'altitude. Cette augmentation de la température est due au mécanisme d'absorption par l'ozone d'une partie des

rayonnements ultra-violetes en provenance du soleil. Elle contient la majeure partie de l'ozone atmosphérique (couche d'ozone).

- La **mésosphère** délimite la zone allant de la stratosphère jusqu'à une hauteur de 80 à 85 km. La température décroît à nouveau avec l'altitude. La limite entre la stratosphère et la mésosphère est appelée stratopause.
- La **thermosphère**, dernière couche de l'atmosphère dans laquelle la température croît à nouveau et peut atteindre jusqu'à 1200°C par l'effet des rayonnements solaires.

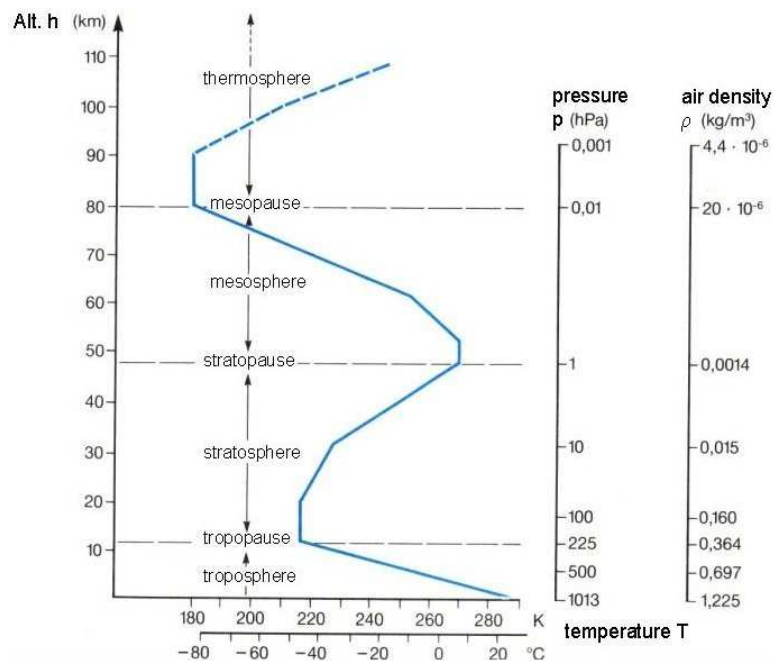


Figure 1.1: Température de l'atmosphère en fonction de l'altitude (Ahlheim, 1989)

Deux autres couches peuvent aussi être distinguées au delà :

- Au-dessus de la thermosphère s'étend l'**exosphère**. Cette couche se définit comme la région de l'atmosphère où les collisions entre particules sont rares et considérées comme négligeables. A partir de cette zone, les molécules et composés ioniques peuvent complètement échapper à l'atmosphère terrestre et se retrouver dans l'espace.
- L'**ionosphère** englobe la thermosphère et l'exosphère et délimite la zone de l'atmosphère ionisée par les rayonnements solaires. Cette couche est le siège des phénomènes d'aurores boréales et australes.



## 1.2 La pollution atmosphérique

Les émissions de composés chimiques issues des sources naturelles et des activités humaines peuvent être transportées dans l'atmosphère non seulement horizontalement à plus ou moins longues distances, mais aussi verticalement, parfois jusqu'à des altitudes élevées. Certaines de ces émissions peuvent donner lieu à des réactions chimiques avec d'autres composés présents dans l'atmosphère, sous l'effet du rayonnement solaire. Elles peuvent interagir entre elles ou avec les phases liquides et solides (glace) des nuages et des précipitations (figure 1.2). Leur durée de vie dans l'atmosphère dépend fortement de leur réactivité chimique et des conditions de séjour qui déterminent leur transport à courtes, moyennes, ou longues distances (figure 1.3).

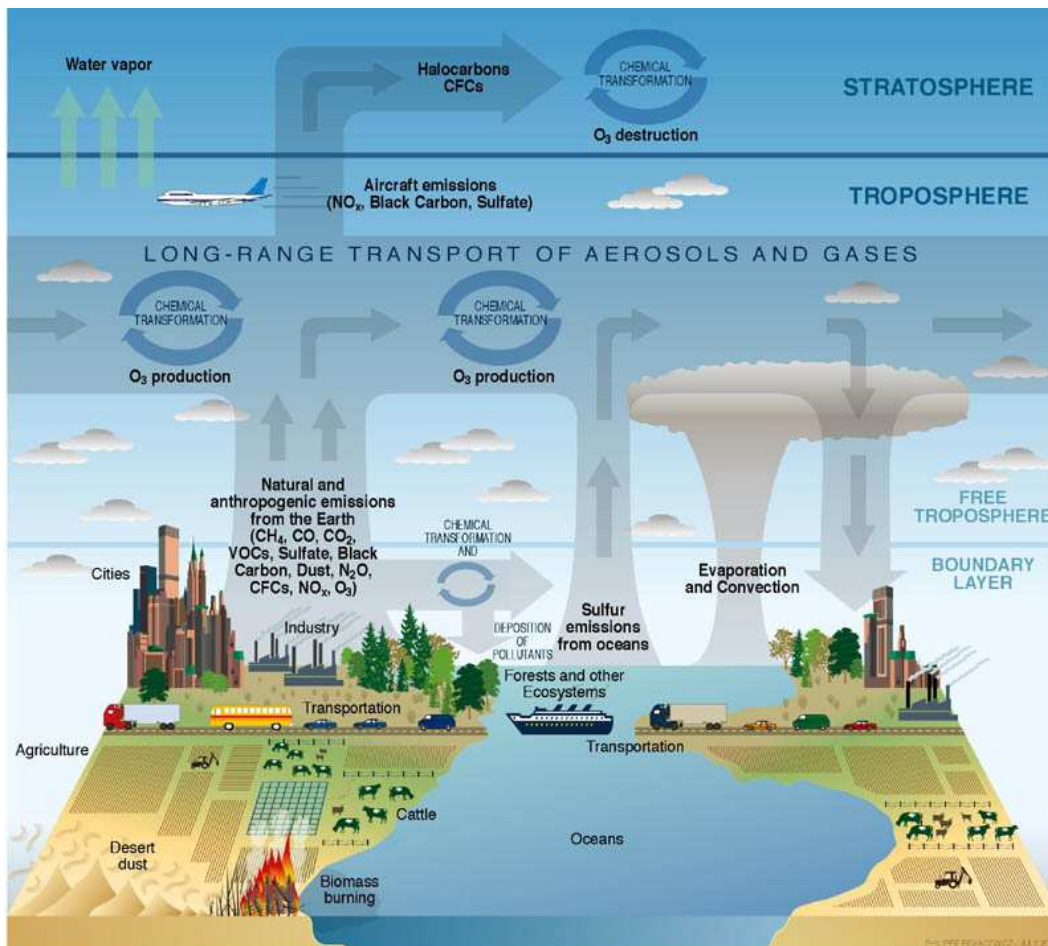


Figure 1.2: Description schématique des phénomènes chimiques et de transport des polluants dans l'atmosphère (CCSP, 2003)

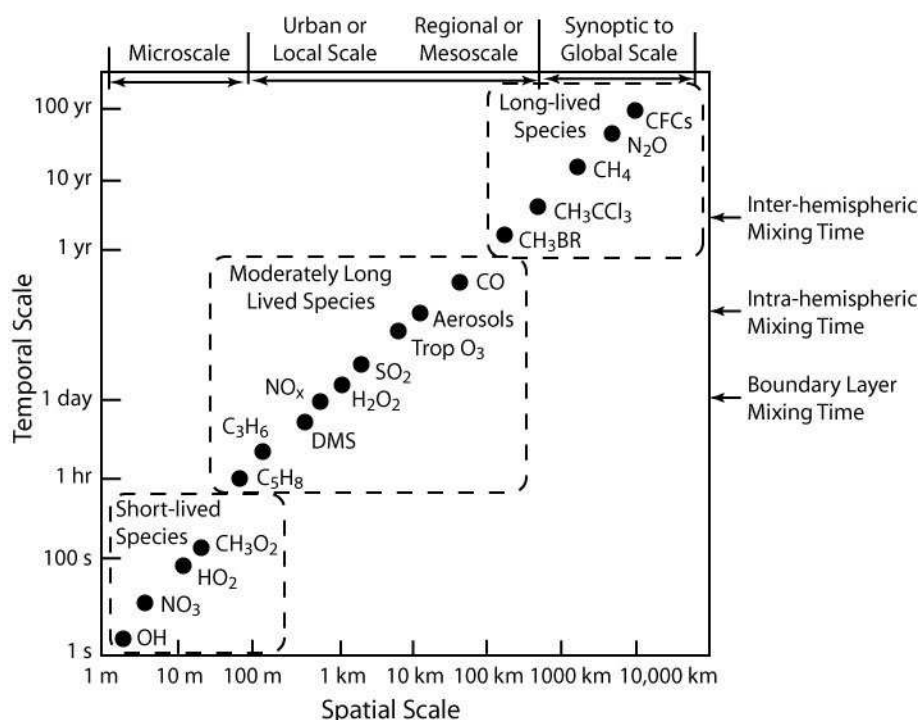


Figure 1.3: Échelles temporelles et spatiales de différents composés (NASA)

Les effets des différents polluants et les phénomènes de pollution qui en découlent peuvent être classés notamment en fonction de l'échelle spatiale à laquelle ils interviennent.

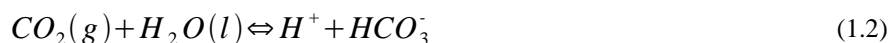
- **A l'échelle locale** : la pollution affecte le plus souvent directement la santé humaine et animale par l'exposition à des substances toxiques, mais pose également des problèmes environnementaux suite à l'exposition des différentes espèces animales et végétales. Les effets peuvent être accentués par des phénomènes de synergie entre différents composés polluants. A cette échelle, elle peut également agir sur la flore directement par voie chimique ou indirectement par modification des équilibres dans les sols, et enfin sur les matériaux et le bâti par corrosion et salissure.
- **A l'échelle régionale** : les deux phénomènes caractéristiques qui peuvent être distingués sont « les pluies acides » et la pollution photochimique. Les pluies acides résultent de rejets d'oxydes d'azote et de soufre qui se combinent avec les eaux de pluie, pour former de l'acide nitrique et sulfurique. Cette acidification peut provoquer l'eutrophisation des eaux de surfaces et constitue un facteur important du dépérissement forestier. D'autre part, la pollution photochimique (ou smog) due aux émissions des composés organiques volatiles (COV), des oxydes d'azote et du monoxyde de carbone est

à l'origine de la formation d'ozone troposphérique et de PAN (nitrate de peroxyacétyle).

– **A l'échelle planétaire** : la destruction de la couche d'ozone est liée à des émissions de composés chimiques chlorés suffisamment stables pour accéder à la stratosphère où ils sont dissociés par le rayonnement UV. Le chlore, ainsi libéré, s'attaque alors aux molécules d'ozone, leur diminution entraînant une augmentation de l'**effet de serre**.

### 1.2.1 Les pluies acides (Manahan, 2000)

Les pluies sont naturellement légèrement acides par la présence de CO<sub>2</sub> en phase aqueuse en équilibre avec l'eau des précipitations.

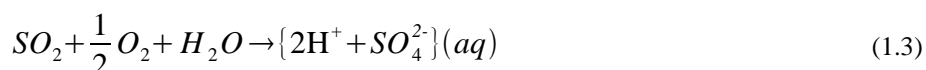


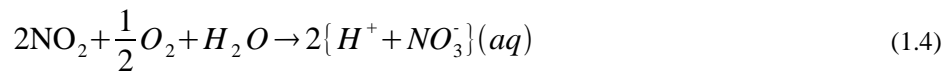
Le terme de « pluies acides » est utilisé pour décrire l'ensemble des précipitations aqueuses (pluie, brouillard, rosée, neige) rendues acides par la présence d'acides plus forts que le CO<sub>2</sub> responsable de l'acidité naturelle. Le terme « dépôts acides » est utilisé de manière plus générale pour décrire l'ensemble des dépôts acides à la surface de la terre, que ce soit sous forme liquide, gazeuse (par exemple SO<sub>2</sub>) ou sous forme de sels (par exemple NH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub>).

Malgré les concentrations plus élevées de CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère par rapport au SO<sub>2</sub>, ce dernier contribue de manière plus importante à l'acidité des précipitations principalement pour deux raisons :

- Le SO<sub>2</sub> a une solubilité plus importante dans l'eau que le CO<sub>2</sub>.
- La constante d'acidité (pKa) du SO<sub>2</sub> est de 4 ordres de grandeur plus importante que celle du CO<sub>2</sub>.

Les émissions d'acides forts comme l'acide chlorhydrique ou l'acide sulfurique peuvent être à l'origine de pluies acides. Néanmoins, le plus souvent, leur formation est due à des polluants secondaires issus de l'oxydation de gaz (SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>).

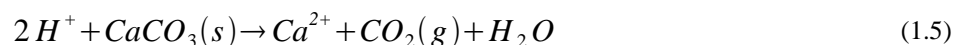




Le phénomène de pluies acides est majoritairement d'origine anthropique et dû aux émissions des industries, des centrales thermiques et du trafic routier. Néanmoins, les pluies acides peuvent se produire sur des zones éloignées de ces sources. L'oxydation des gaz en composés acides et leur dépôt peuvent s'étendre sur plusieurs jours pendant lesquels les masses d'air les contenant peuvent se déplacer à des centaines, voire des milliers de kilomètres de la zone d'émissions.

Les principaux effets des pluies acides sont :

- la phytotoxicité directe pour les plantes due à une concentration en acide excessive,
- la phytotoxicité indirecte par la modification des propriétés des sols et la libération de métaux lourds,
- les effets respiratoires sur les êtres humains et les animaux,
- l'acidification des eaux des lacs et des rivières entraînant des effets toxiques sur la faune et la flore,
- la destruction de forêts,
- la corrosion et l'érosion des matériaux (bâtiments, roches calcaires, constructions métalliques). Les roches calcaires sont particulièrement sensibles aux attaques acides.



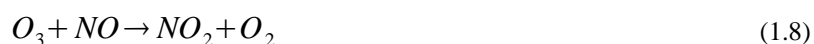
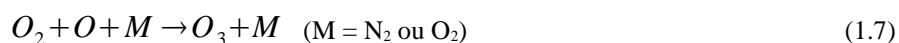
### **1.2.2 Pollutions photochimiques ou SMOG (Manahan, 2000)**

La présence dans l'air de composés oxydants est caractéristique de la pollution photochimique. La formation de ces composés oxydants, et notamment de l'ozone, à de fortes concentrations, se produit à l'intérieur et autour des zones urbaines, lors de journées chaudes et ensoleillées, lorsque les COV et les NOx issus du trafic routier réagissent entre eux. Ces réactions sont responsables de la formation de nombreux polluants secondaires nocifs à l'origine de la pollution photochimique. Le principal composé oxydant formé est l'ozone, mais

ces réactions produisent aussi d'autres composés oxydants tels que :

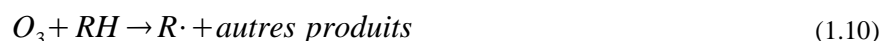
- le peroxyde d'hydrogène ( $H_2O_2$ ),
- des peroxydes organiques ( $ROOR'$ ),
- des acides carboxyliques ( $ROOH$ ),
- le nitrate de peroxyacétyle ou peroxyacetylnitrate (PAN) ( $CH_3(CO)OONO_2$ ) ainsi que d'autres composés organiques oxydants.

L'ozone est formé par réaction de l'atome d'oxygène avec le dioxygène de l'atmosphère et un 3<sup>ème</sup> corps absorbeur d'énergie. Il est consommé par sa réaction avec le NO. L'atome d'oxygène est généré par la réaction photochimique de  $NO_2$ .



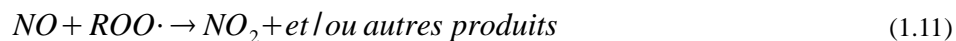
Cette dernière réaction (équation 1.8) étant très rapide, la concentration d'ozone reste faible tant que la concentration de NO reste relativement importante.

Lorsque l'atmosphère contient également des COV, ceux-ci peuvent réagir avec des atomes d'oxygène pour former des radicaux libres.



où  $R\cdot$  est un radical libre pouvant contenir de l'oxygène ou non.

Ces radicaux libres vont réagir avec NO et  $NO_2$  et produire des polluants secondaires. La concentration d'ozone va augmenter du fait de la diminution de NO qui est consommé par sa réaction avec les radicaux libres.



La réaction terminale la plus courante est celle décrite par l'équation 1.11. D'autres réactions mettant fin au cycle peuvent aussi se produire entre les radicaux libres avec NO ou entre 2 radicaux libres ( $R\cdot$ ). Cette dernière possibilité est beaucoup plus rare, du fait de la faible concentration des radicaux libres par rapport aux oxydes d'azote dans l'atmosphère. Les

radicaux libres peuvent aussi être adsorbés à la surface de particules.

La formation d'ozone dépend fortement de la présence et des concentrations en COV et NOx. Si la concentration en NOx est élevée, mais celle des COV est faible, l'ozone formé est directement consommé par le NO présent et la concentration en ozone reste faible. Dans le cas inverse, si le niveau des COV est élevé et celui de NOx est faible, la concentration d'ozone reste à nouveau peu élevée. Ce n'est qu'en présence de concentrations élevées de NOx et de COV que la concentration en ozone augmente de manière importante. (cf. figure 1.4).

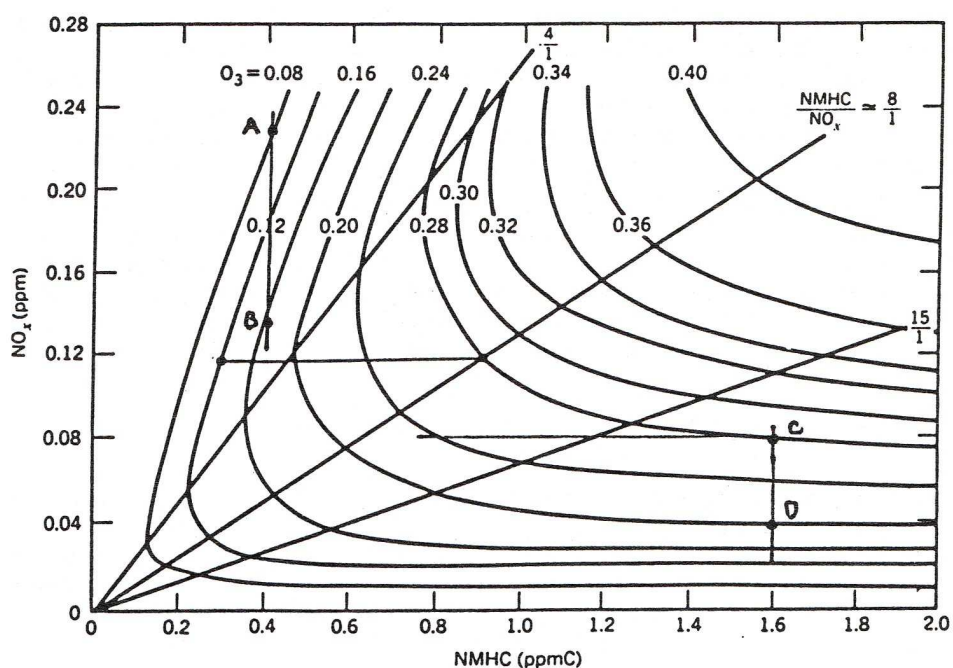


Figure 1.4: Isoplèthes types de concentration d'ozone (Académie des Sciences, 1993)

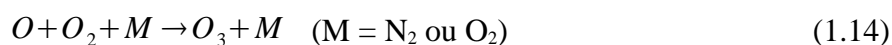
Les polluants photochimiques sont nocifs du fait de leurs propriétés oxydantes. Ils peuvent générer des nuisances en terme de :

- santé humaine : problèmes respiratoires et irritations des yeux. Certains des composés intermédiaires peuvent avoir des effets cancérigènes.
- problèmes environnementaux : phytotoxicité...

### 1.2.3 Destruction de la couche d'ozone (Manahan, 2000)

L'ozone stratosphérique agit comme un bouclier en absorbant une partie des rayonnements ultra-violetts provenant du soleil. Il protège ainsi les espèces vivant sur la terre de leurs effets nocifs. La formation et la destruction de l'ozone sont décrites par le cycle de Chapman :

L'ozone est formé par 2 réactions qui sont



et est détruit par photo-dissociation



En l'absence de molécules qui interfèrent avec ces réactions, le cycle est en équilibre et la concentration d'ozone reste stationnaire. Les composés chlorofluorocarbonés (CFC) longtemps utilisés par l'industrie (fluides réfrigérants, gaz propulseurs pour les aérosols...) viennent perturber le cycle de l'ozone dans la stratosphère. Les CFC d'une extrême stabilité chimique, persistent plusieurs années dans l'atmosphère et peuvent atteindre la stratosphère où ils sont dissociés par les intenses radiations ultra-violettes.



Leur dissociation forme des atomes de chlore, qui détruisent l'ozone,



Le chlore est ensuite régénéré par la réaction suivante



L'effet de ces réactions en chaîne est la destruction de plusieurs dizaines de milliers de molécules d'ozone pour chaque atome de chlore formé.

Une augmentation de l'intensité des rayonnements ultra-violetts atteignant la Terre du fait de la réduction de la couche d'ozone stratosphérique a des conséquences sanitaires et environnementales et serait corrélée avec l'augmentation de l'incidence de cataractes et de

cancers de la peau.

### 1.2.4 L'effet de serre

Sans l'effet de serre, la vie sur Terre serait tout autre, car il permet d'augmenter la température moyenne de plusieurs dizaines de degrés. Le principe de l'effet de serre est décrit sur la figure 1.5. La plus grande partie du rayonnement solaire traverse l'atmosphère et réchauffe la surface de la Terre. Celle-ci renvoie une partie de cette énergie sous forme de rayonnement infrarouge de grandes longueurs d'onde. La vapeur d'eau et les gaz à effet de serre ( $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{N}_2\text{O}$ ...) absorbent une partie du rayonnement terrestre et réchauffent l'atmosphère de la planète.

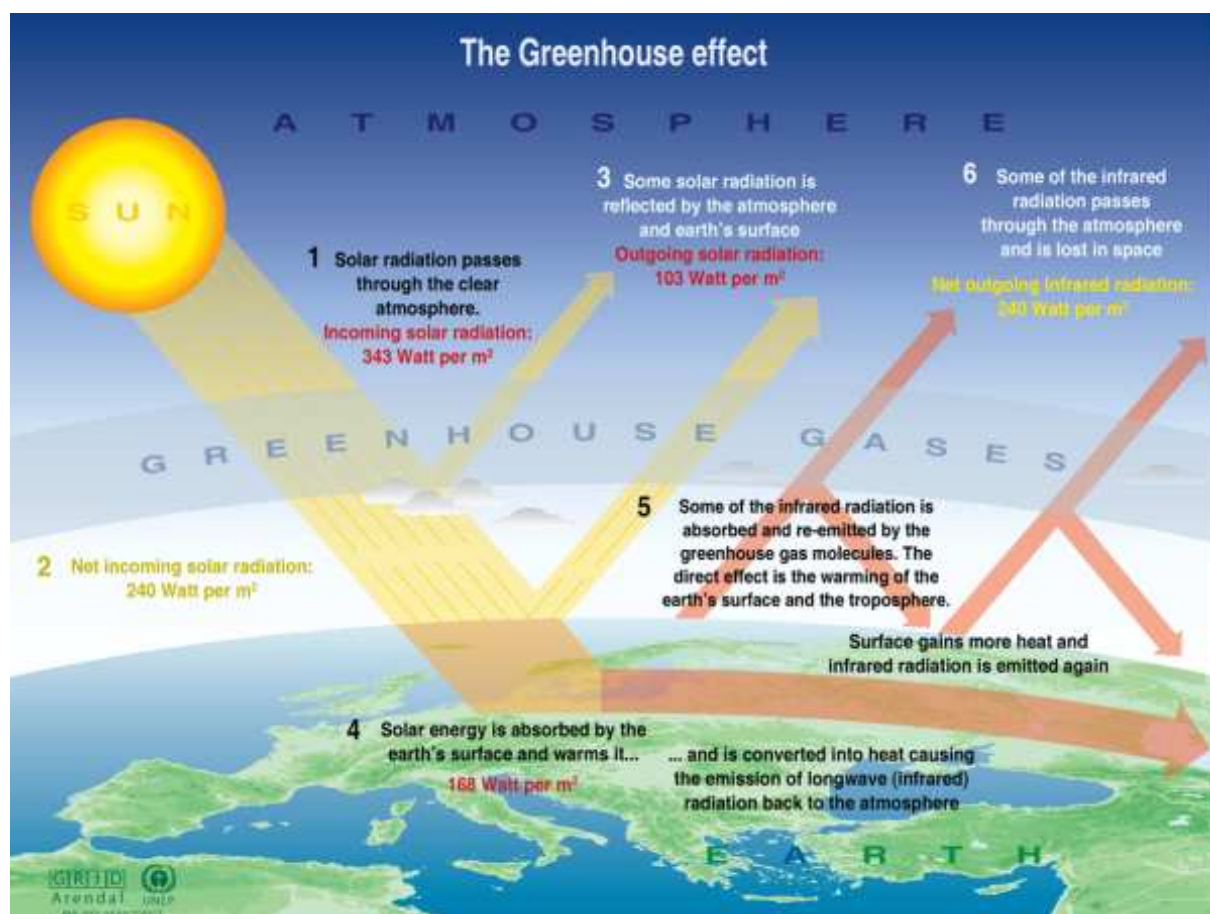


Figure 1.5: Description schématique de l'effet de serre (UNEP/GRID-Arendal).

Les activités humaines influencent principalement le changement climatique, par



l'émission de 4 principaux gaz à effet de serre :

- le CO<sub>2</sub> provenant principalement de la combustion des énergies fossiles,
- le CH<sub>4</sub> lié aux activités agricoles et à la distribution de gaz naturel,
- les NO<sub>x</sub> issus de la combustion des énergies fossiles et de l'utilisation de fertilisants,
- les composés organiques halogénés, dont les principaux sont les CFC, utilisés comme gaz propulseur ou réfrigérant et dans des procédés industriels. Leurs émissions ont cessé après la découverte de leur rôle dans la diminution de la couche d'ozone et la mise en place d'un traité international limitant puis interdisant leur utilisation.

Depuis le début de l'ère industrielle (autour de 1750), les émissions des gaz à effet de serre ont augmenté de même que leurs concentrations dans l'atmosphère (figure 1.6).

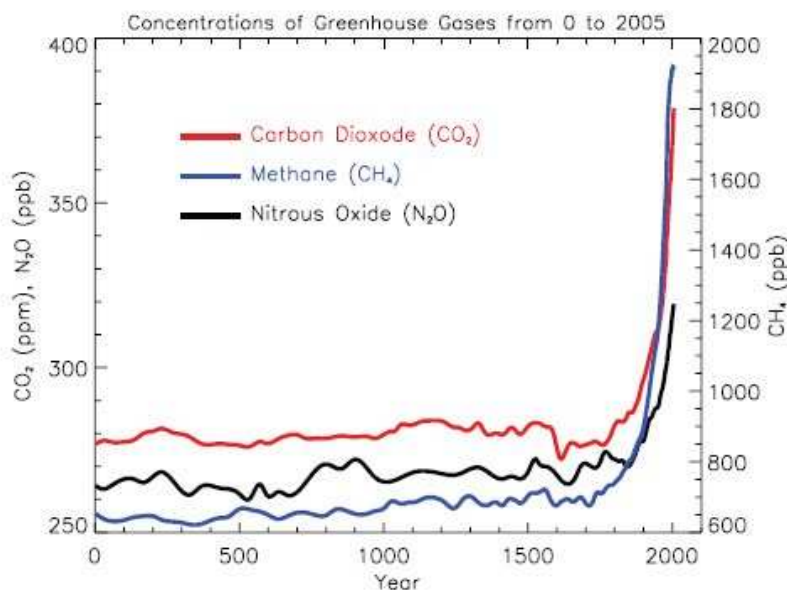


Figure 1.6: Concentrations des gaz à effet de serre de l'année 0 à 2005 (Forster, 2007)

L'influence des gaz à effet de serre peut être évaluée à l'aide du forçage radiatif. « *Le forçage radiatif du système surface-troposphère dû à la perturbation ou l'introduction d'un agent (par exemple, une variation de concentration des gaz à effet de serre) est la variation nette (baisse moins hausse) de l'irradiation (solaire et grandes longueurs d'onde, en  $W.m^{-2}$ ) à*

la tropopause APRÈS que les températures stratosphériques se soient réajustées à l'équilibre radiatif, mais avec les températures et états de surface et troposphériques gardés constants aux valeurs non-perturbées » comme défini par le GIEC (Forster 2007).

La figure 1.7 résume les principales composantes du forçage radiatif impactant sur les changements climatiques liés à l'effet de serre. Les valeurs représentent le forçage radiatif en 2005 par rapport au début de l'ère industrielle (environ 1750) Les activités humaines causent des modifications importantes des concentrations de gaz à longue durée de vie, d'ozone, de vapeur d'eau, de l'albédo de surface des aérosols et de condensation. Les forçages naturels proviennent des changements du rayonnement solaire et des explosions volcaniques. Durant l'ère industrielle, les rayonnements solaires ont augmenté légèrement et sont la seule source naturelle participant de manière significative à l'augmentation du forçage radiatif.

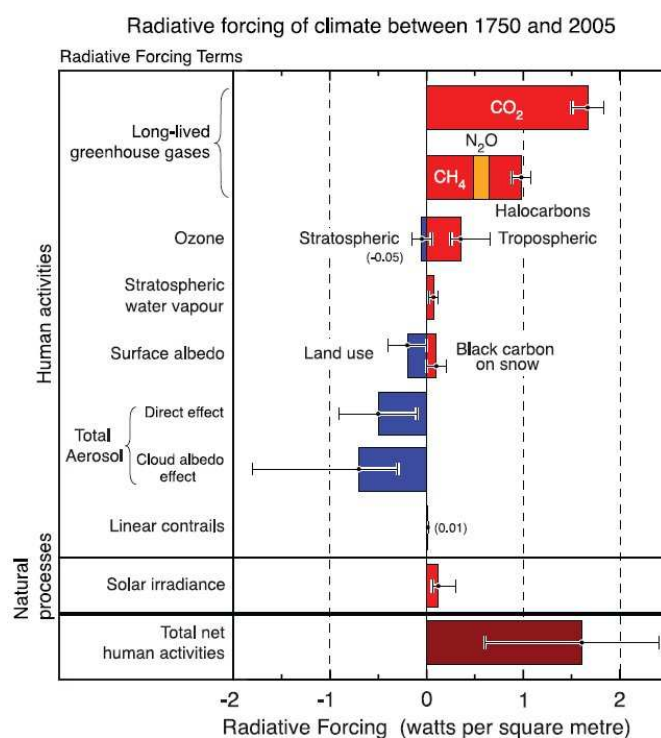


Figure 1.7: Différence du forçage radiatif entre 1750 et 2005 (Forster, 2007)

## **2 La réglementation vis-à-vis de la pollution atmosphérique**

### **2.1 Les principales conventions internationales**

#### **2.1.1 La convention sur la pollution transfrontalière à longue distance (CLRTAP)**

Adoptée en 1979 à Genève, cette convention internationale rassemble actuellement 51 pays signataires (*UNECE*). Elle vise à limiter autant que possible la pollution de l'air. Chaque pays se doit de suivre les obligations des différents protocoles édictés sous cette convention. Ces protocoles sont les suivants :

- le protocole d'Helsinki sur le soufre (1985),
- le protocole de Sofia sur les oxydes d'azote (1991),
- le protocole de Genève sur les composés organiques volatils (1991),
- le protocole d'Oslo sur le soufre (1994),
- le protocole d'Aarhus sur les métaux lourds et les polluants organiques persistants (1998),
- le protocole de Gothenburg sur la réduction de l'acidification (1999).

Les différents signataires doivent rendre compte de leurs émissions annuelles de dioxyde de soufre, d'oxydes d'azote, de composés organiques volatils non méthaniques, de méthane, de monoxyde de carbone, d'ammoniac, de plusieurs métaux lourds et de polluants organiques persistants. Pour ce faire, ils suivent une nomenclature spécifique pour les différentes catégories de sources et une méthodologie commune définie par l'EMEP pour réaliser les inventaires d'émissions.

#### **2.1.2 La convention sur la protection de la couche d'ozone**

La convention de Vienne pour la protection de la couche d'ozone a été adoptée en mars 1985. Elle reconnaît la nécessité d'accroître la coopération internationale en vue de « protéger

la santé humaine et l'environnement contre les effets néfastes résultant ou susceptibles de résulter des activités humaines qui modifient ou sont susceptibles de modifier la couche d'ozone ». (Article 2). Les mesures proposées par cette convention restaient particulièrement vagues et ne contenaient pas de propositions très contraignantes pour les différents signataires. En 1987, a été ajouté le protocole de Montréal visant à réduire progressivement la consommation, la production et les exportations de huit substances qui appauvrissent la couche d'ozone. Le protocole est entré en vigueur au 1<sup>er</sup> janvier 1989. Les effets positifs de cette convention sont aujourd'hui reconnus. Elle a permis d'éviter un appauvrissement trop important de la couche d'ozone stratosphérique et des conséquences catastrophiques pour la santé humaine et l'environnement.

### **2.1.3 La convention sur le changement climatique (UNFCCC)**

Il s'agit d'un traité international sur l'environnement et le développement mis en place à la conférence des Nations Unies à Rio de Janeiro en 1992. Ce traité vise à stabiliser les concentrations de gaz à effet de serre dans l'atmosphère à un niveau qui empêche toute perturbation anthropique dangereuse du système climatique (*UNFCCC*).

A l'origine, le traité ne fixe pas de limite obligatoire sur les émissions de gaz à effet de serre et ne contient pas de disposition d'application. Par contre, le traité comporte des dispositions pour les mises à jour (appelées «protocoles») qui pourront fixer des limites pour les émissions. La principale mise à jour est le protocole de Kyoto, qui est actuellement mieux connue que la convention elle-même.

L'une de ses premières réalisations a été pour chaque pays signataire de mettre en place un inventaire des gaz à effet de serre. D'autre part, l'ensemble des pays signataires acceptent de réduire leurs émissions (en particulier de dioxyde de carbone) pour cibler des niveaux inférieurs à leurs niveaux de 1990. S'ils ne peuvent pas tenir leurs engagements, ils doivent acheter des crédits d'émissions.

La convention divise les pays en trois groupes principaux selon différents engagements :

- Le premier groupe comprend les pays industrialisés qui étaient membres de l'OECD (Organization for Economic Co-operation and Development) en 1992, auxquels s'ajoutent les pays à économie en transition (les parties en transition), dont la

Fédération de Russie, les États Baltes et plusieurs États d'Europe Centrale et Orientale.

- Le second groupe est un sous-groupe des pays du premier groupe à l'exception des pays à économie en transition. Ils sont tenus :
  - de fournir des ressources financières pour permettre aux pays en développement d'entreprendre des activités de réduction des émissions dans le cadre de la convention,
  - d'aider leur adaptation aux effets néfastes des changements climatiques,
  - de promouvoir le développement et le transfert des technologies respectueuses de l'environnement vers les pays en transition et les pays en développement.
- Le troisième groupe est constitué par les pays en développement. Certains pays en développement sont reconnus par la convention comme étant particulièrement vulnérables aux effets néfastes des changements climatiques, notamment les pays comprenant des régions côtières de faible altitude et les régions sujettes à la désertification et la sécheresse.

## **2.2 La réglementation française**

La réglementation française découle principalement des directives européennes qui intègrent les conventions internationales portant sur la qualité de l'air.

En France, la réglementation est basée sur la Loi sur l'Air et l'Utilisation Rationnelle de l'Energie (LAURE) qui date du 30 décembre 1996. Son objectif décrit dans son article 1 : *« est la mise en œuvre du droit reconnu à chacun à respirer un air qui ne nuise pas à sa santé. Cette action d'intérêt général consiste à prévenir, à surveiller, à réduire ou à supprimer les pollutions atmosphériques, à préserver la qualité de l'air et, à ces fins, à économiser et à utiliser rationnellement l'énergie ».*

Elle précise également dans son article 2 la définition d'une pollution atmosphérique comme *« l'introduction par l'homme, directement ou indirectement, dans l'atmosphère et les espaces clos, de substances ayant des conséquences préjudiciables de nature à mettre en danger la santé humaine, à nuire aux ressources biologiques et aux écosystèmes, à influencer sur les changements climatiques, à détériorer les biens matériels, à provoquer des nuisances*

*olfactives excessives* ».

Cette loi rend obligatoire la surveillance de la qualité de l'air au niveau local, en définissant des objectifs de qualité, des seuils d'alertes, l'obligation d'information de la population. Elle contraint à mettre en place des outils pour lutter contre la pollution atmosphérique.

Elle impose la réalisation de :

- **Plans Régionaux pour la Qualité de l'Air (PRQA)** : Ils sont élaborés sous la direction des Préfets de Région. Ces plans précisent les orientations permettant d'atteindre les objectifs de qualité de l'air et de prévenir ou de réduire la pollution atmosphérique afin d'en atténuer les effets. Ils fixent également des objectifs de qualité de l'air spécifiques à certaines zones lorsque les nécessités de leur protection le justifient. A ces fins, les plans régionaux pour la qualité de l'air s'appuient le plus souvent sur des inventaires d'émissions et des évaluations de la qualité de l'air et des effets sur la santé publique et sur l'environnement. Au terme de période de cinq ans, les plans font l'objet d'évaluation. Ils sont révisés si les objectifs de qualité de l'air n'ont pas été atteints ou sont modifiés en fonction des éléments objectifs du bilan quinquennal et de l'actualisation des données scientifiques et sanitaires.
- **Plans de Protection de l'Atmosphère (PPA)** : Ils concernent toutes les villes de plus de 250 000 habitants ainsi que les zones où, dans des conditions précisées par décret en Conseil d'État, les valeurs limites sont dépassées ou risquent de l'être. Les Préfets élaborent les Plans de Protection de l'Atmosphère en accord avec les plans régionaux de la qualité de l'air s'ils existent. Les PPA ont pour objet, dans les délais qu'ils fixent, de ramener les concentrations en polluants dans l'atmosphère, à l'intérieur de la zone, à des niveaux inférieurs aux valeurs limites, et de définir les modalités des procédures d'alerte. Ils permettent aux autorités de prononcer la restriction ou la suspension des activités polluantes et de prescrire des limitations à la circulation des véhicules.
- **Plans de Déplacements Urbains (PDU)** : Ces plans sont réalisés pour les agglomérations de plus de 100 000 habitants. Ils ont pour but d'assurer un équilibre durable entre les besoins en matière de mobilité et de facilité d'accès d'une part, et la protection de l'environnement et de la santé, d'autre part. Ils ont comme objectifs de

coordonner tous les modes de déplacement et de faire la promotion des modes les moins polluants et les moins consommateurs en énergie.

Par ailleurs, cette loi intègre les principes de pollution et de nuisance dans le cadre de l'urbanisme et dans les études d'impacts relatives aux projets d'équipement. Elle fixe des mesures techniques de prévention de la pollution atmosphérique et d'utilisation rationnelle de l'énergie au niveau national ainsi que des dispositions financières et fiscales (essentiellement pour l'achat de véhicules fonctionnant au GPL, ou à l'électricité).

La loi fixe également pour un certain nombre de polluants :

- des objectifs de qualité : il s'agit de niveaux de concentrations de substances polluantes dans l'atmosphère à atteindre dans une période donnée. Ces niveaux sont établis sur la base des connaissances scientifiques, dans le but d'éviter, de prévenir ou de réduire les effets nocifs de ces substances pour la santé humaine ou pour l'environnement (cf. tableau 1.2).
- des valeurs limites et d'information : ces valeurs correspondent aux niveaux maximaux de concentrations de substances polluantes dans l'atmosphère, fixés comme précédemment sur la base des connaissances scientifiques, dans le but d'éviter, de prévenir ou de réduire les effets nocifs de ces substances pour la santé humaine ou pour l'environnement (cf. tableau 1.2).
- des seuils d'alerte : ce sont les niveaux de concentrations de substances polluantes dans l'atmosphère au-delà desquels les expositions de courte durée présentent des risques pour la santé humaine ou de dégradation de l'environnement (cf. tableau 1.2). Lorsqu'un seuil d'alerte est dépassé, des mesures d'urgence doivent être prises afin de limiter l'ampleur et les effets de la pollution sur la population. Ces mesures sont prises par les Préfets sur la base des Plans de Protection de l'Atmosphère (PPA).

Composés	Objectifs de qualité	Seuils de recommandation et d'information	Seuils d'alerte	Valeurs limites	
				Santé humaine	Protection écosystème et végétation
Dioxyde d'azote (NO <sub>2</sub> )	40 µg/m <sup>3</sup> (a)	200 µg/m <sup>3</sup> (b)	400 µg/m <sup>3</sup> (a) 200 µg/m <sup>3</sup> (c)	40 µg/m <sup>3</sup> (a) 200 µg/m <sup>3</sup> (g)	NO <sub>x</sub> : 30 µg/m <sup>3</sup> (a)
Dioxyde de soufre (SO <sub>2</sub> )	50 µg/m <sup>3</sup> (a)	300 µg/m <sup>3</sup> (b)	500 µg/m <sup>3</sup> (b)	350 µg/m <sup>3</sup> (i) 125 µg/m <sup>3</sup> (j)	20 µg/m <sup>3</sup> (h)
Ozone (O <sub>3</sub> )	110 µg/m <sup>3</sup> (santé humaine) 220 µg/m <sup>3</sup> (végétation)	180 µg/m <sup>3</sup> (b)	1 <sup>er</sup> seuil : 240 µg/m <sup>3</sup> (d) 2 <sup>ème</sup> seuil : 300 µg/m <sup>3</sup> (d) 3 <sup>ème</sup> seuil : 360 µg/m <sup>3</sup> (b)	/	/
Particules en suspension (PM10)	30 µg/m <sup>3</sup> (a)	/	/	50 µg/m <sup>3</sup> (k) 40 µg/m <sup>3</sup> (a)	/
Benzène (C <sub>6</sub> H <sub>6</sub> )	2 µg/m <sup>3</sup> (a)	/	/	5 mg/m <sup>3</sup> (a) (à partir de 2010, 8 mg/m <sup>3</sup> en 2007)	/
Monoxyde de carbone (CO)	10 mg/m <sup>3</sup> (e)	/	/	10 mg/m <sup>3</sup> (f)	/
Plomb (Pb)	0,25 µg/m <sup>3</sup> (a)	/	/	0,5 µg/m <sup>3</sup> (a)	/

(a) moyenne annuelle.

(b) moyenne horaire.

(c) par heure, si la procédure de recommandation et d'information pour le dioxyde d'azote a été déclenchée la veille et le jour même et que les prévisions font craindre un nouveau risque de déclenchement pour le lendemain.

(d) moyenne horaire dépassée pendant 3 heures consécutives.

(e) moyenne glissante sur 8 heures.

(f) maximum journalier de la moyenne glissante sur 8 heures (directive européenne).

(g) centiles 98h en moyenne horaire (soit 175 heures de dépassement pour 365 jours) jusqu'au 31 décembre 2009 et centiles 99,8 h (soit 18 heures de dépassement pour 365 jours) à partir du 1<sup>er</sup> janvier 2010.

(h) en moyenne annuelle et en moyenne hivernale (du 1<sup>er</sup> octobre au 31 mars)

(i) centiles 99,7h en moyenne horaire (soit 24 heures de dépassement pour 365 jours)

(j) centiles 99,2h en moyenne horaire (soit 72 heures de dépassement pour 365 jours)

(k) centiles 90,4h en moyenne horaire (soit 35 jours de dépassement pour 365 jours)

Définition de la moyenne glissante : La moyenne est recalculée en continue en utilisant à chaque calcul un sous-ensemble d'éléments dans lequel le nouvel élément remplace le plus ancien. Elle permet d'éliminer les fluctuations transitoires et de mettre en valeur une tendance à long terme.

Définition et mode de calcul des centiles : Le centile est calculé à partir des valeurs effectivement mesurées, arrondies au microgramme par mètre cube le plus proche. Pour chaque site, toutes les valeurs sont portées dans une liste établie par ordre croissant. Le centile C est la valeur de l'élément de rang k pour lequel k est calculé au moyen de la formule suivante :  $k = C/100 * N$ , N étant le nombre de valeurs portées dans la liste ci-dessus. k est arrondi au nombre entier le plus proche.

Tableau 1.2: Seuils d'alerte, de recommandation et d'information, valeurs limites et de qualité fixées par la loi pour différents polluants atmosphériques (Décret n°98-360, 2003)



Les principaux intervenants pour la surveillance de la qualité de l'air sont :

- Le Ministère de l'Ecologie du Développement et de l'Aménagement Durables a pour rôle d'une part, de fixer les politiques de surveillance de la qualité de l'air et d'autre part, d'agréer les associations de surveillance de la qualité de l'air.
- L'ADEME, coordonne l'ensemble des moyens techniques de surveillance au niveau national.
- Les Associations Agréées de Surveillance de Qualité de l'Air (AASQUA) ont pour mission d'effectuer les mesures, d'informer et de diffuser l'information sur les niveaux de pollution et de sensibiliser le public. En cas de dépassement de seuils d'alerte, les AASQUA sont sous l'autorité directe des Préfets de Région.
- L'INERIS (Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques) a pour mission de réaliser ou de faire réaliser des études et des recherches permettant de prévenir les risques que les activités économiques font peser sur la santé, la sécurité des personnes et des biens ainsi que sur l'environnement.

### **3 Les inventaires d'émissions**

#### **3.1 Définition et rôle**

Un inventaire d'émissions peut se définir comme une évaluation des sources et des niveaux d'émissions de composés d'intérêt dans l'atmosphère. Une émission est au minimum caractérisée par quatre informations de base : le composé émis, la source d'émission, une résolution spatiale (zone géographique) qui permet de localiser la source et une résolution temporelle qui détermine la période pendant laquelle la source émet le composé dans l'atmosphère.

Un inventaire d'émissions peut être spatialisé, c'est-à-dire que l'ensemble des émissions sont alors localisées, soit suivant des entités administratives et/ou des entités géographiques (villes, agglomérations, départements...), soit suivant un maillage régulier de la zone entière. Cette spatialisation de l'inventaire est désignée sous le terme de cadastre d'émissions.

Un inventaire d'émissions peut être utilisé à des fins politiques dans le cadre de la gestion de l'environnement, ou scientifiques pour développer la connaissance des mécanismes et élaborer de nouveaux outils de gestion :

- A des fins scientifiques, les inventaires d'émissions constituent le plus souvent les données d'entrée pour les modèles de dispersion atmosphérique à différentes échelles spatiales et temporelles. Ces modèles permettent une meilleure compréhension des processus chimiques et physiques et de l'influence des polluants dans l'atmosphère.
- Comme outil de gestion de l'environnement atmosphérique, ces inventaires sont utilisés pour élaborer des scénarios d'émissions afin de modéliser leurs différents impacts :
  - A l'aide de scénarios d'émissions, ils permettent d'élaborer, d'optimiser puis d'évaluer des politiques de réduction des émissions et de visualiser l'efficacité de politiques environnementales en montrant les évolutions des émissions en fonction du temps.
  - Grâce à eux, il est également possible de vérifier la conformité avec les obligations des conventions ou protocoles internationaux, ou des objectifs

nationaux et régionaux de réduction des émissions.

### **3.2 Les paramètres d'un cadastre d'émissions**

Les paramètres qui définissent un cadastre d'émissions sont de plusieurs types :

- les composés recensés qui sont pris en compte dans le cadastre,
- l'extension de la zone d'étude,
- les résolutions spatiales et temporelles avec lesquelles sont décrites les émissions.

La définition de ces critères est directement guidée par les futures applications de l'inventaire. La figure 1.8 décrit schématiquement le mode de construction d'un inventaire d'émissions et les différentes données nécessaires à son élaboration.

Pour les composés chimiques, le choix est directement lié aux objectifs d'utilisation du cadastre. Par exemple, dans le cas de la modélisation des phénomènes chimiques et de transports, il est nécessaire d'inclure l'ensemble des composés primaires utilisés dans les mécanismes réactionnels du modèle.

La zone d'étude est définie soit par les unités administratives (pays, régions, départements, communes) dans le cas de bilans annuels ou d'inventaires réglementaires, soit par des unités géographiques géométriques (souvent une surface rectangulaire) plus pratiques d'utilisation à des fins de modélisation. Chaque pays possède sa structure administrative propre et dans le cas d'inventaires transfrontaliers, cela peut constituer une source de difficultés. En France, le CITEPA utilise la nomenclature NUTS (Nomenclature des Unités Territoriales Statistiques) pour définir les unités administratives. Leur échelle va de la commune en passant par le canton, l'arrondissement et le département jusqu'à la région.

La résolution spatiale permet de définir la taille de l'unité élémentaire de l'inventaire. Elle peut être administrative (commune, arrondissement, département) ou correspondre à une maille régulière de taille définie pouvant varier d'un kilomètre à plusieurs kilomètres de côté, suivant les nécessités. Le choix de la résolution spatiale doit aussi tenir compte de l'étendue de la zone d'étude afin de conserver un nombre de mailles qui permettent une gestion informatique raisonnable et de garder des temps de calculs compatibles avec les moyens et

modèles utilisés.

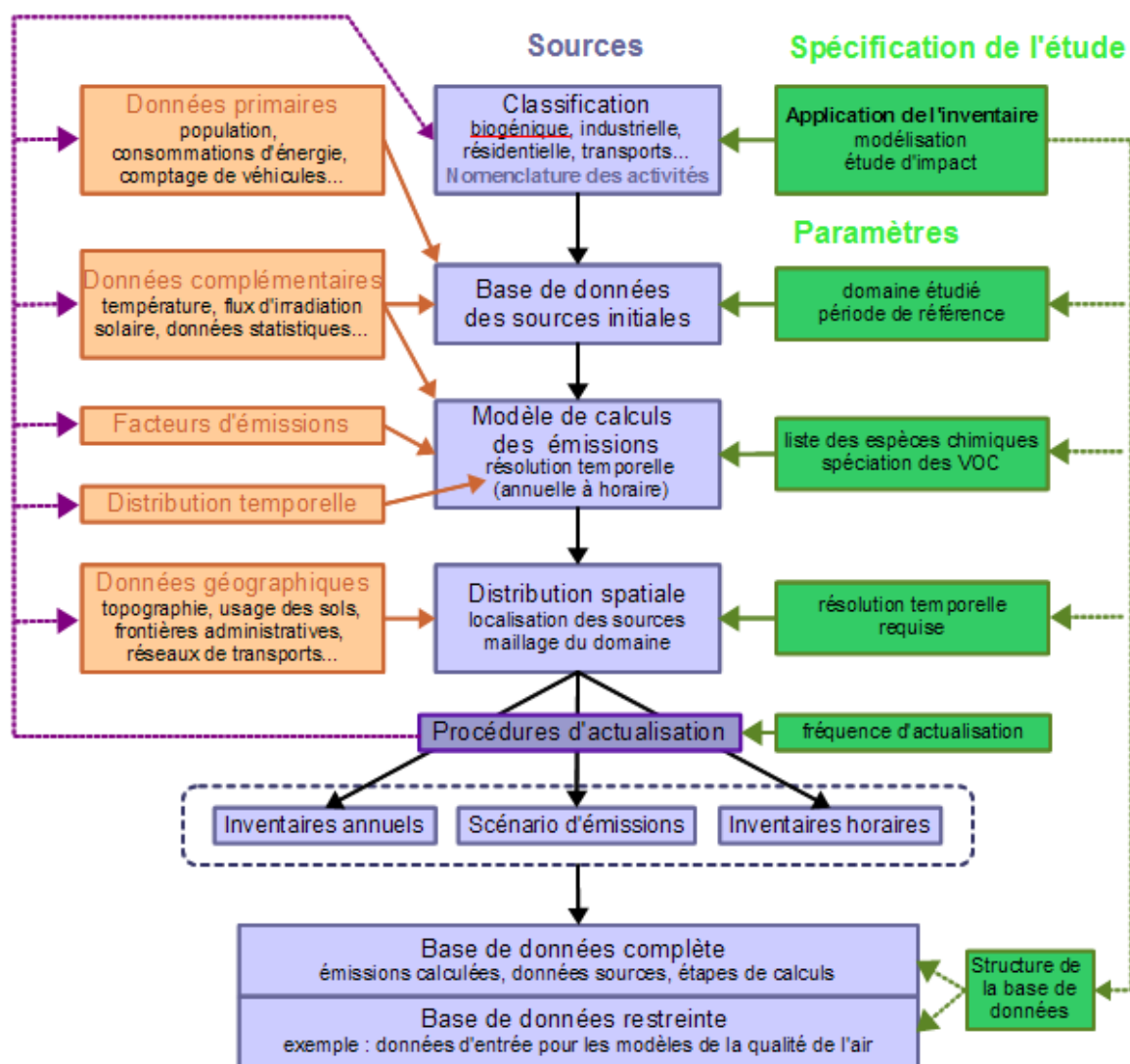


Figure 1.8: Résumé schématique de la méthodologie utilisée pour construire un inventaire d'émissions (d'après Ponche, 2002)

La résolution temporelle annuelle est utilisée en général dans le cas d'inventaires à but comparatif ou pour suivre l'évolution des émissions à des fins de politiques de réduction des émissions. Le pas de temps annuel correspond souvent à la fréquence de mise à jour la plus régulière disponible pour les données statistiques utilisées. Pour l'utilisation d'un cadastre à des fins de modélisation, un pas de temps plus fin allant jusqu'à l'heure est nécessaire afin d'être capable de modéliser les phénomènes chimiques avec suffisamment de précision. Dans ce cas, soit les données horaires sont disponibles, soit des profils de distribution sont utilisés,

permettant le passage d'un pas de temps annuel à mensuel, de mensuel à journalier et de journalier à horaire. Ces fonctions de distribution sont différentes pour chaque type de sources émettrices (voire pour chaque source).

### 3.3 Méthodologie

Les principes de base de construction d'un inventaire peuvent se résumer par l'équation suivante qui schématise la procédure de calcul pour chaque composé étudié et pour chaque activité élémentaire prise en compte. Les émissions correspondantes sont alors données par :

$$E_{c,a,t} = A_{a,t} \times FE_{c,a} \quad (1.20)$$

Avec

$E_{c,a,t}$  : émission relative au composé « c », à l'activité « a » pendant un temps « t »

$A_{a,t}$  : quantité d'activité relative à l'activité « a » pendant le temps « t »

$FE_{c,a}$  : facteur d'émission correspondant au composé « c » et à l'activité « a »

Les émissions de chaque activité élémentaire peuvent ensuite être additionnées entre elles pour obtenir l'émission totale d'un composé pour une période de temps donnée.

$$E_{c,t} = \sum E_{c,a,t} \quad (1.21)$$

Le grand nombre d'activités élémentaires qui compose un inventaire rend la tâche bien plus complexe qu'elle n'y paraît au premier abord. La création d'un cadastre est avant tout un énorme travail de collecte de données. Les données fondamentales (activités et facteurs d'émissions) sont dans certains cas mal connues et obligent souvent à trouver des données complémentaires qui seront extrapolées pour répondre aux besoins.

En réalité, les expressions sont souvent beaucoup plus complexes et font appel à un nombre plus important de paramètres. Dans certains cas, des outils de modélisation des émissions sont utilisés pour faciliter l'estimation des valeurs d'émissions. Par exemple, dans le

cas où la source d'émissions est constituée par des plantes en milieu naturel, il faut tenir compte :

- de paramètres spécifiques des espèces,
- de facteurs dépendant des conditions météorologiques,
- de paramètres variant en fonction des saisons.

Un autre exemple concerne les émissions issues du trafic routier, pour lesquelles de nombreux paramètres doivent être pris en compte : type de véhicules, de carburants, de motorisations, de voies, comptages routiers... (cf. figure 1.9)

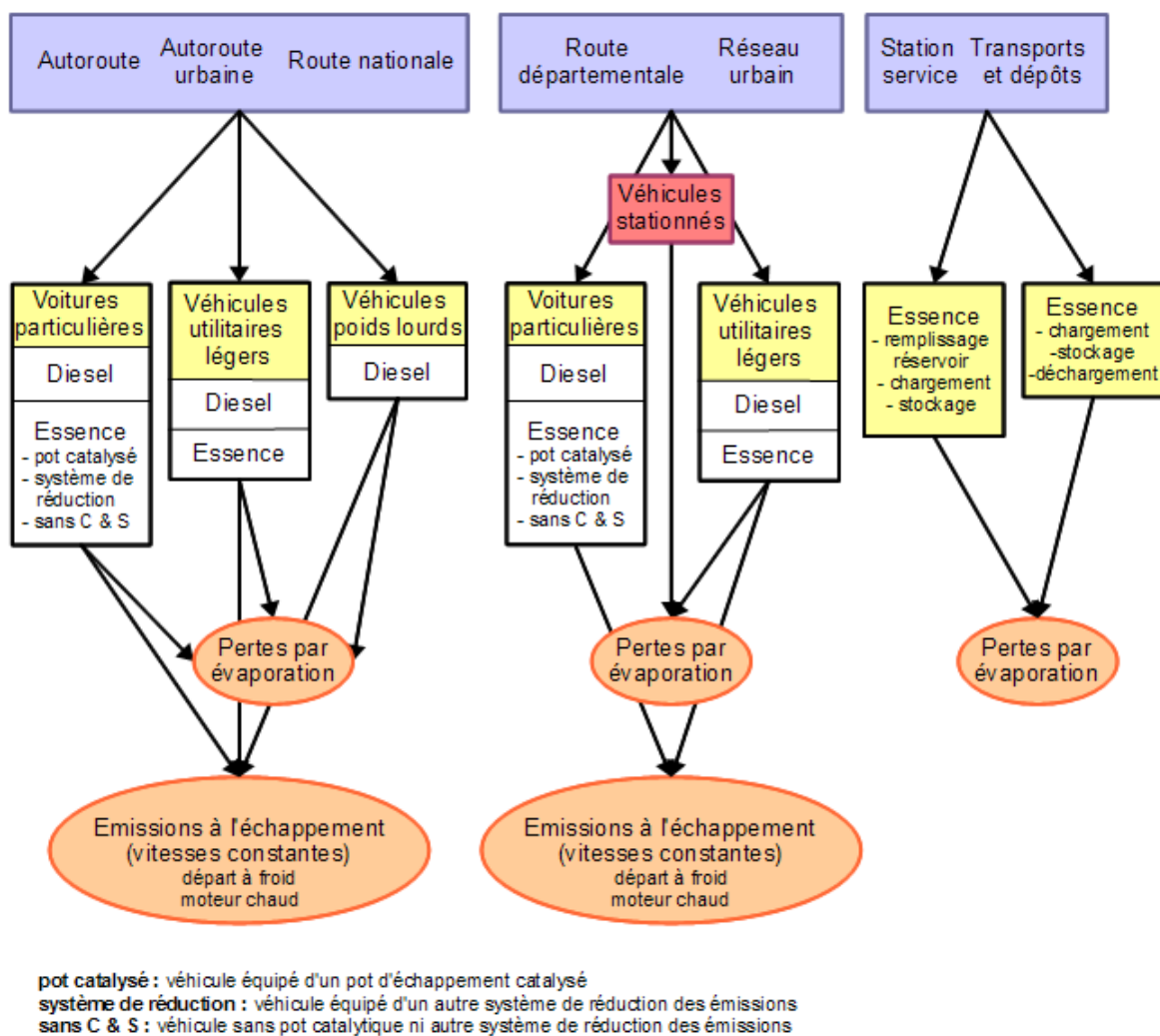


Figure 1.9: Exemple de méthodologie simplifiée de calcul des émissions pour le secteur du trafic routier (d'après Ponche et al., 2000a)

L'intérêt de dissocier les émissions en deux paramètres (A et FE) est de pouvoir

généraliser l'expression à l'ensemble des sources. Dans le cas d'installations fonctionnant à différents régimes, une activité peut alors être associée à chaque mode de fonctionnement. Dans le cas d'élaboration de scénarios de réductions d'émissions, il est possible d'envisager simplement, soit l'impact d'une mesure technique sur le traitement des émissions qui dépend du facteur d'émission, soit l'action d'une réglementation limitant l'usage ou le temps de fonctionnement d'une source émettrice en agissant sur l'activité elle-même.

Afin d'obtenir les données utiles à la construction d'un cadastre d'émissions, deux approches méthodologiques, souvent complémentaires, sont généralement utilisées. La première appelée « top-down » consiste à rechercher les informations statistiques et autres sur les activités sur l'ensemble de la zone étudiée (département, région) ou par secteur d'activité (industries, transports...) puis de redistribuer spatialement ces émissions pour atteindre la résolution spatiale souhaitée. La deuxième manière de procéder, appelée « bottom-up » consiste à utiliser une stratégie inverse. Les informations sont recherchées aux niveaux les plus fins disponibles (site par site pour l'industrie, ou commune par commune). Les émissions sont ensuite calculées puis agrégées pour obtenir la résolution spatiale requise. Dans la plupart des cas, les deux méthodologies sont utilisées en fonction des données disponibles pour chaque secteur d'activité. En pratique, il est très souvent d'usage d'utiliser les deux méthodes pour élaborer un inventaire, car si pour certaines sources les données fines existent, pour d'autres, seules des statistiques régionales voire nationales sont disponibles.

### **3.4 Le classement des sources d'émissions**

Pour être de qualité, un inventaire se doit d'être le plus exhaustif possible. Pour un composé donné, un inventaire va recenser les émetteurs qui contribuent le plus aux émissions en fonction des connaissances scientifiques du moment. Ces sources peuvent être regroupées et classées de différentes manières. Une première approche est de distinguer les sources naturelles et biogéniques (dues à des organismes vivants) des sources anthropiques dues aux activités humaines. Les sources d'émissions peuvent aussi être classées suivant la forme de leur zone d'émissions : ainsi une distinction peut-être faite entre sources ponctuelles, linéiques et surfaciques.

- Les sources ponctuelles correspondent le plus souvent à des installations industrielles fixes pour lesquelles les émissions souvent très importantes sont localisées de manière précise (par exemple la cheminée d'une usine). Dans certains cas, des informations complémentaires sont disponibles, telles que la hauteur des cheminées, leur diamètre, leur évolution dans le temps. Ces paramètres permettent alors d'affiner les calculs d'émissions de ces sources importantes.
- Les sources linéaires ou linéiques correspondent aux axes de transports (routiers, fluviaux, maritimes, ferroviaires et aériens suivant les cas) et sont liées le plus souvent aux sources mobiles, mais dans certains cas particuliers, elles peuvent également être dues à des sources fixes (oléoducs, gazoducs).
- Les sources surfaciques regroupent l'ensemble des autres sources qui ne sont ni ponctuelles ni linéiques. Il s'agit d'une part, des sources diffuses de petits émetteurs très distribués dans l'espace, comme par exemple la circulation urbaine près des grands axes, ou les chauffages individuels de zones résidentielles et d'autre part, de sources biogènes comme les forêts, les zones de culture agricoles...

Cette première classification est certes utile, mais pas suffisamment précise. Pour une identification plus fine des différentes catégories, il existe un certain nombre de nomenclatures qui peuvent être utilisées parmi lesquelles :

- La NAF (Nomenclature d'Activité Française) est utilisée par l'INSEE (Institut National de la Statistique et des Études Économiques). Elle permet la codification de l'activité principale exercée par une entreprise ou une association. L'ensemble des statistiques françaises d'activités économiques suivent cette nomenclature.
- La SNAP (Selected Nomenclature for Air Pollution) est utilisée notamment pour les inventaires CORINAIR par l'EEA (European Environment Agency) et constitue un standard européen. Elle est hiérarchisée en 3 niveaux, codés chacun par 2 chiffres. Le premier niveau différencie 11 catégories distinctes d'activité, à la fois pour les installations industrielles, mais aussi pour les transports, les secteurs commerciaux et domestiques (résidentiels).
- La NAPFUE (Nomenclature for Air Pollution of FUEls) est souvent utilisée pour raffiner le classement des activités impliquant une combustion. Elle permet de



raffiner la nomenclature SNAP pour tenir compte en plus du secteur d'activité du type de combustible utilisé (cf. figure 1.10).

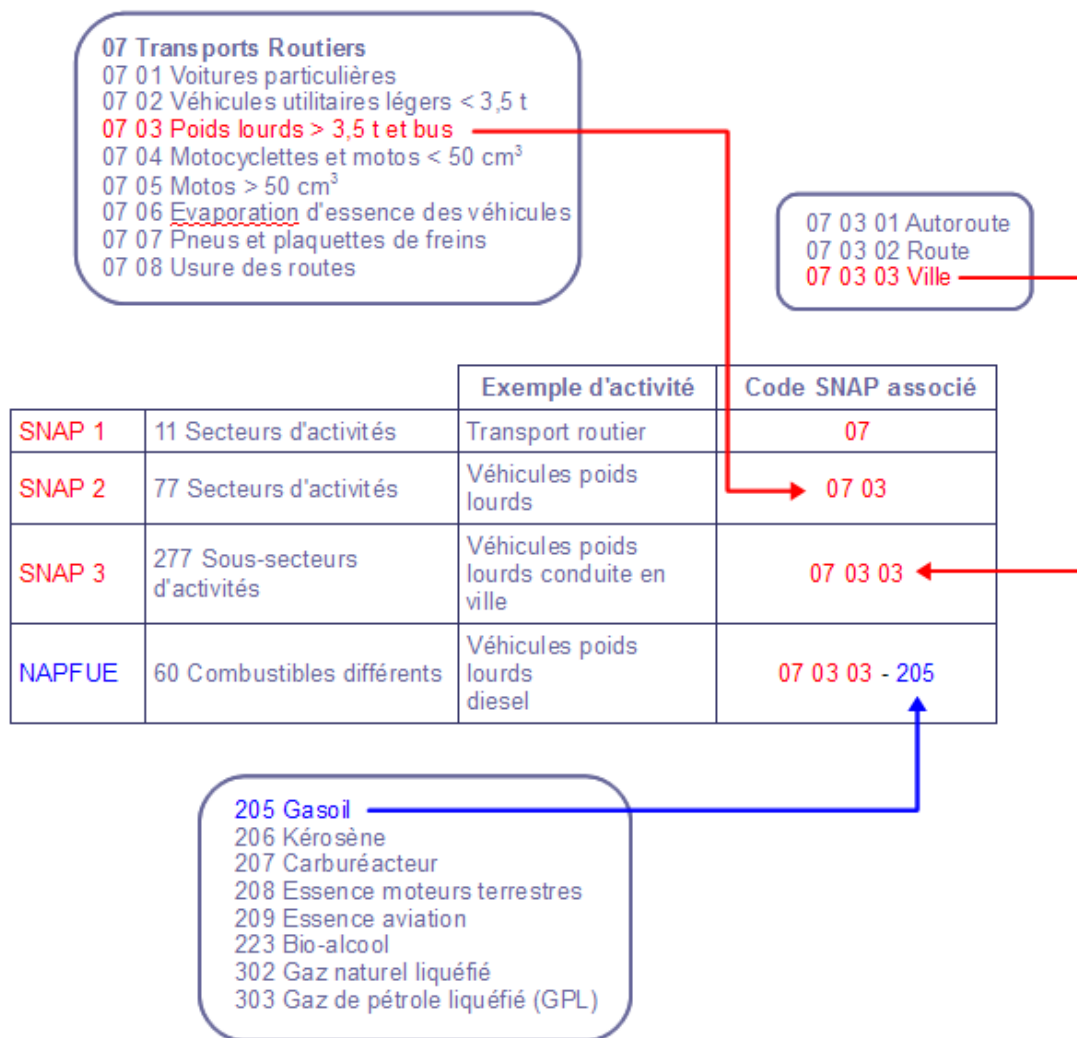


Figure 1.10: Exemple d'utilisation conjointe des codes SNAP et NAPFUE (d'après Ponche, 2005a)

### 3.5 Exemples d'inventaires et cadastres d'émissions

#### 3.5.1 Inventaires aux échelles nationales ou internationales.

A l'échelle européenne, plusieurs projets successifs ont été réalisés ces 30 dernières

années et ont permis l'avancement des connaissances et des méthodologies pour la création d'inventaires.

#### 3.5.1.a Le projet MAP (control of Major Air Pollutants project)

Le projet MAP (*Lübker, 1967*) élaboré par l'OECD (Organisation for Economic Co-operation and Development) a été créé dans le but d'étudier les épisodes de pollutions photochimiques et d'évaluer l'impact de différentes stratégies de contrôle des émissions durant ces épisodes. Les composés chimiques pris en compte sont : le dioxyde de soufre (SO<sub>2</sub>), les oxydes d'azote (NO<sub>x</sub>) et les composés organiques volatils (COV) sources naturelles incluses, pour 9 catégories d'émetteurs de 17 pays de l'ouest de l'Europe. Le projet a débuté en 1983 et l'ensemble des travaux a été publié en 1990.

#### 3.5.1.b L'inventaire français DGXI

L'inventaire DGXI (*Von Hippel 1999*) avait pour but de mettre en place une base de données sur les émissions des principales sources afin de permettre l'étude des différents types de pollution atmosphérique et de mettre en place les mesures politiques pour leur contrôle. Le travail a été réalisé par 4 laboratoires nationaux ou consultants en collaboration avec l'OECD et les états membres du projet MAP et a été publié en 1983.

#### 3.5.1.c Le programme européen CORINE

Une décision du conseil européen (85/338/EEC – JO,1985) en 1985 a établi un programme de travail concernant un projet expérimental visant à coordonner et rassembler de manière consistante l'information sur l'état de l'environnement et des ressources naturelles dans la Communauté Européenne. Ce programme a été appelé CORINE (CO-ordination d'INformations Environnementales). Il inclut un projet (CORINAIR) visant à collecter et organiser l'information sur les émissions dans l'air des composés intervenant initialement dans les phénomènes de pluies acides. Le projet CORINAIR débute en 1986 avec comme objectif de créer un inventaire d'émissions pour le SO<sub>2</sub>, les NO<sub>x</sub> et les COV, ceci pour les 12 états membres de la Communauté Européenne. La création de cet inventaire a permis la mise en place de nomenclatures dont la NAPSEA (Nomenclature

for Air Pollution Socio-Economic Activity) et la SNAP (Selected Nomenclature for Air Pollution), de facteurs d'émissions standards à utiliser par défaut et de procédures logicielles d'aide au calcul des émissions sectorielles aux niveaux régionaux et nationaux. Un premier inventaire CORINAIR pour l'année 1985 a été réalisé en collaboration avec les pays membres, Eurostat, l'OECD et l'UNECE/EMEP (*European Commission 1985*).

En 1991, la décision a été prise de créer une mise à jour de l'inventaire pour l'année 1990 (CORINAIR 1990) avec la coopération de l'EMEP et de l'IPCC-OECD avec pour objectif de préparer les inventaires requis pour la convention sur la pollution transfrontalière (LRTAP) et celle sur le changement climatique (FCCC). Cette nouvelle version de l'inventaire a permis d'apporter beaucoup d'améliorations parmi lesquelles :

- la prise en compte d'un plus grand nombre de composés en plus du SO<sub>2</sub>, des NO<sub>x</sub> et des COVNM que sont le CH<sub>4</sub>, le NH<sub>3</sub>, le CO, le CO<sub>2</sub> et le N<sub>2</sub>O;
- le développement de la nomenclature SNAP90, prenant en compte plus de 260 activités regroupées en 3 niveaux hiérarchiques de sous-secteurs;
- la prise en compte d'un plus grand nombre de sources sous forme de sources ponctuelles;
- l'extension de l'inventaire à 30 pays. Aux 12 pays de l'union européenne (Allemagne, Belgique, Danemark, Espagne, France, Grèce, Irlande, Italie, Luxembourg, Pays-Bas, Portugal et Royaume-Uni), se sont ajoutés 5 pays membres de l'Association Européenne de Libre-Echange (Autriche, Finlande, Norvège, Suède et Suisse), 3 Pays Baltes (Estonie, Lettonie, Lituanie), 9 pays de l'Europe Centrale et de l'Est (Albanie, Bulgarie, Croatie, Hongrie, Pologne, Roumanie, République Tchèque, Slovaquie et Slovénie) ainsi que la Russie.

Les premières données provenant de l'inventaire d'émission CORINAIR ont été disponibles à partir de 1994 (*European topic centre on air emissions, 1997*). Une mise à jour pour l'année 1994 a suivi (*European topic centre on air emissions, 1998*) puis complétée les années suivantes. En 1995, le centre thématique européen sur l'air (European Topic Centre on Air Emissions) a été contracté pour prendre en charge la suite du programme CORINAIR.

#### 3.5.1.d Le programme EMEP.

Le programme EMEP issu de la convention sur la pollution transfrontalière (LRTAP) a permis la mise en place de plusieurs groupes de travail sur les méthodologies de construction d'inventaires d'émissions pour les composés concernés par la convention LRTAP : le dioxyde de soufre (SO<sub>2</sub>), les oxydes d'azotes (NO<sub>x</sub>) et les composés organiques volatils non méthanique (COVNM), le méthane (CH<sub>4</sub>), l'ammoniac (NH<sub>3</sub>), le monoxyde de carbone (CO). Le premier « workshop » de 1991 a décidé la création d'un groupe de travail afin d'évaluer les inventaires d'émissions et les méthodologies de construction et de proposer des solutions pour les améliorer et les harmoniser. L'ensemble de ces travaux a été fait en collaboration avec le projet CORINAIR. Ces travaux ont conduit à la création d'un guide méthodologique commun : « EMEP/CORINAIR Emission Inventory GuideBook » (UNECE / EMEP, 2007) mis à jour périodiquement et dont la dernière édition date de décembre 2007.

#### 3.5.1.e IPCC/OECD/IEA Programme on National Greenhouse Gas Inventories.

En février 1991, une réunion de travail de l'OCDE axée sur les inventaires d'émissions des gaz à effets de serre et basée sur le rapport « Estimation of Greenhouse Gas Emissions and Sinks » a conduit à la création d'un programme de 2 ans pour l'amélioration des inventaires d'émissions à partir de ce rapport de référence. L'IPCC va conduire le programme de travail avec le soutien de l'OCDE et l'IEA avec comme objectifs :

- l'utilisation des meilleures données scientifiques disponibles,
- l'élaboration d'une méthode simple accessible à tous les pays participants,
- la possibilité d'utiliser une approche plus évoluée pour les pays le souhaitant,
- la mise en place de procédures fournissant des résultats de manière consistante et transparente.

Ce programme a conduit à la publication d'un rapport provisoire sur la méthodologie d'inventaires des gaz à effet de serre en 1994 : « Guidelines for National Greenhouse Gas Inventories ». Le guide a été mis plusieurs fois à jour et la dernière version « 2006 IPCC Guidelines for National Greenhouse Gas Inventories » (IPCC, 2006) a été publiée en avril

2007. Il couvre les principaux gaz à effets de serre : le CO<sub>2</sub>, le CH<sub>4</sub>, le N<sub>2</sub>O, les hydrofluorocarbures (HFCs), les perfluorocarbures (PFCs), l'hexafluorure de soufre (SF<sub>6</sub>), le trifluorure d'azote (NF<sub>3</sub>), ainsi que des composés précurseurs de l'ozone (l'ozone étant également un gaz à effet de serre) comme les oxydes d'azote NO<sub>x</sub>, le SO<sub>2</sub>, le NH<sub>3</sub>, le CO et les COV. Le groupe IPCC/OECD/IEA et le groupe CORINAIR ont travaillé de concert afin d'assurer une compatibilité entre les 2 inventaires.

### **3.5.2 Inventaires aux échelles régionales ou inter-régionales**

Pour des applications scientifiques, notamment dans le cas de la modélisation des phénomènes de chimie atmosphérique, les besoins en précision sont importants. Il est indispensable de descendre au pas de temps horaire et d'avoir une résolution spatiale élevée. Des inventaires d'émissions ont été développés à plus petites échelles, répondant ainsi à ces spécifications. Le tableau 1.3 présente les différents cadastres régionaux réalisés au laboratoire entre 1990 et 2000 (*Ponche, 2008*).

#### **3.5.2.a L'inventaire d'émissions du programme REKLIP.**

Le projet « Analyse transfrontalière de la qualité de l'air dans le Rhin Supérieur » réalisé dans le cadre de soutien aux régions frontalières « Interreg II » de l'Union Européenne a permis le développement d'un inventaire d'émissions. Ce cadastre d'émissions avait été établi pour l'année de référence 1990 pour les émissions annuelles et pour quelques périodes horaires en 1994 et 1997. Il prenait en compte de nombreux composés dont notamment des polluants inorganiques (SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, CO, CO<sub>2</sub>, NH<sub>3</sub>, N<sub>2</sub>O, HF, HCl), des composés organiques gazeux (Benzène, COVNM, Méthane), les particules totales et les métaux lourds. La zone d'étude couvre l'ensemble de l'espace naturel du « Rhin Supérieur » et prend en compte l'Alsace du côté français, les régions sud du Palatinat et du Rhin Supérieur en Allemagne, ainsi que les cantons de Bâle-ville et Bâle-campagne côté Suisse. L'inventaire prend en compte à la fois les émissions biogéniques et anthropiques.

### 3.5.2.b L'inventaire d'émissions du programme ESCOMPTE

Le programme ESCOMPTE (Expérience sur Site pour Contraindre les Modèles de Pollution atmosphérique et de transport d'Emissions) a conduit à la création d'un inventaire d'émissions avec une haute résolution spatiale et temporelle et la prise en compte d'un maximum de composés chimiques. La zone d'étude est centrée sur Marseille, Aix en Provence et l'étang de Berre et couvre une surface de 19600 km<sup>2</sup>. La résolution spatiale est de 1 km<sup>2</sup> et l'inventaire est disponible sous deux résolutions temporelles :

- annuelle pour l'année 1999,
- horaire pour 23 jours lors de périodes d'observations intensives des campagnes de mesures des étés 2000 et 2001.

L'inventaire prend en compte 104 espèces chimiques d'intérêt pour la modélisation de la photochimie, mais comptabilise en tout 216 espèces recensées, lui permettant un grand nombre d'applications (*François et al., 2005*).

<i>Programme</i>	<i>Type d'étude</i>	<i>Domaine d'étude Résolution spatiale</i>	<i>Année de référence Périodes étudiées</i>	<i>Composés chimiques des cadastres</i>	<i>Références principales</i>
<b>REKLIP</b> Programme de Climatologie inter-régionale	Flux d'émissions spatialisés, Modélisation photochimique	Vallée du Rhin Supérieur : Suisse - Allemagne - France 1x1 km <sup>2</sup> (35000 km <sup>2</sup> )	Annuel : 1990 Actualisation et périodes horaires: Septembre 1992 Mai 1994	SO <sub>2</sub> , NO <sub>x</sub> , CO, COV, Poussières 35 catégories de COV différentes	Ponche et al., 1993, 2000b
<b>INTERREG I</b> Plan de Protection atmosphérique franco-allemand	Flux d'émissions spatialisés	Commune. Urbaine de Strasbourg - Ortenau 1x1km <sup>2</sup> (≈700 mailles)	Annuel 1990	SO <sub>2</sub> , NO <sub>x</sub> , CO, COV totaux, Poussières	Ponche et al., 1996a
<b>CUMUL</b> Ville de Mulhouse	Flux d'émissions spatialisés	Zone Urbaine de Mulhouse – Inventaire global ≈ 400 km <sup>2</sup>	Annuel 1995	SO <sub>2</sub> , NO <sub>x</sub> , CO, COV totaux	Fayet et al., 1997
<b>Grand Casablanca</b> Programme Franco-Marocain de la qualité de l'air	Cadastres d'émissions Modélisation photochimique	Région de Casablanca - Mohammédia 1x1 km <sup>2</sup> - 2500 km <sup>2</sup>	Annuel 1992 Périodes horaires de 1992 et 1994	SO <sub>2</sub> , NO <sub>x</sub> , CO, COV totaux, 20 catégories de COV	Khatami et al., 1998
<b>PRIMEQUAL -PREDIT</b> Etude de la qualité de l'air de la zone Strasbourg - Kehl	Flux d'émissions spatialisés, Modélisation photochimique	Strasbourg - Kehl 1x1 km <sup>2</sup> - 2500 mailles	Annuels : 1995 Période horaire : Mai 1998 (8 jours)	SO <sub>2</sub> , NO <sub>x</sub> , CO, COV total, CH <sub>4</sub> , 23 catégories de COV	Ponche et al., 1997, 1998
<b>INTERREG II</b> Programme inter-régional sur la vallée du Rhin Supérieur	Flux d'émissions spatialisés, Modélisation photochimique	Vallée du Rhin Supérieur : 1x1 km <sup>2</sup> , 27000 mailles	Annuel : 1997 Actualisation période horaire : Mai 1998	SO <sub>2</sub> , NO <sub>x</sub> , CO, CH <sub>4</sub> , COV total, 23 catégories de COV, particules	Pallarès et al., 1999 ; INTERREG II, 2000
<b>ECODEV-AGRIC</b> Etude d'impact des carburants oxygénés et reformulés	Flux d'émissions spatialisés, Modélisation photochimique, Etude d'impact	Strasbourg-Kehl Vallée du Rhin Supérieur. 1x1 km <sup>2</sup> , 730 et 31100 mailles	Période horaire de Mai 1998	SO <sub>2</sub> , NO <sub>x</sub> , CO, COV total, CH <sub>4</sub> , 23 catégories de COV, 10 composés oxygénés spécifiques	Ponche et al., 1999, 2000a Vinuesa et al. 2003, 2006
<b>PRQA Alsace</b> Plan Régional de la Qualité de l'air	Scénarios d'émissions Modélisation photochimique	Alsace Cadastres INTERREG II	Période horaire de Mai 1998	cf. ci-dessus INTERREG II	Ponche et al. 2005b
<b>ESCOMPTE</b> Expérience sur Site pour Contraindre les Modèles de Pollution atmosphérique et de transport d'Emissions.	Flux d'émissions spatialisés, Modélisation photochimique	Région centrée sur Marseille - Aix en Provence ( zone ESCOMPTE) 1x1 km <sup>2</sup> (19600 km <sup>2</sup> )	Annuel : 1999 Actualisation et périodes horaires: Juin 2000, Juin-Juillet 2001	SO <sub>2</sub> , NO <sub>x</sub> , CO, COV total. et différenciés, CH <sub>4</sub> , Particules (80 composés au total)	François et al., 2005 ; Cros et al., 2003, Ponche 2005c

<i>Programme</i>	<i>Type d'étude</i>	<i>Domaine d'étude Résolution spatiale</i>	<i>Année de référence Périodes étudiées</i>	<i>Composés chimiques des cadastres</i>	<i>Références principales</i>
<b>BOND</b> Biogenic Aerosols and Air Quality in the Mediterranean Area	Flux d'émissions spatialisés, émissions biogènes détaillées	Zone d'étude ESCOMPTE et Région centrée sur Athènes 1x1 km <sup>2</sup> x 1 heure	Périodes horaires des campagnes de mesures BOND : Marseille: juin 2002 Athènes: juin- juillet 2003	SO <sub>2</sub> , NO <sub>x</sub> , CO, COV total et différenciés, CH <sub>4</sub> , Particules (80 composés au total)	Grondin et Ponche, 2004a et 2004b
<b>PRIMEQUAL-2</b> <b>ESCOMPTE</b> Optimisation des cadastres d'émissions	Calcul des incertitudes sur les valeurs d'émissions des cadastres	Zone d'étude : ESCOMPTE et Région Nord Pas de Calais	Cadastres annuels 1992 après actualisation	SO <sub>2</sub> , NO <sub>x</sub> , COV, CO	Werner et Ponche, 2006 2007, (rapports de travaux)
<b>PRIMEQUAL-2</b> <b>ESCOMPTE</b> Optimisation des cadastres d'émissions	Détermination expérimentale de facteurs d'émissions de Black Carbon	Zone d'étude : ESCOMPTE ( zone urbaine uniquement)	2001 et 2005	Particules carbonées et CO	Werner et Ponche, 2005 2007
<b>PRIMEQUAL-2</b> <b>ESCOMPTE</b> Scénarios d'émissions	Elaboration de scénarios d'émissions pour la modélisation. et la gestion de la qualité de l'air	Zone d'étude : ESCOMPTE	1999 actualisation à 2003 scénarios 2010	SO <sub>2</sub> , NO <sub>x</sub> , CO, COV total et différenciés, CH <sub>4</sub> , Particules (80 composés au total)	Samaali et al., 2005 , 2007

Tableau 1.3: Les cadastres régionaux réalisés au laboratoire entre 1990 et 2000 (Ponche, 2008)



## **4 Conclusion**

Dans ce premier chapitre, les différents types de pollution possibles et leurs actions à différentes échelles temporelles et spatiales ont été abordées. Selon leur durée de vie dans l'atmosphère, les différents composés chimiques peuvent être transportés à plus ou moins longue distance de leurs sources d'émissions. Leur impact peut se manifester à l'échelle locale à proximité des sources ou à des distances plus importantes, du fait du transport des polluants, avec des effets à l'échelle continentale voire globale.

La législation française et les différentes conventions internationales mises en place pour réguler et lutter contre les différentes causes de ces pollutions ont également été passées en revue. Certaines de ces réglementations, comme le protocole de Montréal pour la protection de la couche d'ozone, ont déjà fourni des résultats probants.

Enfin, le rôle et l'importance des inventaires d'émissions dans le cadre des recherches scientifiques et de la gestion de l'environnement atmosphérique ont été exposés. La réalisation de tels cadastres est néanmoins une tâche complexe et prend en compte un grand nombre de paramètres qui sont rarement connus avec exactitude. Dans le chapitre suivant, les différentes sources d'incertitudes auxquelles peuvent être sujets les inventaires d'émissions ainsi que les méthodologies développées pour quantifier ces incertitudes seront étudiées.

## 5 **Bibliographie du chapitre 1**

**Académie des Sciences**, Ozone et propriétés oxydantes de l'Atmosphère., oct. **1993**, Rap. n°30, Ed. Lavoisier, Paris.

**Ahlheim K.H.**, Schirmer H, **1989**, Wetter und Klima, Publié par Meyers Lexikonverlag, (304 pages)

**CCSP** (Climate Change Science Program), Strategic Plan for the Climate Change Science Program , July **2003**,(accédé le 28.06.08)

<http://www.climatechange.gov/Library/stratplan2003/final/default.htm>

**Cros B.**, Durand P., Cachier H., Drobinsky Ph. et al., The ESCOMPTE program: an overview, **2004**, Atmospheric Research, 69, 241-279.

**Décret n°98-360** du 6 mai 1998, Décret relatif à la surveillance de la qualité de l'air et de ses effets sur la santé et sur l'environnement, aux objectifs de qualité de l'air, aux seuils d'alerte et aux valeurs limites: objectifs de qualité, seuils d'alerte, seuils de recommandation et d'information et valeurs limites, version consolidée au 19 novembre **2003** - *version JO initiale*

**European Commission**, CORINAIR: Inventaire des émissions de dioxyde de soufre, d'oxydes d'azote et de composés organiques volatils dans la Communauté Européenne en 1985. **1985**, European Commission, Luxembourg, Brussels.

**European topic centre on air emissions**, CORINAIR 90 Comprehensive summary report, **1997**, European Environmental Agency.

**European topic centre on air emissions**, CORINAIR 1994 Inventory, **1998**, European Environmental Agency.

**Fayet S.**, Ponche J.-L. et Mirabel Ph. "L'inventaire des émissions globales de polluants atmosphériques pour l'agglomération de Mulhouse pour 1995". **1995**, Rapport final de travail CE/CUM n° 1. Décembre 1997 (28 p). Edité par le LPCA-CGS. Document disponible auprès de la Mission Interservice Environnement de la Ville de Mulhouse (Haut-Rhin)

**Forster P.**, V. Ramaswamy, P. Artaxo, T. Berntsen, et al., Changes in Atmospheric Constituents and in Radiative Forcing. *In: Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, **2007**, Cambridge University, Press, Cambridge.

**François S.**, Grondin E., Fayet S., Ponche J.-L., The establishment of the atmospheric emission inventories of the ESCOMPTE program, **2005**, Atmospheric Research, 74 p, 5-35.

**Grondin E.**, Ponche J.-L. "Biogenic emissions inventories for Marseille (2002) and Athens (2003) area". Communication orale. Workshop (EC) Air Pollution and Particulates in Europe. The BOND project. National Centre of Scientific Research Demokritos (NCSR) 22-24 November, 2004, Athens Greece **2004a**.

**Grondin E.**, Ponche J.-L. "The BOND biogenic emission inventory for Marseille and Athens area : results and comparison ". BOND report for the EEC, November **2004b**, 42 p

**IPCC**, 2006 IPCC Guidelines for National Greenhouse Gas Inventories, Prepared by the National Greenhouse Gas Inventories Programme, **2006**, Eggleston H.S., Buendia L., Miwa K., Ngara T. and Tanabe K. (eds). Published: IGES, Japan.

**Khatami A.**, Ponche J.-L., Jabry E., Mirabel Ph. The Air quality management of the region of Great Casablanca (Morocco). **1998**, Part 1: Atmospheric emission inventory for the year 1992. The Science of the Total Environment; 209, 201-216.

**Lübker B.**, De Tilly S., The OECD-MAP emission inventory for SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub> and VOC in Western Europe. Atmospheric Environment, **1967**, 23 (1), 3-15.

**Manahan**, Stanley E., The atmosphere and atmospheric chemistry, **2000**, *Environmental Chemistry* Boca Raton: CRC Press LLC.

**NASA**, Atmospheric Structure and Pollution Sources, (accédé le 28.06.08) <http://oceanworld.tamu.edu/resources/oceanography-book/atmosphere.html>

**Pallares C.**, Ponche J.-L., Fayet S. et Mirabel Ph., "L'inventaire des émissions horaires de la région de Strasbourg pour la période du 8 au 15 mai 1998". Rapport d'étude PRIMEQUAL / Association pour la Surveillance de la Pollution Atmosphérique en Alsace (ASPA) n° 3. Disponible auprès de l'ASPA, 5 rue de Madrid, F-67300 Schiltigheim ou de l'ADEME – Paris (programme PRIMEQUAL), Janvier **1999**.

**Ponche J.-L.**, Schneider C., Mirabel Ph., Réalisation du cadastre des émissions atmosphériques pour l'Alsace dans le cadre du projet climatologique régional REKLIP. **1993**, Publications de l'Association Internationale de Climatologie, 6, 659-671.

**Ponche J.-L.**, Ghannouchi R., Oudin V., Mirabel Ph., L'inventaire des émissions atmosphériques franco-allemand pour la Communauté Urbaine de Strasbourg et l'arrondissement de l'Ortenau (Kehl – Offenburg). **1995**, Pollution Atmosphérique ; n°148. Octobre - Décembre.

**Ponche J.-L., Mirabel Ph., Oudin V.,** L'inventaire des émissions atmosphériques pour la région transfrontalière de Strasbourg - Kehl – Offenbourg. **1996a**, Publications de l'Association Internationale de Climatologie ; 9, 375-382.

**Ponche J.-L., Khatami A., Jabry E., Mirabel Ph.,** Répartition spatiale des émissions atmosphériques dans la région du Grand Casablanca (1992). **1996b**, Publications de l'Association Internationale de Climatologie ;9, 349-357.

**Ponche J.-L., Gallardo J. C. et Mirabel Ph.,** "Inventaires d'émissions spatialisés et modélisation mésoéchelle de la qualité de l'air : application à la région de Strasbourg (F)". Communication orale : 10ème Colloque International de Climatologie de l'ACLIQ (Association de Climatologie du Québec)/AIC (Association Internationale de Climatologie); 9-12 Sept. **1997**, Québec-Canada.

**Ponche J.-L. , Zaïdi N., Fayet S., Mirabel Ph.,** L'inventaire spatialisé des émissions atmosphériques pour la région de Strasbourg, **1998**, (Communauté Urbaine de Strasbourg étendue) pour 1995. Pollution Atmosphérique ; n° 159 , Juillet-Septembre 1998.

**Ponche J.-L., Vinuesa J.-F., Mirabel Ph.,** Modélisation méso-échelle des impacts des carburants reformulés et oxygénés sur la qualité de l'air de la région de Strasbourg. **1999**, Publications de l'Association Internationale de Climatologie ;12, 477-486.

**Ponche J.-L., Vinuesa J.-F., Mirabel Ph.,** Modélisation des impacts de carburants automobiles reformulés et oxygénés sur les polluants primaires et secondaires à l'échelle régionale. **2000a**, Publications de l'Association Internationale de Climatologie ; 13,517-527.

**Ponche J.-L., Schneider Ch., Mirabel Ph.,** Methodology and results of the REKLIP atmospheric emission inventory of the upper Rhine valley transborder region., **2000b**, Water, Soil and Air Pollution ;124, 61-93.

**Ponche J.-L.,** The spatialized emission inventories : a tool for the Air Quality Management - Les inventaires spatialisés d'émissions : un outil pour la gestion de la qualité de l'air., Février **2002**, French IGPB-WCRP News Letters - La lettre du PIGB-PMRC (PIGB : Programme International Géosphère Biosphère) - PMRC : Programme Mondial de Recherche sur le Climat); n°13, 25-36, I-V.

**Ponche J.-L.,** Communication personnelle / Cours de MASTER Ingénierie de l'Environnement de l'Université Louis Pasteur de Strasbourg sur les inventaires spatialisés d'émissions pour la gestion de l'environnement atmosphérique, **2005a**.

**Ponche J.-L., Vinuesa J.-F.,** Emission scenarios for air quality management and applications at local and regional scales including the effects of the future European emission regulation (2015) for the upper Rhine valley. **2005b**, Atmospheric Chemistry

and Physics, 5, 999-1014.

**Ponche J.-L., Samaali M., Francois S.**, "Updating of the emission inventory at regional scale: Application to the ESCOMPTE study Area". Oral communication : 6th ESCOMPTE Workshop, Marseille (F). February 2-4, **2005c**

**Ponche J.-L.**, Synthèse des études sur les cadastres d'émissions effectuées. **2008**, Communication personnelle.

**Simon V., Dumergues L., Ponche J.-L., Torres L.** The biogenic volatile organic compounds emission inventory in France: Application to plant ecosystems in the Berre-Marseille area (France). **2006**, Science of the Total Environment, 372, Issue 1 (15),164-182.

**Samaali M., François S., Vinuesa J.-F., Ponche J.-L.**, A new tool for processing atmospheric emission inventories: technical aspects and application to the ESCOMPTE study area, **2007**, Environmental Modeling and Software, 22, Issue 12, 1765-1774.

**UNECE / EMEP Task force, EMEP / CORINAIR Emission Inventory Guide Book – 2007, 2007**, European Environmental Agency.

**UNECE**, CLRTAP Convention on Longue Range Transboundary Air Pollution, [http://www.unece.org/env/lrtap/status/lrtap\\_s.htm](http://www.unece.org/env/lrtap/status/lrtap_s.htm) (accédé le 26.07.08)

**UNEP/GRID-Arendal**, Greenhouse effect, *UNEP/GRID-Arendal Maps and Graphics Library*, <http://maps.grida.no/go/graphic/greenhouse-effect> (Accédé le 9 aout 2008).

**UNFCCC**, United Nations Framework Convention on Climate Change, <http://unfccc.int/> (accédé le 26.07.08).

**Vinuesa J.-F., Mirabel Ph., Ponche J.-L.**, Air quality effects of using reformulated and oxygenated gasoline fuels blends: application to the Strasbourg Area. **2003**, Atmospheric Environment, 37, 1757-1774.

**Vinuesa J.-F., Mirabel Ph., Ponche J.-L.**, Impact of using reformulated and oxygenated fuel blends on the regional air quality of the upper Rhine valley. **2006**, J.- Atmospheric Chemistry and Physics, 6, 2161-2176.

**Von Hippel D.F., Vallack H.W.**, Manual for Preparation of Emissions Inventories for Use in Modeling of Transboundary Air Pollution, **1999**, Prepared as a Part of UNDP/UN DESA Subregional Project RAS/92/461: "Energy, Coal Combustion and Atmospheric Pollution in Northern Asia". SEI, Boston.

**Werner S., Ponche J.-L.**, "Determination of uncertainties in emission inventories: application to the emission inventory ESCOMPTE". Oral communication : 6th

ESCOMPTE Workshop, Marseille (F). February 2-4, **2005**.

**Werner S.**, Ponche J.-L., Determination of uncertainties in emission inventories: application to the emission inventory ESCOMPTE. In Proceedings of the 6th ESCOMPTE Workshop, **2005**, Marseille.

## **Chapitre 2 : Incertitudes et Inventaires d'émissions**

Ce chapitre s'intéresse tout particulièrement aux incertitudes dans les inventaires d'émissions. Dans un premier temps, il est important de définir le terme « incertitude », quelles sont les sources d'incertitudes dans un inventaire d'émissions et comment les évaluer.

Deux approches sont ensuite présentées permettant d'agréger les incertitudes individuelles des différentes sources d'un inventaire pour aboutir à l'incertitude globale d'un composé. Ces méthodes sont mises en pratique sur 2 inventaires d'émissions différents, afin d'en évaluer les incertitudes.

## **1 Incertitudes dans les inventaires d'émissions.**

Un inventaire d'émissions est issu d'une compilation de nombreux paramètres d'entrée. Il est actuellement impossible d'effectuer les mesures des émissions de toutes les sources. En pratique, les émissions atmosphériques sont estimées à partir de mesures effectuées sur certaines sources sélectionnées ou d'échantillons représentatifs des principales sources d'émissions.

Quelles que soient les applications de ces inventaires, la détermination des incertitudes sur les valeurs d'émissions a une grande importance. Dans le cas d'applications scientifiques, quantifier l'incertitude constitue une part importante dans l'évaluation et l'interprétation des résultats d'une étude. Pour des raisons aussi bien scientifiques que politiques, les inventaires doivent répondre à des critères de qualité et de comparabilité (cohérence, traçabilité des valeurs, ...).

### **1.1 Définition de l'incertitude.**

Bien que le terme « incertitude » soit fréquemment utilisé, différents sens lui sont donnés par les utilisateurs d'inventaires d'émissions. L'IPCC (*IPCC, 2000*) donne à la fois une définition statistique et une définition pour les inventaires.

**Définition statistique :** Une incertitude est un paramètre associé à un résultat de mesure qui caractérise la dispersion des valeurs qui pourrait être raisonnablement attribuée à la quantité mesurée (la variance d'un échantillon ou le coefficient de variation, par exemple).

**Définition pour les inventaires :** Une incertitude est un terme général et imprécis qui désigne l'absence de certitude dans les composants d'un inventaire résultant de tout facteur causal tel que des sources et puits non identifiés, un manque de transparence ...

D'après la thèse de van Aardenne (*van Aardenne, 2002*), le concept d'incertitude est défini à la fois comme un manque de connaissances sur l'exactitude et un manque de connaissances sur la fiabilité.

Il définit l'incertitude sur la fiabilité comme le manque de connaissances sur la



correspondance entre les critères de qualité de l'utilisateur et l'inventaire des émissions. La fiabilité représente la confiance qui peut être accordée à un inventaire d'émissions. Il n'y a pas d'incertitude sur la fiabilité si l'inventaire est exact (pas d'incertitude sur l'exactitude). L'exactitude d'un inventaire d'émissions permet de déterminer jusqu'à quel point cet inventaire est une représentation exacte des émissions qui se produisent en réalité. Les émissions de polluants des sources anthropiques sont de valeurs très différentes (centrale thermique, industrie, trafic routier, élevage). De plus, ces émissions sont en général variables à la fois dans le temps et dans l'espace.

Étant donné qu'il est pratiquement impossible de mesurer individuellement les émissions issues de chaque source, les inventaires d'émissions sont souvent construits sur la base d'hypothèses, d'interpolations, ou d'extrapolations de jeux de données limités. L'inventaire des émissions résultant est dès lors, de ce point de vue, forcément inexact.

Cette inexactitude peut être définie par :

$$E_{réel} = E_{inventaire} + \sum_{i=1}^N U \epsilon_i \quad (2.1)$$

L'ensemble des inexactitudes  $U \epsilon_i$  est le résultat de  $N$  sources d'inexactitude. Pour déterminer  $U \epsilon_i$ , il faudrait connaître  $E$  réel qui ne peut être connu que pour un système fermé.

L'incertitude sur l'exactitude peut être définie comme le manque de connaissance des sources et de l'importance des inexactitudes.

La fiabilité d'un inventaire d'émissions et l'importance de l'exactitude dépendent de l'objectif. Pour comprendre les procédés chimiques et physiques et le comportement de polluants dans l'atmosphère, les études de modélisation atmosphérique ont besoin de valeurs d'émissions les plus précises possibles. Dans le cas d'applications scientifiques, la fiabilité est directement associée à la précision et l'exactitude de l'inventaire.

La fiabilité d'un inventaire d'émissions est lié à des critères de qualité. Ces critères de qualité peuvent inclure l'exactitude, mais ce n'est pas toujours le cas. Le guide des bonnes pratiques de l'IPCC (*IPCC, 2000*) définit 5 critères de qualité :

- **transparence** : La documentation doit permettre la reconstruction de l'inventaire d'émissions (traçabilité).
- **consistance** : Les mêmes méthodologies et des jeux de données consistants doivent

être utilisés pour le calcul des émissions.

- **comparabilité** : Il doit être possible de comparer des inventaires d'émissions de différentes régions.
- **exactitude** : Les estimations d'émissions doivent toujours sur-estimer la vraie valeur de l'émission et l'incertitude doit être réduite au maximum.
- **exhaustivité** : l'inventaire d'émissions doit inclure toutes les sources et puits des composés étudiés (dans le cas de l'IPCC, il s'agit des gaz à effet de serre).

## 1.2 Les sources d'incertitudes.

Dans un inventaire d'émissions destiné à un usage scientifique, l'incertitude est directement liée à l'exactitude. L'incertitude sur l'exactitude peut-être séparée en deux contributions :

- l'inexactitude structurelle : liée à la structure de l'inventaire
- l'inexactitude sur les données d'entrée (activités et facteurs d'émission)(*van Aardenne, 2002*).

### 1.2.1 L'inexactitude structurelle.

L'incertitude sur l'exactitude structurelle évalue jusqu'à quel point la structure de l'inventaire d'émissions permet un calcul exact des émissions réelles. Il existe trois causes d'inexactitude structurelle :

- les inexactitudes dues aux agrégations: les émissions sont calculées sur une échelle spatiale, une échelle temporelle, et pour des catégories de sources qui sont différentes de l'échelle à laquelle les émissions ont lieu en réalité. Souvent, il manque des informations sur les procédés d'émissions ou la variabilité des émissions réelles. Dans ce cas, l'agrégation des données disponibles (et limitées) introduit de l'inexactitude.
- l'incomplétude : un inventaire d'émissions peut être inexact par l'oubli de sources d'émissions. Ce genre d'erreur peut provenir d'une compréhension incomplète des

procédés d'émissions.

- la formulation mathématique inexacte et erreurs de calcul : à un certain niveau d'agrégation, des erreurs de calcul peuvent être source d'inexactitude structurelle. La relation mathématique utilisée est généralement inexacte (approchée). Par exemple, en considérant que la relation entre l'émission et l'activité est linéaire pour le calcul d'un facteur d'émission alors que dans la plupart des cas elle ne l'est pas.

### **1.2.2 L'inexactitude sur les valeurs d'entrée.**

L'inexactitude sur les valeurs d'entrée est due d'une part au manque de connaissances sur les variables et paramètres utilisés pour calculer les émissions. Les équations utilisées pour calculer les émissions font en général appel à des facteurs d'émissions et des données d'activités. D'autre part, l'incertitude sur les valeurs d'entrée peut-être due à des hypothèses de simplification dans le cas d'un grand nombre de sources similaires. Ce type d'incertitude peut se décomposer en quatre types :

- les erreurs d'extrapolation : en l'absence de facteurs d'émissions, ou de données spécifiques aux sources, les valeurs sont extrapolées à partir des données disponibles. Les données ainsi obtenues sont alors inexactes:
- les erreurs de mesure : des erreurs de mesure sur les données disponibles peuvent conduire à des facteurs d'émissions ou des activités inexactes.
- le développement / l'évolution inconnue : lors de la construction de scénarios d'émissions pour analyser des tendances futures possibles, il faut des informations sur les facteurs d'émissions et les données d'activités futures. Étant donné le caractère pronostic des développements futurs, ce genre de scénarios correspond à des approches avec différents facteurs de probabilité et donc d'erreurs au sens des incertitudes.
- les erreurs de copie : lorsque des erreurs sont faites dans les reports de valeurs (fautes de frappe), les valeurs d'entrée utilisées pour le calcul des facteurs d'émissions deviennent inexactes.

Lors de l'utilisation d'un tel classement des sources d'incertitudes, il faut être conscient

qu'il existe des relations entre les différentes catégories d'inexactitudes. De plus, la distinction entre les différentes sources d'incertitude n'est pas toujours très stricte. Par exemple, si pour un composé donné, la variabilité de ses émissions dans le temps et dans l'espace n'est pas connue avec précision, l'inventaire peut comporter à la fois

- une incertitude structurelle : du fait de l'impossibilité de calculer les émissions à l'échelle où elles ont réellement lieu.
- une incertitude sur les valeurs d'entrées : le manque d'informations sur la variabilité des émissions amène à l'utilisation de facteurs d'émissions et ou de données d'activités extrapolés.

### **1.3 Détermination de l'incertitude.**

L'évaluation de l'incertitude sur la fiabilité d'un inventaire d'émissions dépend des critères de qualité définis par l'utilisateur, qui sont eux-mêmes dépendants de l'usage spécifique de l'inventaire. La fiabilité et/ou la concordance de l'inventaire avec les critères de qualité peuvent être évaluées par des pairs. Le résultat est un jugement qui définit si l'inventaire répond ou non aux critères et le cas échéant, les raisons pour lesquelles ces critères ne sont pas respectés.

Pour des inventaires d'émissions à but scientifique, l'exactitude de l'inventaire est un critère primordial. La détermination de l'incertitude sur l'exactitude peut-être évaluée de manière qualitative ou quantitative pour les différentes sources (structurelles et données d'entrée).

Deux types d'évaluation peuvent être distingués :

- l'évaluation interne : la méthodologie et les informations utilisées pour construire l'inventaire servent de base pour l'identification et l'évaluation qualitative et quantitative des inexactitudes.
- l'évaluation externe : des informations issues d'autres études sont utilisées pour identifier, qualifier et quantifier l'inexactitude sur les émissions estimées.

### **1.3.1 Evaluation interne.**

#### **1.3.1.a Incertitudes sur les données d'entrée.**

Plusieurs approches d'évaluation interne peuvent être utilisées pour qualifier l'incertitude d'un inventaire d'émissions, avec différents niveaux de raffinement. L'approche la plus simple consiste à discuter pour chaque source de biais ou d'imprécisions connus ou suspectés et de collecter un maximum de renseignements sur les erreurs commises : l'ordre de grandeur, la direction (sous/sur-estimation) des valeurs d'émissions, voire des données statistiques si elles sont disponibles (écart-type, intervalle de confiance). Une évaluation qualitative de l'incertitude peut-être présentée de façon narrative, ou mieux sous la forme d'un tableau (EPA, 1996).

Afin de récolter des informations, il est aussi possible de faire appel au jugement d'experts (IPCC, 2000 ; EPA, 1996). Cette évaluation consiste à demander à un expert de donner une évaluation qualitative ou quantitative sur l'inexactitude d'un inventaire d'émissions, sur sa structure, ou sur les données d'entrée qui ont été utilisées. Cette approche est différente des autres méthodes, car l'estimation est le résultat d'un raisonnement par un expert plutôt que l'application d'une méthode systématique comme la propagation d'erreurs ou l'analyse d'importance. Elle est souvent utilisée quand les autres méthodes ne peuvent l'être, ou n'ont pas été utilisées par manque d'information.

Une autre approche, qui peut être qualifiée de semi-quantitative, est la classification de la qualité des données par attribution de scores (data quality rating) Des scores numériques ou alphabétiques sont assignés aux facteurs d'émissions, et aux données d'activités pour exprimer l'inexactitude de manière qualitative (faible/élevée). Plusieurs classements par qualité de données existent. Parmi eux:

- (1) la méthode « DARS » : (Data Attribute Rating System). Elle désagrège les émissions en facteurs d'émissions et données d'activités. A chacun des deux composants, est affecté un score numérique compris entre 1 et 10 (la valeur 10 correspondant au maximum de précision). Le score dépend de 4 attributs : la technique de mesure utilisée, la spécificité de la source, la concordance temporelle et la concordance spatiale. Le fait de définir quatre attributs permet une discussion systématique des sources d'inexactitude dans un inventaire d'émissions.

L'utilisation de scores relatifs pour les facteurs d'émissions et les données d'activités permet de distinguer les constituants relativement exacts des constituants inexacts. La méthode DARS ne produit que des scores relatifs et non pas une évaluation exacte de l'incertitude; De plus, l'affectation des scores est subjective. Cette méthode doit être considérée comme un outil qualitatif pour l'évaluation des incertitudes. Davantage d'informations sur cette méthode figurent dans le document de l'EIIP « Recommended approach to using the data attribute system » (EPA, 1996a).

- (2) La méthode « AP-42 emission factor rating system » (EPA, 1996) : L'AP-42 est la référence principale aux États-Unis pour les facteurs d'émissions. A chaque facteur d'émission de l'AP-42, est donné un score allant de A à E (A étant le meilleur score). Ce score est une indication générale sur la fiabilité et la robustesse du facteur d'émission. Le score est assigné par le jugement d'un expert. Ce jugement est basé sur la fiabilité estimée des méthodes utilisées pour obtenir le facteur et sur la représentativité des données utilisées. Un score entre A et D est donné sur la mesure des émissions avec A correspondant au meilleur score (méthodologie fiable) et D au plus mauvais (méthodologie contestable). Ce score est ensuite combiné avec une évaluation de la représentativité du facteur d'émissions. Le résultat est un score variant entre A et E. Un score de A correspond à un facteur d'émissions basé sur des mesures d'émissions utilisant une méthodologie classée A ou B et considérée comme représentative de la source spécifique de la catégorie. Le score le plus faible (E) signifie que le facteur d'émission a été obtenu avec des méthodologies classées C, D ou E et qu'il n'est probablement pas représentatif pour la catégorie de sources spécifiques considérées.

Une approche complémentaire à l'attribution d'une incertitude à chaque donnée d'entrée consiste à contrôler et ré-évaluer les équations utilisées. Cette approche est utilisée pour évaluer l'incertitude dans les inventaires d'émissions due aux fautes de frappe ou autres erreurs humaines. Elle permet de diminuer l'incertitude sur l'exactitude par la correction des erreurs trouvées. Les incertitudes associées aux expressions mathématiques sont difficiles à déterminer, car la compréhension des procédés intervenant dans la génération des émissions est souvent incomplète.

### 1.3.1.b Combinaison des incertitudes sur les données d'entrée

Une fois que l'évaluation de l'incertitude au niveau des données d'entrée a été effectuée, il est intéressant d'avoir une estimation de l'incertitude sur l'ensemble de l'inventaire. Pour atteindre cet objectif, toutes les incertitudes sur les données d'entrée doivent être combinées entre elles. Plusieurs méthodes existent pour cela. Une première approche, la plus simple, utilise l'équation de propagation des erreurs. Cette méthode permet la combinaison des incertitudes en se basant sur deux équations qui seront explicitées par la suite.

Une deuxième approche consiste à exprimer par une Fonction de Densité de Probabilité (FDP) l'incertitude d'un paramètre de l'inventaire d'émissions. Les paramètres incertains sont ensuite combinés par l'utilisation de simulations numériques du type Monte-Carlo. La fonction densité de probabilité est la meilleure représentation connue disponible sur l'intervalle de valeurs (variance) d'un paramètre incertain. Cette approche ne nécessite pas de faire des hypothèses de départ sur la normalité de la variance ou l'indépendance (non corrélation) des facteurs d'émissions.

La méthode idéale serait de dériver la FDP d'un large échantillon de facteurs d'émissions ou de données d'activités. En pratique, la taille des échantillons est souvent trop petite pour obtenir une fonction de distribution. Dans ces conditions, il devient généralement difficile d'associer une FDP à un paramètre incertain. Une possibilité est d'utiliser la méthodologie proposée par l'Organisation Néerlandaise pour la Recherche Scientifique Appliquée « TNO » (*van Gijlswijk, 2004*). Cette méthode définit un heuristique, décrit dans le tableau 2.1, qui permet de choisir une FDP en fonction des informations disponibles.

La Méthode Monte-Carlo (*IPCC, 2000*) sélectionne des valeurs aléatoires à partir de la fonction de densité de probabilité utilisée pour propager l'incertitude à tout l'inventaire d'émissions. Plusieurs méthodes d'échantillonnage peuvent être utilisées : l'échantillonnage aléatoire, ou le « latin hypercube sampling ».

<i>Distribution</i>	<i>Critères d'utilisation</i>	<i>Représentation</i>
uniforme	<ul style="list-style-type: none"> <li>– les valeurs minimale et maximale sont fixées.</li> <li>– manque de connaissances pour choisir les valeurs les plus probables sur un intervalle.</li> <li>– toutes les valeurs dans l'intervalle ont la même probabilité.</li> </ul>	<p><b>fdp uniforme</b></p>
triangulaire	<ul style="list-style-type: none"> <li>– les valeurs minimale et maximale sont fixées.</li> <li>– la valeur la plus probable de l'intervalle est connue.</li> <li>– pas d'autres informations sur la distribution disponibles.</li> </ul>	<p><b>fdp trinagulaire</b></p>
normale	<ul style="list-style-type: none"> <li>– un certain nombre de valeurs est préféré.</li> <li>– la valeur incertaine se distribue de la même manière en-dessous, et au-dessus de la moyenne.</li> <li>– la valeur incertaine est plus souvent dans le voisinage de la moyenne qu'éloignée de celle-ci.</li> <li>– quantité physique positive et déviation standard inférieure à 30%</li> </ul>	<p><b>fdp normale</b></p>
log-normale	<ul style="list-style-type: none"> <li>– la valeur ne peut être négative.</li> <li>– distribution biaisée positivement.</li> <li>– l'incertitude peut être exprimée comme un ordre de grandeur multiplicatif (facteur 2).</li> <li>– probabilité d'obtenir des valeurs extrêmes.</li> <li>– coefficient de variation supérieur à 30%.</li> </ul>	<p><b>fdp log-normale</b></p>
personnalisée	<ul style="list-style-type: none"> <li>– bonnes informations ou bons arguments pour choisir une distribution différente.</li> </ul>	

Tableau 2.1: Heuristique d'aide au choix d'une fonction de distribution

### 1.3.1.c L'analyse de sensibilité.

L'analyse de sensibilité permet le calcul de l'importance relative des incertitudes de



chaque paramètre pour l'ensemble de l'inventaire d'émissions. L'analyse d'importance ou de sensibilité est souvent appliquée après une méthode de simulation numérique (*Rypdal, 2001*). Elle permet de relier l'incertitude globale de l'inventaire d'émissions aux incertitudes des composants individuels de l'inventaire.

La détermination de l'importance d'une source sur l'incertitude peut être évaluée en calculant le coefficient de corrélation entre les valeurs numériques simulées de la distribution des données de sortie de l'inventaire et les valeurs numériques simulées pour chaque distribution de données d'entrée. Plus le coefficient de corrélation est élevé, plus la relation entre l'incertitude des données d'entrée et des données de sortie sera élevée, indiquant que les données d'entrée devront être considérées comme « sensibles. » Cette méthode est appliquée après l'utilisation d'une méthode de type « hypercube latin sampling » ou Monte-Carlo qui va générer des échantillons pour les entrées et les sorties.

### **1.3.2 Évaluation externe.**

Les différences entre un inventaire d'émissions et des données ou informations indépendantes sont utilisées pour identifier et quantifier les incertitudes. Pour déterminer l'incertitude ( $U_{\varepsilon_i}$ ) sur un inventaire d'émissions ( $E_{\text{inventaire}}$ ), il faut connaître les émissions réelles. Dans le cas d'une évaluation externe, l'émission externe estimée ( $E_{\text{externe}}$ ) est traitée comme une estimation indépendante de l'émission réelle et l'incertitude de l'inventaire d'émissions est estimée comme la différence entre  $E_{\text{externe}}$  et  $E_{\text{inventaire}}$ . Étant donné que l'émission réelle est inconnue, la qualité de l'évaluation externe dépend de la confiance dans  $E_{\text{externe}}$  pour l'estimation des émissions réelles.

L'inventaire d'émissions peut-être comparé à différentes évaluations externes des émissions, la première approche consiste à le comparer à un autre inventaire d'émissions (*Amstel, 1999*). Cette approche peut être utilisée pour avoir une indication sur l'incertitude des deux inventaires. Pour cette approche, les deux inventaires se doivent d'être indépendants. Le principal inconvénient est qu'en général les sources et les valeurs des incertitudes ne sont pas connues pour les deux inventaires. La méthode ne permet pas la détermination de l'incertitude d'un inventaire d'émissions, mais aide à pointer les parties qui montrent de grandes différences et qui de ce fait sont sujettes à caution.

Une deuxième façon de procéder consiste à comparer les émissions avec des mesures directes ou indirectes (*Janssen, 1999*). La précision d'un inventaire d'émissions peut seulement être évaluée par des mesures précises et en continu d'une source. La différence entre la mesure et l'émission estimée permet d'évaluer la précision d'un facteur d'émission ou d'une activité spécifique. Les émissions variant en fonction des sources, dans l'espace et dans le temps, des mesures en continu sont impraticables et/ou très onéreuses.

Il est aussi possible de comparer l'inventaire avec des prévisions obtenues par modélisation (*Iversen, 1993*). Dans ce cas, l'inventaire d'émissions est utilisé comme base de données d'entrée dans un modèle de dispersion atmosphérique qui va calculer les concentrations atmosphériques des polluants. Si des mesures précises sur les concentrations atmosphériques sont disponibles et si le modèle est considéré comme précis, alors les différences entre les résultats du modèle et les observations peuvent être utilisées comme indicateurs sur les incertitudes de l'inventaire d'émissions.

Enfin, une dernière approche consiste à comparer les émissions issues de l'inventaire avec des résultats d'étude de modélisation inverse (*Vermeulen, 1999*). Dans ce cas de figure, les concentrations atmosphériques sont utilisées comme entrée pour un modèle de dispersion atmosphérique inverse afin de calculer les émissions nécessaires pour reproduire les concentrations observées. La comparaison entre les émissions estimées par le modèle « inverse » et celle de l'inventaire d'émissions peut alors être utilisée comme un indicateur de l'exactitude de cet inventaire. Par contre, la bonne reconstruction des émissions est limitée par la précision du modèle de dispersion et la représentativité des mesures atmosphériques utilisées.

## **2 Détermination des incertitudes dans les inventaires d'émissions à l'échelle régionale.**

L'objectif est d'établir une méthodologie pour l'estimation des incertitudes par grande catégorie de sources et par composé chimique ou famille de composés chimiques puis d'appliquer cette méthodologie pour le calcul des incertitudes pour des inventaires à méso-échelle.

Cette méthodologie a été appliquée aux inventaires régionaux spatialisés ESCOMPTE 1999 et à ceux de la région Nord-Pas-De-Calais afin d'estimer les incertitudes au niveau SNAP 1, prioritairement pour les polluants suivants : le dioxyde de soufre (SO<sub>2</sub>), les oxydes d'azote (NO<sub>x</sub>), le méthane (CH<sub>4</sub>), les composés organiques volatils non méthaniques (COVNM), le monoxyde de carbone (CO) et le dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>).

Dans cette étude, des méthodes quantitatives ont été utilisées. L'estimation des émissions et leurs inexactitudes ont été traitées d'un point de vue probabiliste. L'inexactitude est vue comme une variation autour d'une valeur moyenne. Deux approches sont possibles pour la combinaison de ces incertitudes : les équations de propagation des erreurs ou la méthode Monte-Carlo (*IPPC 2000*). Ces deux méthodes sont décrites plus en détail ci-après. Dans ce travail, le terme d'incertitude décrit à la fois l'erreur systématique et la variabilité. Ces deux incertitudes ont été modélisées ensemble sous la forme d'une seule fonction de distribution de probabilité. Cette approche revient à traiter l'erreur systématique et l'erreur aléatoire de la même façon.

### **2.1 La propagation des erreurs.**

La première étape consiste à définir l'intervalle des valeurs possibles pour chaque donnée d'entrée de l'inventaire, soit au niveau des émissions, soit de manière plus précise au niveau des facteurs d'émissions et des données d'activités utilisés pour calculer ces émissions.

Ces incertitudes peuvent ensuite être combinées entre elles pour estimer les incertitudes par catégorie de sources et les incertitudes totales dans l'inventaire. Une première estimation de l'incertitude peut être obtenue en appliquant la méthode Tier-1 (équation de propagation des erreurs) définie par l'IPCC (*IPCC 2000*). Une deuxième approche utilise la méthode Tier-

2 (méthode Monte-Carlo), définie également par l'IPPC (IPCC 2000)).

### 2.1.1 Équation de propagation des erreurs.

#### 2.1.1.a Principe

A partir de l'équation de propagation des erreurs, il est possible d'obtenir deux règles pratiques pour combiner des incertitudes non corrélées entre elles.

**Règle A :** Si des quantités incertaines doivent être combinées par addition, l'écart-type de la somme sera la racine carrée de la somme des carrés des écarts-types des quantités ajoutées, les écarts-types étant tous exprimés en terme absolu (cette règle s'applique pour des variables non corrélées).

$$U_{total} = \frac{\sqrt{(U_1 \cdot x_1)^2 + (U_2 \cdot x_2)^2 + \dots + (U_n \cdot x_n)^2}}{x_1 + x_2 + \dots + x_n} \quad (2.2)$$

avec :

$U_{total}$  : incertitude sur la somme des quantités, exprimée sous la forme de la moitié de l'intervalle de confiance à 95 % divisée par le total (moyenne) et calculée en pourcentage.

$X_i$  et  $U_i$  : quantités incertaines et leur pourcentage d'incertitude respectif.

**Règle B :** Si des quantités incertaines doivent être combinées par multiplication, la même règle s'applique, mais les écarts-types doivent tous être exprimés en fractions des valeurs moyennes appropriées (cette règle est approximative pour toutes les variables aléatoires).

$$U_{total} = \sqrt{U_1^2 + U_2^2 + \dots + U_n^2} \quad (2.3)$$

avec :

$U_{total}$  : pourcentage d'incertitude du produit des quantités

$U_i$  : pourcentage d'incertitude associé à chaque quantité.

Cette méthode n'est applicable que pour des valeurs suivant une distribution gaussienne et dont les incertitudes sont relativement faibles. Les quantités incertaines ne doivent pas être corrélées entre elles. Le principal avantage de cette méthode est sa facilité de mise en œuvre.

## **2.2 Méthode Monte-Carlo.**

### **2.2.1 Principe.**

Une analyse Monte-Carlo consiste à choisir des valeurs aléatoires de facteurs d'émissions et de données sur les activités (ou directement d'émissions) à partir de leur fonction de densité de probabilité afin de calculer les valeurs d'émissions correspondantes. Ce calcul répété de nombreuses fois, permet l'obtention de la fonction de distribution des émissions. L'analyse Monte-Carlo peut-être effectuée à différents niveaux de l'inventaire :

- directement pour chaque source.
- pour des agrégations de sources.
- pour l'ensemble de l'inventaire.

L'analyse Monte-Carlo se divise en plusieurs étapes (Figure 2.1) qui sont :

- la détermination des incertitudes des catégories de sources : pour chaque donnée de base (facteur d'émissions ou donnée d'activités) doit être associée une fonction de densité de probabilité avec sa valeur moyenne.
- la sélection de valeurs aléatoires : pour chaque donnée d'entrée, une valeur aléatoire est choisie à partir de la fonction de densité de probabilité (FDP) de cette variable.
- l'estimation des émissions : les valeurs des émissions calculées à l'étape précédente sont mémorisées. La moyenne des valeurs mémorisées donne une estimation des émissions et leur distribution fournit une estimation de la fonction de densité de probabilité. Au fur et à mesure des itérations, la moyenne se rapproche du résultat final. Lorsque la variation de la moyenne atteint un seuil prédéfini (critère de convergence), le calcul peut être considéré comme terminé.

La méthode Monte-Carlo a pour avantage de ne pas se limiter aux seules FDP normales et permet la prise en compte des dépendances (corrélations) entre les différentes sources. Elle peut, par contre, générer des temps de calcul relativement longs pour des modèles complexes.

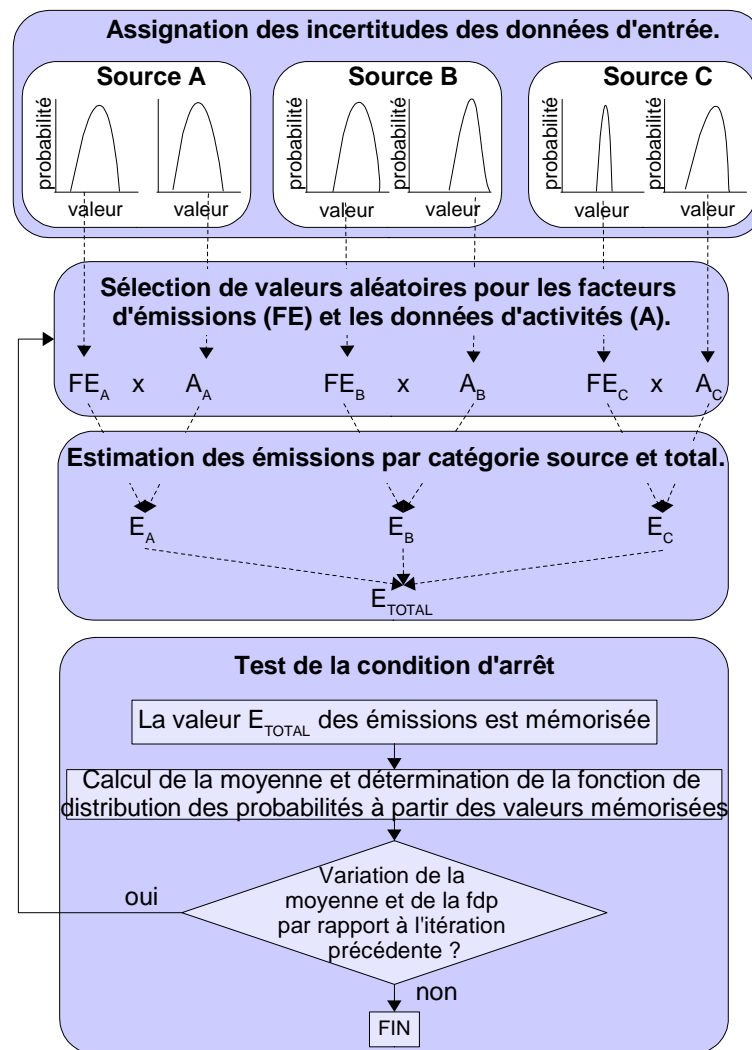


Figure 2.1: Méthode Monte-Carlo

### 2.2.2 Analyse de sensibilité.

Après une simulation Monte-Carlo, l'analyse de sensibilité permet de mettre en évidence l'influence de chaque source sur l'incertitude globale. Comme cela a été défini précédemment, cette corrélation reflète la dépendance de l'incertitude calculée à chaque donnée d'entrée. Plus ce facteur est élevé et plus l'influence de la source considérée est importante sur l'incertitude totale. L'analyse de sensibilité permet de mettre en avant les données d'entrée les plus influentes et à les considérer comme prioritaires pour être étudiées plus précisément.

### 3 Application au cadastre ESCOMPTE

#### 3.1 Les cadastres d'émissions ESCOMPTE.

Les cadastres d'émissions du programme ESCOMPTE (Cros 2004, François 2005) prennent en compte l'ensemble des sources (stationnaires, mobiles et biogéniques) sur un domaine de 19600 km<sup>2</sup> centré sur Marseille-Etang de Berre (cf. carte figure 2.2). Un inventaire annuel pour l'année 1999 a été réalisé ainsi que des inventaires horaires pour 23 jours des mois de juin et juillet des années 2000 et 2001. Il recense 104 composés chimiques d'intérêt pour l'étude et la modélisation de la pollution troposphérique.



Figure 2.2: Carte de la zone ESCOMPTE

Le tableau 2.2 donne les valeurs d'émissions annuelles pour quelques espèces d'intérêt en fonction des différents secteurs d'activité.

Code SNAP	Description	Emissions (kT)					
		SO <sub>2</sub>	NO <sub>x</sub>	COV	CO	CO <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>
1	combustion dans les industries de l'énergie et de la transformation de l'énergie	57,5	12,6	1,6	1,58	8394,9	0,2
2	combustion hors industrie	8,5	4,3	8,8	90,4	5483,3	7,2
3	combustion dans l'industrie manufacturière	21,7	11,6	5,9	221,4	7152,9	5,1
4	procédés de production	25,7	4,7	11,5	43,9	418,0	0,1
5	extraction et distribution de combustibles fossiles/énergie géothermique	0	0	9,7	0	0	0
6	utilisation de solvants et autres produits	0	0	23,7	0	0	0
7	transport routier	1,3	41,3	10,0	71,6	5986,1	0,8
8	autres sources mobiles et machines	7,7	9,4	3,4	13,6	923,5	0
9	traitement et élimination des déchets	5,9	1,4	8,4	0,3	642,4	0
<b>TOTAL</b>	ensemble des émissions	128,1	85,4	75,4	442,7	29001,1	13,4

Tableau 2.2: Émissions annuelles issues de l'inventaire ESCOMPTE pour les composés chimiques d'intérêt majeur.

### 3.2 Détermination de l'incertitude.

La détermination de l'incertitude porte sur six composés ou groupes de composés de l'inventaire annuel 1999 ESCOMPTE : CO<sub>2</sub>, CO, COVNM, NO<sub>x</sub>, SO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>. L'inventaire annuel est divisé en quatre bases de données sous format ACCESS, correspondant aux quatre grandes catégories de sources (transports, sources fixes, grandes sources ponctuelles et biogènes). Dans cette étude, les sources biogènes n'ont pas été prises en compte. Les valeurs des émissions des composés étudiés ont été extraites des bases de données et agrégées par activité (code SNAP de niveau 2).

Les deux méthodes décrites précédemment ont été utilisées pour sommer les incertitudes. Dans le cas de la méthode Monte-Carlo, une fonction de densité de probabilité (FDP) a du être choisie pour chaque paramètre incertain, en fonction des informations disponibles.

Pour l'analyse d'incertitude, 3 scénarios ont été considérés :

- le scénario 1 : il est basé sur des incertitudes par défaut pour les différentes données sources. Ce scénario a tendance à surestimer les incertitudes.



- le scénario 2 : il utilise des valeurs optimistes pour les incertitudes sur les données sources afin d'avoir une estimation de l'incertitude minimale pouvant être obtenue dans le meilleur des cas (à priori).
- le scénario 3 : il prend en compte des incertitudes déterminées avec plus de précision pour les sources contribuant le plus à l'incertitude globale. Les principales sources d'incertitude pour chacun des composés étudiés sont identifiées à partir d'une analyse de sensibilité réalisée sur les résultats du premier scénario. Ce scénario est sûrement le plus réaliste par rapport aux données dont nous disposons.

### **3.2.1 Scénario 1 : à partir des valeurs par défaut.**

L'affectation des incertitudes par défaut est basée sur le document « Good practice guidance for CLRTAP Emission Inventories » (*van Aardenne 2001*). Ce dernier propose des classes d'incertitude par catégorie SNAP (tableau 2.3). Les intervalles de confiance à 95% pour les émissions, ou pour les facteurs d'émissions et les données d'activités (utilisés par la méthode Monte-Carlo) sont associés aux classes d'incertitude à partir des informations du rapport du TNO (*van Gijlswijk 2004*) et qui sont résumées dans le tableau 2.4.

Code SNAP	Description	Classe d'incertitude pour chaque composé							
		SO <sub>2</sub>	NO <sub>x</sub>	VOC	CO	NH <sub>3</sub>	CO <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>	N <sub>2</sub> O
1	combustion dans les industries de l'énergie et de la transformation de l'énergie	A	B	C	B	/	A	C	E
2	combustion hors industrie	B	C	C	C	/	B	C	E
3	combustion dans l'industrie manufacturière	A	B	C	B	/	A	C	E
4	procédés de production	B	C	C	C	E	B	D	D
5	extraction et distribution de combustibles fossiles/énergie géothermique	C	C	C	C	/	D	D	/
6	utilisation de solvants et autres produits	/	/	B	/	/	/	/	/
7	transport routier	C	C	C	C	E	B	C	E
8	autres sources mobiles et machines	C	D	D	D	/	C	D	D
9	retraitements des déchets	B	B	B	C	/	B	C	E
9	décharges des déchets	C	C	C	C	E	C	D	E
10	agriculture et sylviculture	/	D	D	D	D	C	D	E
11	autres sources et puits	D	D	D	E	E	D	E	E

Tableau 2.3: Classes d'incertitude par catégorie SNAP

Classe d'incertitude	Marge d'erreur	Demi-intervalle de confiance à 95% (émissions)	Demi-intervalle de confiance à 95% (activités ou facteurs d'émissions)
A	10 – 30%	20%	15%
B	20 – 60%	40%	30%
C	50 – 150%	100%	75%
D	100 – 300%	200%	130%
E	ordre de grandeur	1000%	405%

Tableau 2.4: Incertitudes par défaut associées à chaque classe

Dans le cas de la méthode Monte-Carlo, une fonction de densité de probabilité (FDP) doit être choisie pour chaque paramètre incertain, en fonction des informations disponibles. Là encore, 3 approches différentes ont été testées. La première consiste à utiliser uniquement des FDP distribuées normalement. La deuxième utilise des FDP normales pour les incertitudes inférieures à 60% et des distributions log-normales pour les autres. Cette approche permet d'éviter les valeurs négatives. Enfin, la troisième approche est basée sur des FDP normales

tronquées dans le cas d'incertitudes supérieures à 60% afin là aussi d'éviter les valeurs négatives.

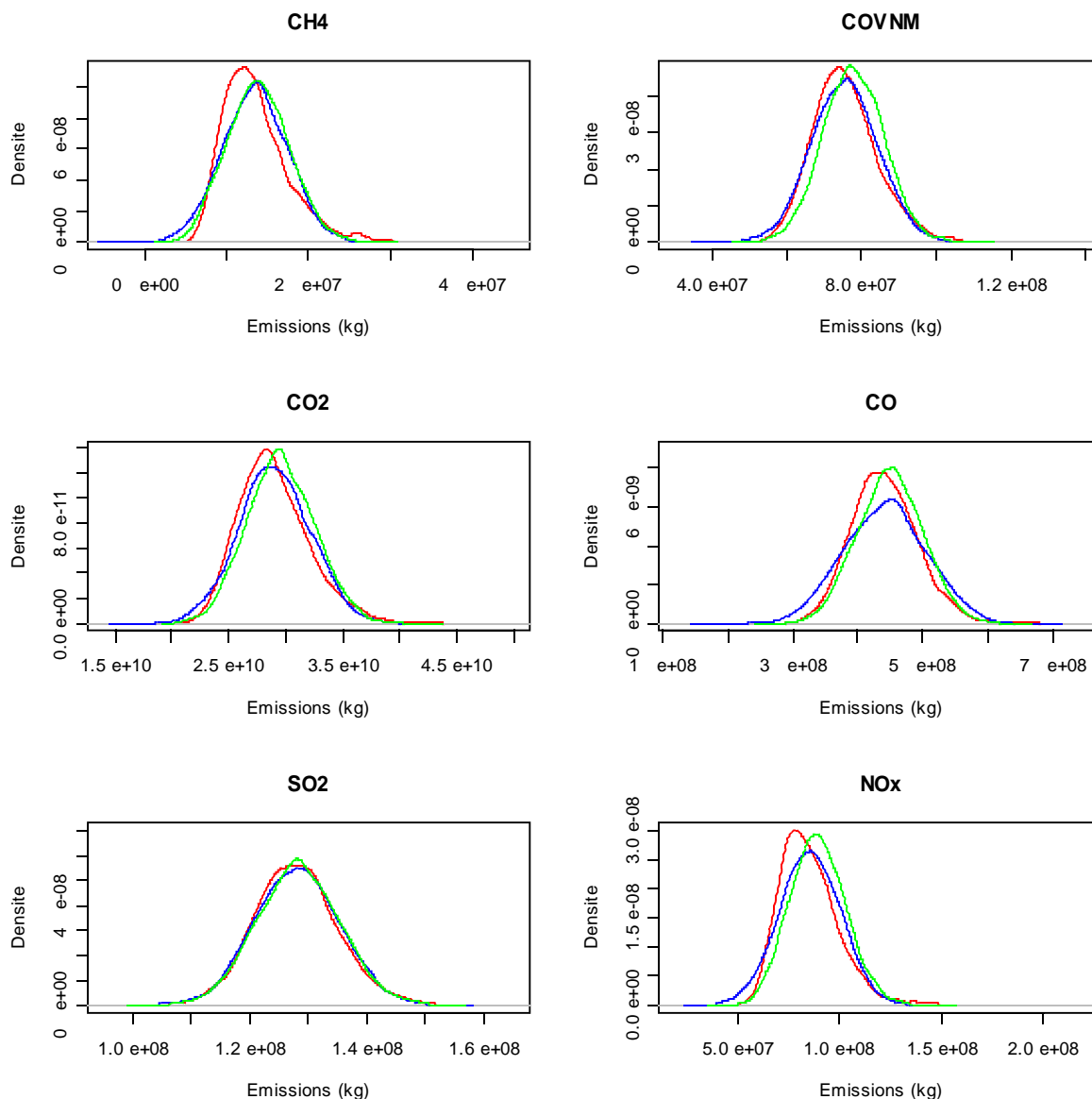
Pour chaque composé, la méthode de l'équation de propagation des erreurs fournit une valeur pour les émissions et l'incertitude associée sous forme de pourcentage. Les résultats obtenus par cette méthode sont récapitulés dans le tableau 2.5. La plus forte incertitude est liée aux émissions de méthane, pour lequel elle représente 60%. Les valeurs les plus faibles sont observées pour le dioxyde de carbone et le dioxyde de soufre pour lesquels les incertitudes sont respectivement de 9% et 11%.

<i>Composé</i>	<i>Émission moyenne (ktonnes )</i>	<i>Pourcentage d'incertitude (+/-)</i>
CH <sub>4</sub>	13,5	60%
COVNM	75,5	23%
NO <sub>x</sub>	85,4	32%
SO <sub>2</sub>	128,1	11%
CO	442,7	29%
CO <sub>2</sub>	29001	9%

Tableau 2.5: Incertitudes sur les émissions par la méthode des équations de propagation des erreurs

La méthode Monte-Carlo permet de calculer une fonction de distribution définissant les émissions pour chaque composé étudié. L'incertitude est exprimée par le centile 2,5 et le centile 97,5 (intervalle de confiance de 95%) sous forme de pourcentage par rapport à la moyenne. C'est une représentation intuitive de l'incertitude dans le cas d'une distribution normale mais qui peut être biaisée dans certains cas. Elle permet néanmoins de comparer simplement les différentes valeurs calculées.

La figure 2.3 représente les fonctions de distribution des différents composés. Sur chaque graphique sont comparées les 3 distributions obtenues en fonction du choix réalisé pour les FDP d'entrée.



Distributions normales  
Distributions normales tronquées (pas de valeur négative)  
Distributions normales et log-normales (quand l'incertitude est supérieure à 60%)

Figure 2.3: Fonctions de distribution des différents composés obtenues à partir de la méthode Monte-Carlo

La figure 2.4 représente ces mêmes FDP sous forme de boîtes à moustaches. L'extrémité des moustaches correspond à l'intervalle de 95%, c'est à dire que la valeur réelle de l'émission a 95% de chance de se trouver dans cet intervalle. La boîte représente les valeurs comprises entre 25% et 75%, la médiane est symbolisée par une la droite grisée et la valeur moyenne par une croix rouge.

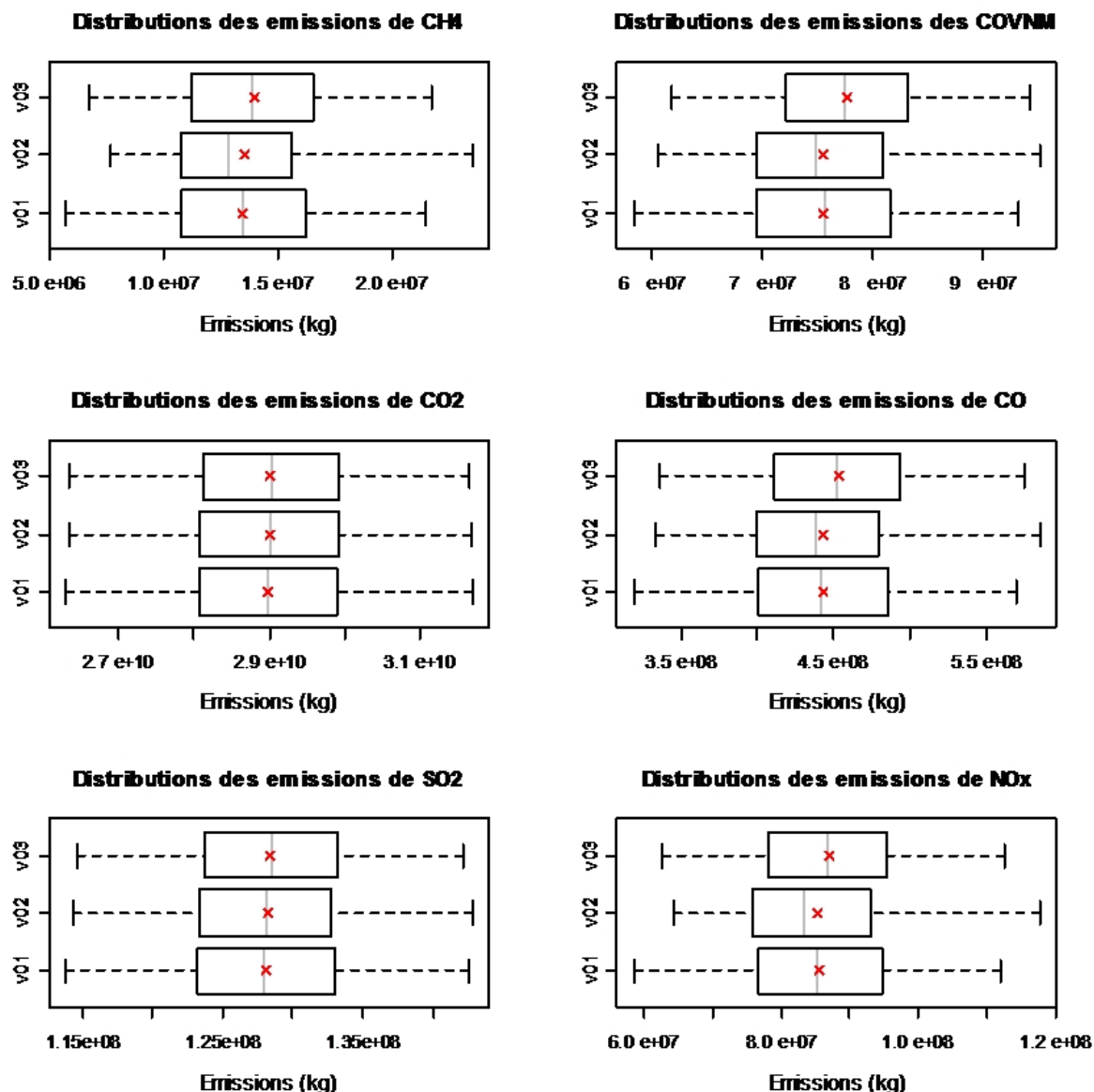


Figure 2.4: Représentation sous forme de boîtes à moustaches des différentes distributions pour chaque composé du scénario 1

Le tableau 2.6 reprend les incertitudes calculées avec la méthode Monte-Carlo pour les 3 approches différentes. Le tableau 2.7 récapitule les caractéristiques des différentes FDP obtenues.

<b>Monte-Carlo</b>									
<b>Composé</b>	<b>V1 (FDP normales)</b>			<b>V2 (FDP normales et log-normales quand I&gt;60%)</b>			<b>V3 (FDP normales et normales tronquées quand I&gt;60%)</b>		
	<i>Emission moyenne (ktonnes)</i>	<i>Borne inférieure (%)</i>	<i>Borne supérieure (%)</i>	<i>Emission moyenne (ktonnes)</i>	<i>Borne inférieure (%)</i>	<i>Borne supérieure (%)</i>	<i>Emission moyenne (ktonnes)</i>	<i>Borne inférieure (%)</i>	<i>Borne supérieure (%)</i>
<b>CH<sub>4</sub></b>	13,5	-58%	59%	13,5	-44%	73%	13,9	-52%	56%
<b>NO<sub>x</sub></b>	85,5	-32%	31%	85,3	-25%	38%	86,9	-28%	30%
<b>CO</b>	443	-28%	29%	443	-25%	32%	453	-26%	27%
<b>CO<sub>2</sub></b>	28990	-9%	9%	29007	-9%	9%	29020	-9%	9%
<b>SO<sub>2</sub></b>	128	-11%	11%	128	-11%	11%	128	-11%	11%
<b>COVNM</b>	75,5	-23%	23%	75,6	-20%	26%	77,7	-20%	21%

Tableau 2.6: Incertitudes sur les émissions pour les 3 variantes de la méthode Monte-Carlo

<i>Composé</i>	<i>Variante FDP utilisée</i>	<i>Minimum (ktonnes)</i>	<i>Maximum (ktonnes)</i>	<i>Moyenne (ktonnes)</i>	<i>Mode (ktonnes)</i>	<i>Médiane (ktonnes)</i>
<b>CH<sub>4</sub></b>	V1	-2,2	28,0	13,5	12,6	13,4
	V2	5,0	37,6	13,5	12,1	12,9
	V3	2,5	27,4	13,9	13,9	13,8
<b>NO<sub>x</sub></b>	V1	32,2	130,7	85,5	84,3	85,4
	V2	51,6	180,2	85,3	78,7	83,3
	V3	44,6	139,8	86,9	88,4	86,8
<b>CO</b>	V1	206,2	702,3	443,0	428,8	442,5
	V2	243,9	813,2	443,3	420,3	437,6
	V3	243,4	704,5	453,3	453,5	452,9
<b>CO<sub>2</sub></b>	V1	23817,7	33990,0	28990,7	28803,5	28991,6
	V2	24343,7	34595,5	29006,9	29155,4	29015,3
	V3	24406,0	34382,0	29020,9	29185,4	29029,3
<b>SO<sub>2</sub></b>	V1	100,7	158,8	128,1	127,6	128,0
	V2	101,4	166,8	128,2	127,7	128,1
	V3	104,0	156,0	128,4	129,4	128,5
<b>COVNM</b>	V1	39,7	106,4	75,5	73,9	75,6
	V2	50,4	141,1	75,6	73,2	74,7
	V3	41,8	112,1	77,7	77,3	77,6

Tableau 2.7: Caractéristiques des différentes FDP des composés étudiés

L'utilisation de FDP normales dans la simulation conduit à des résultats très proches de l'utilisation des équations de propagation des erreurs à la fois pour l'estimation des émissions (valeurs moyennes) et les incertitudes associées. Ceci n'est pas surprenant. En effet, dans les 2 approches, les distributions sont supposées normales et les corrélations entre les différentes sources ne sont pas prises en compte.

Le seul inconvénient à l'utilisation de FDP normales est la représentation des incertitudes élevées. En effet, une distribution normale n'empêche pas la présence de valeurs négatives, ainsi la FDP des émissions peut devenir irréaliste et biaiser l'estimation des émissions totales. L'utilisation de FDP normales tronquées permet d'éviter ce biais en empêchant la présence de

valeurs négatives. Par contre, leur emploi provoque une surestimation des émissions par rapport aux autres approches, mais les incertitudes calculées par cette méthode sont légèrement inférieures.

Une deuxième solution consiste à utiliser des distributions log-normales lorsque l'incertitude est élevée afin d'éviter les valeurs négatives. Dans ce cas, les émissions estimées sont cohérentes avec les autres approches. L'amplitude de la gamme d'incertitudes est similaire à une simulation Monte-Carlo utilisant des FDP normales ou l'utilisation des équations de propagation des erreurs. Par contre, les FDP calculées peuvent être asymétriques et présentent une incertitude plus grande pour les valeurs élevées que pour les valeurs faibles (cf. représentation des FDP sous forme de boîte à moustaches sur la figure 2.4).

Pour la suite des analyses, des FDP normales ont été utilisées sauf pour les incertitudes élevées où des FDP log-normales ont été préférées. En effet, cette approche nous a permis d'éviter les valeurs négatives dans les FDP et conduit à des estimations proches de la méthode des équations de propagation des erreurs.

### **3.2.2 Analyse de sensibilité.**

Après une simulation Monte-Carlo, il est possible d'effectuer une analyse de sensibilité. Elle permet pour chaque composé de mettre en évidence les secteurs contribuant le plus à l'incertitude totale. Cette analyse a été faite à l'aide du logiciel @Risk, à partir des résultats de la simulation utilisant la deuxième approche (FDP normales et log-normales). Les résultats pour les différents composés sont représentés sous forme de graphiques dans les figures 2.5 à 2.10. La méthode utilisée est une régression multivariée. A chaque source est associé un coefficient pouvant prendre une valeur entre 0 et 1. Plus cette valeur se rapproche de 1, plus l'incertitude de la source considérée influence l'incertitude globale.



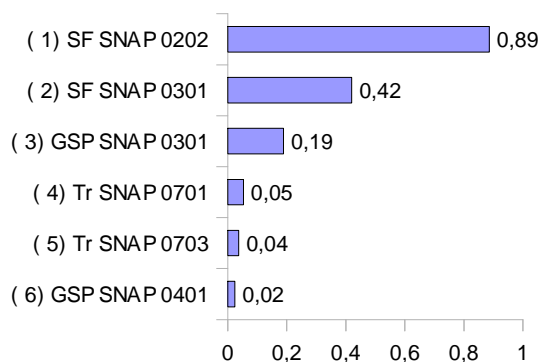


Figure 2.5: Analyse de sensibilité pour le méthane

- (1) **Sources Fixes** : combustion hors industrie : secteur résidentiel.
- (2) **Sources Fixes** : combustion dans l'industrie manufacturière : chaudières, turbines à gaz, moteurs fixes.
- (3) **GSP** : combustion dans l'industrie manufacturière : chaudières, turbines à gaz, moteurs fixes.
- (4) **Transport** : voitures particulières.
- (5) **Transport** : poids lourds
- (6) **GSP** : procédé de production de l'industrie pétrolière.

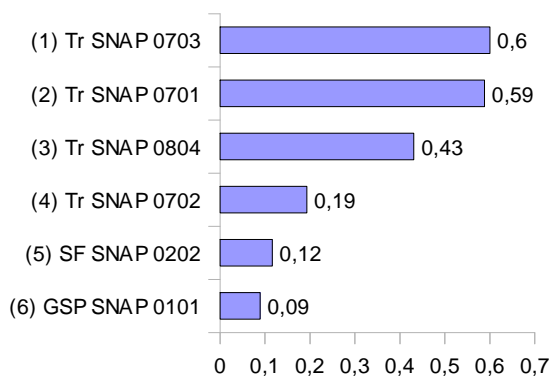


Figure 2.6: Analyse de sensibilité pour les oxydes d'azote

- (1) **Transport** : poids lourds
- (2) **Transport** : voitures particulières.
- (3) **Transport** : activités maritimes.
- (4) **Transport** : véhicules utilitaires légers.
- (5) **Sources Fixes** : combustion hors industrie : secteur résidentiel.
- (6) **GSP** : combustion dans les industries de l'énergie et de la transformation de l'énergie. production d'électricité.

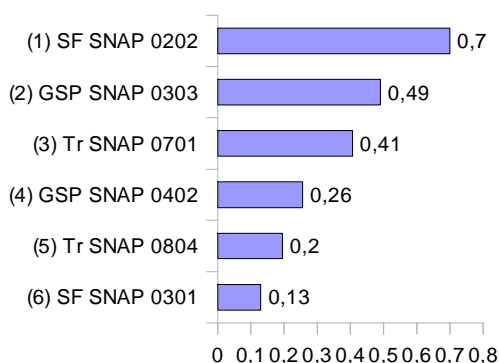


Figure 2.7: Analyse de sensibilité pour le monoxyde de carbone

- (1) **Sources Fixes** : combustion hors industrie : secteur résidentiel.
- (2) **GSP** : combustion dans l'industrie manufacturière : procédés énergétiques avec contact.
- (3) **Transport** : voitures particulières.
- (4) **GSP** : procédés de production : procédés de sidérurgie et des houillères.
- (5) **Transport** : activités maritimes.
- (6) **Sources Fixes** : combustion dans l'industrie manufacturière : chaudières, turbines à gaz, moteurs fixes.

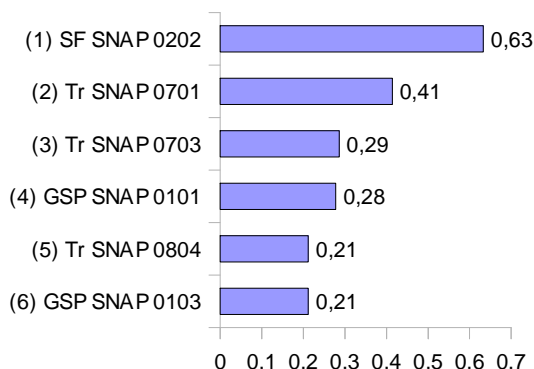


Figure 2.8: Analyse de sensibilité pour le dioxyde de carbone

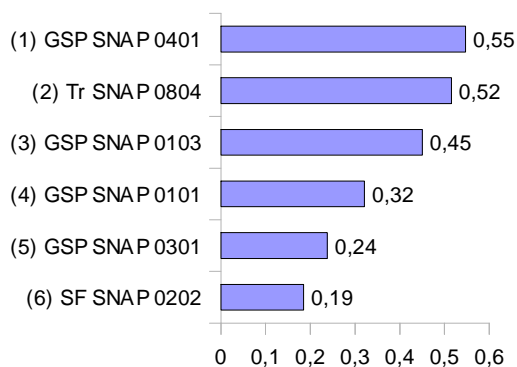


Figure 2.9: Analyse de sensibilité pour le dioxyde de soufre

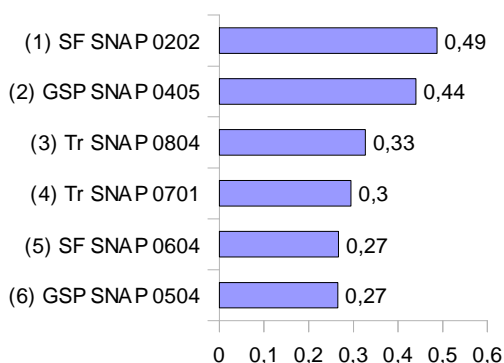


Figure 2.10: Analyse de sensibilité pour les composés organiques volatils non méthaniques

- (1) **Sources Fixes** : combustion hors industrie : secteur résidentiel.
- (2) **Transport** : voitures particulières.
- (3) **Transport** : poids lourds
- (4) **GSP** : combustion dans les industries de l'énergie et de la transformation de l'énergie. production d'électricité.
- (5) **Transport** : activités maritimes.
- (6) **GSP** : combustion dans les industries de l'énergie et de la transformation de l'énergie : raffinage du pétrole.

- (1) **GSP** : procédé de production de l'industrie pétrolière.
- (2) **Transport** : activités maritimes.
- (3) **GSP** : combustion dans les industries de l'énergie et de la transformation de l'énergie : raffinage du pétrole.
- (4) **GSP** : combustion dans les industries de l'énergie et de la transformation de l'énergie. production d'électricité.
- (5) **GSP** : combustion dans l'industrie manufacturière : chaudières, turbines à gaz, moteurs fixes.
- (6) **Sources Fixes** : combustion hors industrie : secteur résidentiel.

- (1) **Sources Fixes** : combustion hors industrie : secteur résidentiel.
- (2) **GSP** : procédés de production : procédés de l'industrie chimique organique.
- (3) **Transport** : activités maritimes.
- (4) **Transport** : voitures particulières.
- (5) **Sources Fixes** : utilisation de solvants et autres produits : autres utilisations de solvants et activités associées.
- (6) **GSP** : extraction et distribution de combustibles fossiles/énergie géothermique : distribution de l'essence.

L'analyse des incertitudes globales sur les émissions des différents composés étudiés montre que suivant les composés, l'importance des différents secteurs d'activité est très variable. Cette importance dépend bien évidemment des quantités totales de composés émises par l'ensemble des sources de ces activités. Ainsi, plus un secteur sera émetteur et plus l'incertitude pourra être prépondérante par rapport aux émissions globales.

Le secteur des transports, et tout particulièrement celui des transports routiers, avec en premier lieu celui des poids lourds (SNAP 0703), suivi des voitures particulières (SNAP 0701), est la source majoritaire d'incertitudes sur les NO<sub>x</sub>. Le secteur des transports routiers (SNAP 0701 et SNAP 0703) contribue également aux incertitudes des émissions de CO et de CO<sub>2</sub>, et dans une moindre mesure à celles sur le CH<sub>4</sub> et les COVNM. Le trafic maritime (SNAP 0804) influence les incertitudes sur les émissions de SO<sub>2</sub> et de NO<sub>x</sub>, et plus faiblement celles des COVNM.

L'activité de combustion dans le secteur résidentiel (sources fixes, SNAP 0202) est une des sources principales d'incertitude sur les valeurs d'émissions de CH<sub>4</sub>, des COVNM, de CO et de CO<sub>2</sub>.

Les activités de l'industrie pétrolière : procédés de production de l'industrie pétrolière (SNAP 0401) et les activités liées au raffinage du pétrole (SNAP 0103), qui font partie des grandes sources ponctuelles, génèrent la majeure partie des incertitudes sur le SO<sub>2</sub>. Les activités de combustion dans les industries influencent quant à elles les incertitudes sur les émissions de CO<sub>2</sub> et SO<sub>2</sub> (industries de production d'énergie SNAP 0101) et sur les émissions de COVNM (industries de la chimie organique SNAP 0405).

### **3.2.3 Scénario 2 : à partir de valeurs optimistes**

Les bornes inférieures de l'intervalle de confiance des incertitudes par défaut du scénario 1 ont été utilisées pour ce scénario 2. Ceci revient à diviser par deux les incertitudes sur les données sources par rapport au scénario 1. Ces valeurs sont résumées dans le tableau 2.8.

<i>Classe d'incertitude</i>	<i>Marge d'erreur</i>	<i>Demi-intervalle de confiance à 95% (émissions)</i>
A	10 – 30%	10 %
B	20 – 60%	20 %
C	50 – 150%	50 %
D	100 – 300%	100 %
E	ordre de grandeur	1000 %

Tableau 2.8: Incertitudes associées à chaque classe

La détermination de l'incertitude totale est effectuée d'une part avec les équations de propagation des erreurs et d'autre part avec la méthode Monte-Carlo. Le tableau 2.9 montre les résultats obtenus à partir des deux méthodes utilisées pour l'estimation des incertitudes. La figure 2.11 présente les fonctions de distribution issues de la simulation Monte-Carlo pour les différents composés ainsi que leur représentation sous forme de boîte à moustaches.

<i>Composé</i>	<i>Equation de propagation des erreurs</i>		<i>Méthode Monte-Carlo</i>		
	<i>Emissions moyennes (ktonnes)</i>	<i>Pourcentage d'incertitude (+/-)</i>	<i>Emissions moyennes (ktonnes)</i>	<i>Borne inférieure (%)</i>	<i>Borne supérieure (%)</i>
CH <sub>4</sub>	13,5	30%	13,5	-29%	29%
NO <sub>x</sub>	85,4	16%	85,5	-16%	16%
CO	442,7	14%	442,8	-14%	14%
CO <sub>2</sub>	29000	5%	29000	-4%	5%
SO <sub>2</sub>	128,1	6%	128,1	-6%	5%
COVNM	75,4	12%	75,5	-11%	11%

Tableau 2.9: Incertitudes calculées sur les émissions totales.

Les valeurs des émissions totales calculées par les deux méthodes sont très proches. Les incertitudes par rapport à celles calculées dans le premier scénario sont divisées par deux, soit le même ordre de grandeur que la diminution affectée au niveau des incertitudes sur les données d'entrée.

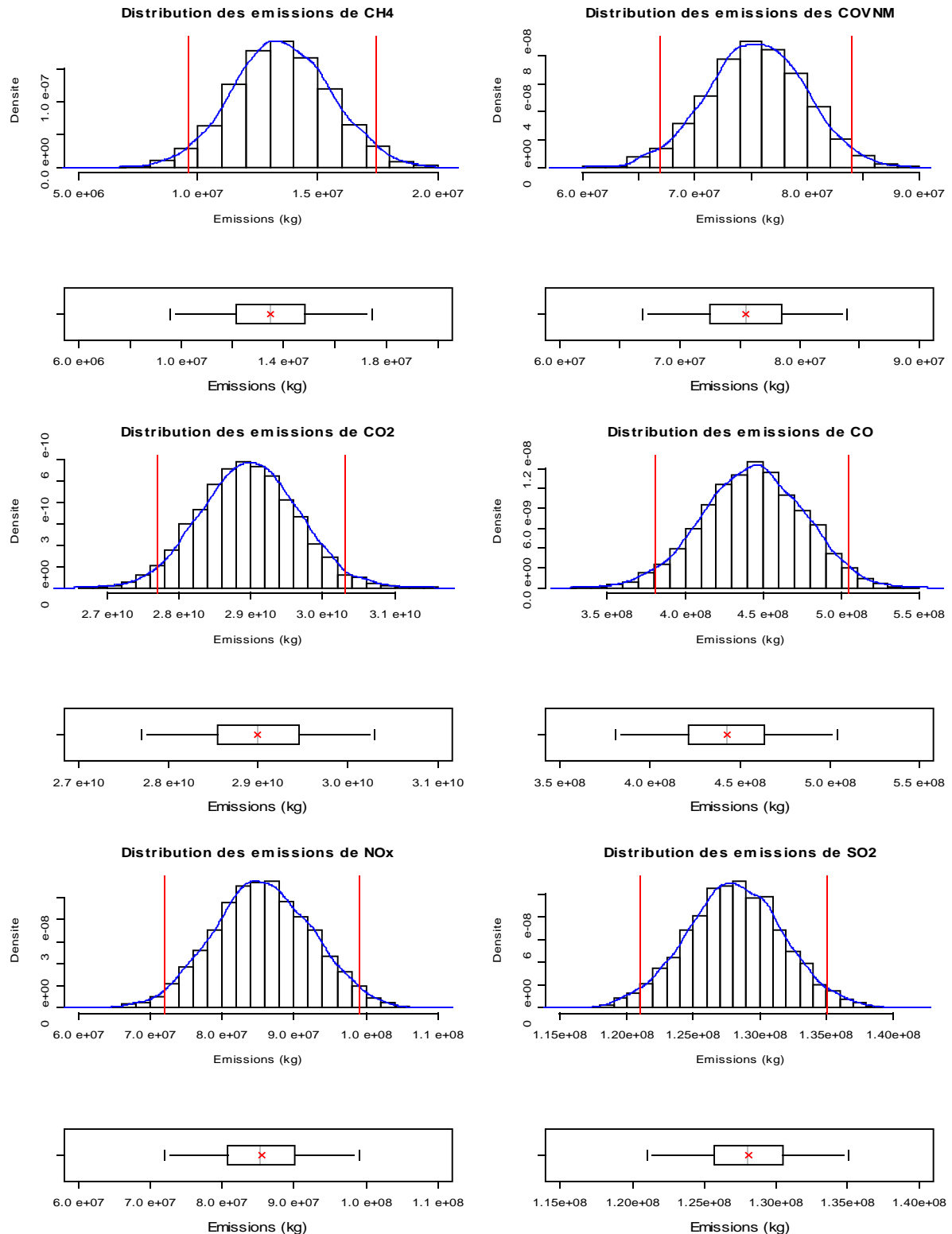


Figure 2.11: Fonctions de distribution et boîtes à moustaches des différentes distributions pour chaque composé du scénario 2

### 3.2.4 **Scénario 3 : recherche de meilleures estimations**

Le scénario 3 cherche à être le plus réaliste par rapport aux données disponibles. L'objectif est de définir avec plus de précision et de manière plus spécifique à l'inventaire d'émissions ESCOMPTE, les incertitudes sur les données utilisées pour sa construction (activités et facteurs d'émissions). Lorsqu'une estimation de l'incertitude plus précise (ou plus spécifique à la méthodologie utilisée) est trouvée pour une des données d'entrée, cette nouvelle valeur est utilisée pour une nouvelle estimation. Dans le cas contraire, les valeurs par défaut du scénario 1 sont utilisées. La priorité est donnée à la recherche d'informations plus précises pour les données contribuant le plus à l'incertitude globale qui ont été mises en évidence par l'analyse de sensibilité réalisée à partir des résultats du premier scénario (cf. paragraphe 3.2.2).

#### 3.2.4.a Le secteur du transport (SNAP 07 et 0804)

D'après le rapport final des résultats sur les émissions ESCOMPTE des sources mobiles (*Buffard 2003*) élaboré par MVA Consulting, la méthodologie COPERT III a été utilisée pour déterminer les émissions issues du transport routier. Les conclusions du document « Analyse de la méthodologie COPERT III, Analyse d'incertitude et de sensibilité » sont utilisées (*Duboudin. 2002*) pour définir les incertitudes sur les données d'entrée. Ces valeurs sont récapitulées dans le tableau 2.10.

<i>Composé</i>	<i>Incertitude %</i>
COVNM	35%
CH <sub>4</sub>	35%
NO <sub>x</sub>	25%
CO	25%
SO <sub>2</sub>	15%
CO <sub>2</sub>	15%

Tableau 2.10: Incertitudes associées à chaque composé pour le secteur du transport routier (SNAP 07)

Dans le cas des activités maritimes, la méthodologie utilisée est essentiellement basée sur l'ouvrage « Methodology for calculating transport emissions and energy consumption » (Hickman J. 1999). Dans ce document, le traitement de l'incertitude n'est pas pris en compte. Il est néanmoins possible de se référer en partie sur les données du document « EMEP/CORINAIR Emission Inventory Guidebook » (UNECE/EMEP 2005) qui fournit des estimations pour les composés organiques volatils (COVNM et CH<sub>4</sub>), les oxydes d'azote et le dioxyde de soufre. Pour le monoxyde de carbone, la même incertitude que le dioxyde de soufre est utilisée. En effet, la méthodologie de calcul des émissions est la même dans les deux cas: elle est basée sur la consommation de carburant. Enfin, pour le dioxyde de carbone, la valeur par défaut est reprise. Les données utilisées sont résumées dans le tableau 2.11.

<i>Composé</i>	<i>Incertitude %</i>
COVNM	30%
CH <sub>4</sub>	30%
NO <sub>x</sub>	30%
CO	15%
SO <sub>2</sub>	15%
CO <sub>2</sub>	100%

Tableau 2.11: Incertitudes associées à chaque composé pour le secteur du transport maritime (SNAP 0804)

### 3.2.4.b Les Grandes Sources Ponctuelles (GSP) et les Sources Fixes.

Le rapport ESCOMPTE sur le calcul des émissions des sources fixes (effectué par ARIA technologies S.A.) (ARIA 2002) décrit la création de l'inventaire pour les installations fixes de combustion de l'industrie, des secteurs tertiaire et résidentiel et des autres sources industrielles et activités spécialisées ainsi que les installations de traitements et d'éliminations des déchets (incinération, traitements de eaux ...). A partir des sources d'informations citées dans ce rapport, les incertitudes sur les facteurs d'émissions et les données d'activités sont estimées pour chaque secteur d'activités (codes SNAP niveau 1 ou 2).

Les tableaux 2.12 à 2.17 détaillent pour chaque composé, les sources des facteurs d'émissions utilisés pour l'inventaire avec les incertitudes qui leur ont été associées. Le tableau 2.18, quant à lui, résume les incertitudes qui ont été associées aux différentes activités.

<b>Catégorie SNAP</b>	<b>Source du FE</b>	<b>Incertitude associée</b>	<b>Référence de l'incertitude</b>
SNAP 01	base de données européenne RAINS.		
SNAP 02	(pas d'émission pour les sources fixes)	10%-15%	(Schöpp, 2005)
SNAP 03			
SNAP 04	FE de l'inventaire Lotos (long term ozon simulation)	pas d'information, utilisation des incertitudes par défaut pour les émissions directement.	
SNAP 05	pas d'émission dans ce secteur	/	/
SNAP 06	pas d'émission dans ce secteur	/	/
SNAP 09	FE de l'inventaire Lotos (long term ozon simulation)	pas d'information, utilisation des incertitudes par défaut pour les émissions directement	

Tableau 2.12: Sources et incertitudes des facteurs d'émissions utilisés pour les émissions de SO<sub>2</sub>

<b>Catégorie SNAP</b>	<b>Source du FE</b>	<b>Incertitude associée</b>	<b>Référence de l'incertitude</b>
SNAP 01	FE de l'inventaire Lotos (long term ozon simulation)	0%	(Olivier et Al, 2002)
SNAP 02			
SNAP 03			
SNAP 04	?	pas d'information, utilisation des incertitudes par défaut pour les émissions directement.	
SNAP 05	pas d'émission dans ce secteur	/	/
SNAP 06	pas d'émission dans ce secteur	/	/
SNAP 09	?	pas d'information, utilisation des incertitudes par défaut pour les émissions directement.	

Tableau 2.13: Sources et incertitudes des facteurs d'émissions utilisés pour les émissions des NO<sub>x</sub>

<b>Catégorie SNAP</b>	<b>Source du FE</b>	<b>Incertitude associée</b>	<b>Référence de l'incertitude</b>
SNAP 01	FE de l'inventaire Lotos (long term ozon simulation)	0%	(Olivier et al, 2002)
SNAP 02			
SNAP 03			
SNAP 04	pas d'émission dans ce secteur	/	/
SNAP 05	pas d'émission dans ce secteur	/	/
SNAP 06	pas d'émission dans ce secteur	/	/
SNAP 09	?	pas d'information, utilisation des incertitudes par défaut pour les émissions directement.	

Tableau 2.14: Sources et incertitudes des facteurs d'émissions utilisés pour les émissions de CO<sub>2</sub>



<b>Catégorie SNAP</b>	<b>Source du FE</b>	<b>Incertitude associée</b>	<b>Référence de l'incertitude</b>
SNAP 01	FE de l'inventaire Lotos (long term ozon simulation)	0%	<i>(Olivier et al, 2002)</i>
SNAP 02			
SNAP 03			
SNAP 04	?	pas d'information, utilisation des incertitudes par défaut pour les émissions directement.	
SNAP 05	pas d'émission dans ce secteur	/	/
SNAP 06	pas d'émission dans ce secteur	/	/
SNAP 09	?	pas d'information, utilisation des incertitudes par défaut pour les émissions directement.	

Tableau 2.15: Sources et incertitudes des facteurs d'émissions utilisés pour les émissions de CO

<b>Catégorie SNAP</b>	<b>Source du FE</b>	<b>Incertitude associée</b>	<b>Référence de l'incertitude</b>
SNAP 01	FE de l'inventaire Lotos (long term ozon simulation)	50%	<i>(Olivier et al, 2002)</i>
SNAP 02			
SNAP 03			
SNAP 04	?	pas d'information, utilisation des incertitudes par défaut pour les émissions directement.	
SNAP 05	coefficient d'émissions des sources stationnaires <i>(OFEFP, 1995)</i>	130%	<i>(UNECE/EMEP, 2005)</i>
SNAP 06	pas d'émission dans ce secteur	/	/
SNAP 09	?	pas d'information, utilisation des incertitudes par défaut pour les émissions directement.	

Tableau 2.16: Sources et incertitudes des facteurs d'émissions utilisés pour les émissions de CH<sub>4</sub>

<b>Catégorie SNAP</b>	<b>Source du FE</b>	<b>Incertitude associée</b>	<b>Référence de l'incertitude</b>
SNAP 01			
SNAP 02	FE de l'inventaire Lotos (long term ozon simulation)	50%	(Olivier et al, 2002)
SNAP 03			
SNAP 04	?	pas d'information, utilisation des incertitudes par défaut pour les émissions directement.	
SNAP 05	coefficient d'émissions des sources stationnaires (OFEFP, 1995)	130%	(UNECE/EMEP, 2005)
SNAP 06	coefficient d'émissions des sources stationnaires (OFEFP, 1995)	130%	(UNECE/EMEP, 2005)
SNAP 09	?	pas d'information, utilisation des incertitudes par défaut pour les émissions directement.	

Tableau 2.17: Sources et incertitudes des facteurs d'émissions utilisés pour les émissions de COVNM

<b>Catégorie SNAP</b>	<b>GSP</b>		<b>Source Fixes</b>	
	<b>Source</b>	<b>Incertitude</b>	<b>Source</b>	<b>Incertitude</b>
SNAP 01		5 % pour SO <sub>2</sub> , NO <sub>x</sub> , CO, CO <sub>2</sub> et	pas d'émission	/
SNAP 02	données collectées	10 % pour CH <sub>4</sub> , COVNM	résultats de l'enquête énergétique du CEREN	20%
SNAP 03				
SNAP 04	pas d'information, utilisation des incertitudes par défaut pour les émissions directement.		pas d'information, utilisation des incertitudes par défaut pour les émissions directement.	
SNAP 05	données SIRENE	10%	données SIRENE	10%
SNAP 06	données SIRENE + recensement de la population	10%	données SIRENE + recensement de la population	10%
SNAP 09	tonnage de données traitées	pas d'information, utilisation des incertitudes par défaut pour les émissions directement.	pas d'émission	/

Tableau 2.18: Sources et incertitudes associées aux activités

Les incertitudes sur les facteurs d'émissions et les données d'activités sont ensuite combinées en utilisant l'équation de propagation des erreurs. Les valeurs des incertitudes sur les émissions par activité, utilisées dans le scénario 3, sont récapitulées dans les tableaux 2.19 et 2.20 pour les Grandes Sources Ponctuelles et les Sources Fixes, respectivement. Les secteurs non renseignés sont ceux pour lesquels aucune émission n'est considérée dans la base de données.

<b>Code SNAP</b>	<b>SO<sub>2</sub></b>	<b>NO<sub>x</sub></b>	<b>COVNM</b>	<b>CH<sub>4</sub></b>	<b>CO</b>	<b>CO<sub>2</sub></b>
<b>01</b>	11%	50%	51%	51%	50%	11%
<b>02</b>	11%	50%	51%	51%	50%	11%
<b>03</b>	11%	50%	51%	51%	50%	11%
<b>04</b>	40% <sup>[1]</sup>	100% <sup>[1]</sup>	100% <sup>[1]</sup>	200% <sup>[1]</sup>	100% <sup>[1]</sup>	40% <sup>[1]</sup>
<b>05</b>	/	/	130%	130%	/	/
<b>06</b>	/	/	130%	/	/	/
<b>09</b>	40% <sup>[1]</sup>	40% <sup>[1]</sup>	40% <sup>[1]</sup>	100% <sup>[1]</sup>	100% <sup>[1]</sup>	40% <sup>[1]</sup>

<sup>[1]</sup> valeur par défaut

Tableau 2.19: Incertitudes sur les émissions des GSP.

<b>Code SNAP</b>	<b>SO<sub>2</sub></b>	<b>NO<sub>x</sub></b>	<b>COVNM</b>	<b>CH<sub>4</sub></b>	<b>CO</b>	<b>CO<sub>2</sub></b>
<b>01</b>	/	/	/	/	/	/
<b>02</b>	22%	54%	54%	54%	54%	22%
<b>03</b>	22%	54%	54%	54%	54%	22%
<b>04</b>	40% <sup>[1]</sup>	100% <sup>[1]</sup>	100% <sup>[1]</sup>	200% <sup>[1]</sup>	100% <sup>[1]</sup>	40% <sup>[1]</sup>
<b>05</b>	/	/	130%	/	/	/
<b>06</b>	/	/	125%	/	/	/
<b>09</b>	/	/	/	/	/	/

<sup>[1]</sup> valeur par défaut

Tableau 2.20: Incertitudes sur les émissions des Sources Fixes.

Les incertitudes globales sont à nouveau calculées en utilisant la Méthode Monte-Carlo et l'équation de propagation des erreurs. Les résultats sont regroupés dans le tableau 2.21. Les FDP obtenues par la méthode Monte-Carlo sont représentées en détail sur la figure 2.12.

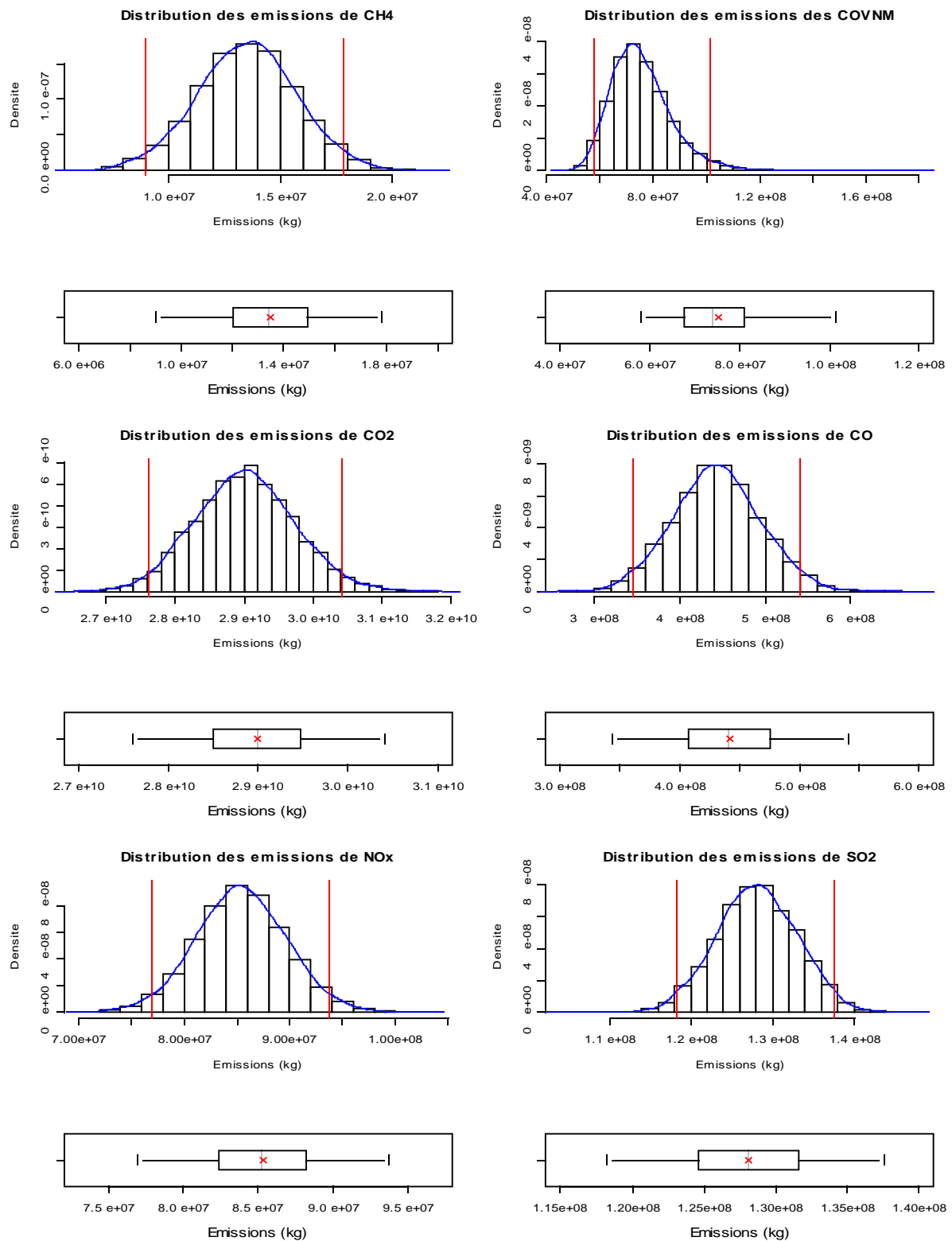


Figure 2.12: Fonctions de distribution et boîtes à moustaches des différentes distributions pour chaque composé du scénario 3

<i>Composé</i>	<i>Equation de propagation des erreurs</i>		<i>Méthode Monte-Carlo</i>		
	<i>Emission moyenne (ktonnes)</i>	<i>Pourcentage d'incertitude (+/-)</i>	<i>Emission moyenne (ktonnes)</i>	<i>Borne inférieure (%)</i>	<i>Borne supérieure (%)</i>
CH <sub>4</sub>	13,5	32%	13,5	-33%	32%
NO <sub>x</sub>	85,4	10%	85,3	-10%	10%
CO	442,7	23%	441,7	-22%	22%
CO <sub>2</sub>	29000	5%	29000	-5%	5%
SO <sub>2</sub>	128,1	8%	128,1	-8%	7%
COVNM	75,48	30%	75,30	-23%	35%

Tableau 2.21: Incertitudes sur les émissions calculées.

Les incertitudes basées sur le scénario 3 sont inférieures ou égales à 10% pour le dioxyde de soufre, les oxydes d'azotes et le dioxyde de carbone. Elles se situent autour de 20% pour le monoxyde de carbone et de 25% pour le méthane. Les incertitudes les plus élevées sont trouvées pour les composés organiques non volatils, pour lesquels elles atteignent 30%.

### 3.2.5 Comparaison des trois scénarios.

Pour chaque composé, la méthode de l'équation de propagation des erreurs fournit une valeur pour les émissions et les incertitudes associées sous forme de pourcentage. La méthode Monte-Carlo caractérise les émissions comme des fonctions de distribution (intervalles de valeurs possibles pour les émissions et leur probabilité associée). L'incertitude est exprimée par le centile 2,5 et le centile 97,5 (intervalle de confiance de 95%) sous forme de pourcentage par rapport à la moyenne. Les résultats obtenus par ces deux méthodes sont récapitulés dans le tableau 2.22 et représentés graphiquement sur les figures 2.13 à 2.18.

Scénario	Composé	Agrégation des erreurs		Monte-Carlo		
		Valeur des émissions	Incertitude	Moyenne des émissions	Incertitude - borne inférieure	Incertitude - borne supérieure
Scénario 1	CH <sub>4</sub>	1,35E+07	60%	1,35E+07	-44%	73%
	NO <sub>x</sub>	8,54E+07	32%	8,53E+07	-25%	38%
	CO	4,43E+08	29%	4,43E+08	-25%	32%
	CO <sub>2</sub>	2,90E+10	9%	2,90E+10	-9%	9%
	SO <sub>2</sub>	1,28E+08	11%	1,28E+08	-11%	11%
	COVNM	7,55E+07	23%	7,56E+07	-20%	26%
Scénario 2	CH <sub>4</sub>	1,35E+07	30%	1,35E+07	-29%	29%
	NO <sub>x</sub>	8,54E+07	16%	8,55E+07	-16%	16%
	CO	4,43E+08	14%	4,43E+08	-14%	14%
	CO <sub>2</sub>	2,90E+10	5%	2,90E+10	-4%	5%
	SO <sub>2</sub>	1,28E+08	6%	1,28E+08	-6%	5%
	COVNM	7,55E+07	12%	7,55E+07	-11%	11%
Scénario 3	CH <sub>4</sub>	1,35E+07	32%	1,35E+07	-33%	32%
	NO <sub>x</sub>	8,54E+07	10%	8,53E+07	-10%	10%
	CO	4,43E+08	23%	4,42E+08	-22%	22%
	CO <sub>2</sub>	2,90E+10	5%	2,90E+10	-5%	5%
	SO <sub>2</sub>	1,28E+08	8%	1,28E+08	-8%	7%
	COVNM	7,55E+07	30%	7,53E+07	-23%	35%

Tableau 2.22: Incertitudes calculées pour chaque composé en fonction du scénario et de la méthode utilisée.

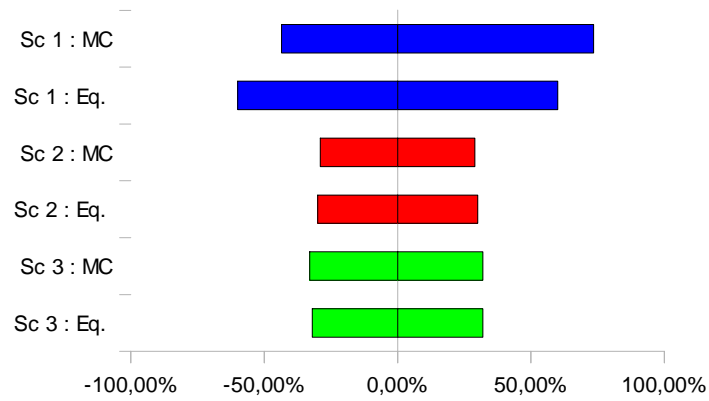


Figure 2.13: Incertitudes sur les émissions de CH<sub>4</sub> (MC : Méthode Monte-Carlo, Eq. : Méthode de propagation des erreurs)

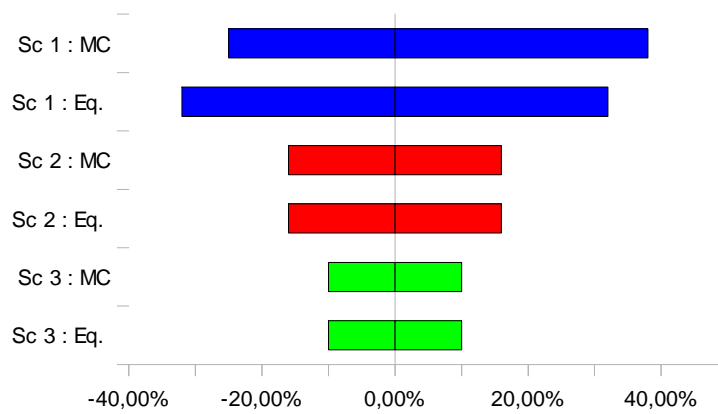


Figure 2.14: Incertitudes sur les émissions de NO<sub>x</sub>

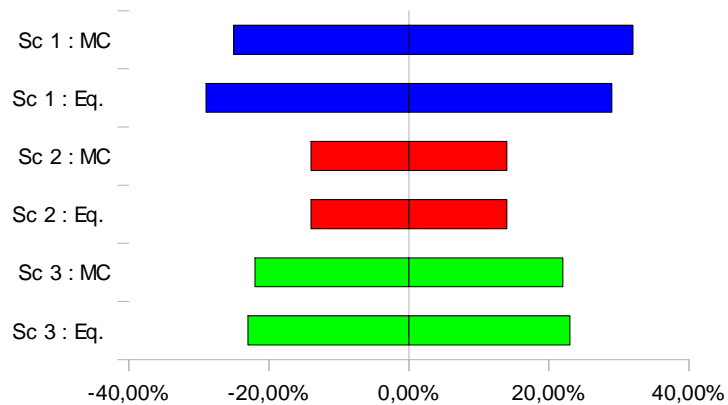


Figure 2.15: Incertitudes sur les émissions de CO

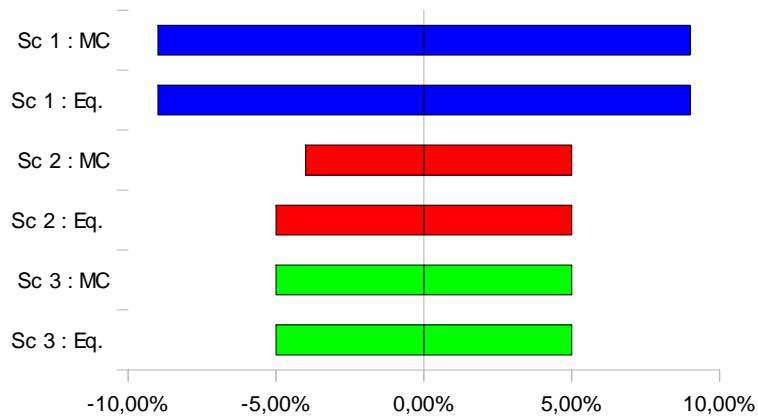


Figure 2.16: Incertitudes sur les émissions de CO<sub>2</sub>

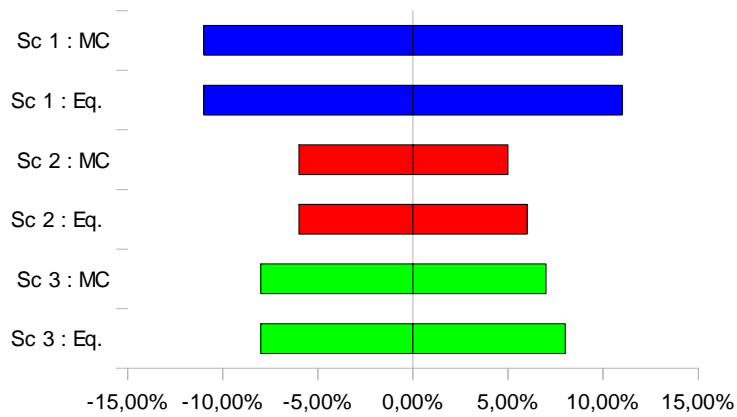


Figure 2.17: Incertitudes sur les émissions de SO<sub>2</sub>

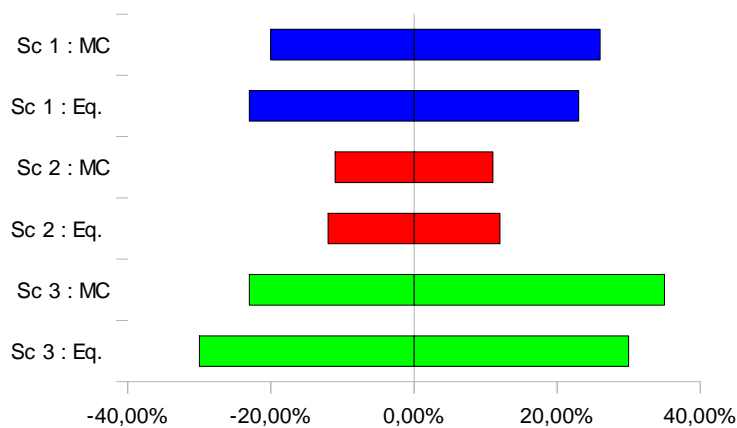


Figure 2.18: Incertitudes sur les émissions de des COVNM



Les valeurs obtenues par les deux méthodes sont proches quel que soit le scénario considéré. Néanmoins, lorsque l'incertitude est élevée, la méthode Monte-Carlo a tendance à déplacer les intervalles d'incertitude vers des valeurs supérieures à la moyenne (cf. figures 2.13, 2.14, 2.15 et 2.16). Cet effet est dû à l'utilisation de distributions log-normales pour les paramètres ayant des incertitudes élevées.

En comparant les résultats des deux premiers scénarios, les incertitudes entre le premier et le deuxième scénario sont pratiquement divisées par deux, soit le même ordre de grandeur que la diminution affectée au niveau des incertitudes sur les données d'entrée.

Les résultats du scénario 3 donnent en moyenne des incertitudes plus faibles par rapport au premier scénario pour les différents composés, à l'exception des composés organiques volatiles non méthaniques. Elles sont néanmoins supérieures aux valeurs trouvées à partir du scénario 2, sauf pour les oxydes d'azotes. En effet, dans le cas des NOx, la moitié des émissions proviennent du secteur des transports routiers. Les meilleurs résultats du scénario 3 (réaliste) par rapport au scénario 2 (optimiste) proviennent du fait que les incertitudes utilisées en entrée par le scénario 3 sont inférieures à celle utilisées par le scénario 2 pour le secteur des transports routiers et équivalentes pour les autres secteurs.

Les scénarios 1 et 2 sont les plus rapides à mettre en œuvre, ils sont tous les deux basés sur des valeurs par défaut pour les incertitudes sur les données d'entrée utilisées pour construire le cadastre d'émissions. Ils permettent d'obtenir une première estimation des incertitudes sur les données d'émissions.

Le scénario 3 utilise des incertitudes sur les données d'entrée spécifiques à l'inventaire d'émissions ESCOMPTE. Les incertitudes associées aux facteurs d'émissions et activités de l'inventaire sont spécifiques aux méthodologies utilisées lorsqu'elles étaient disponibles. De plus, ce scénario est basé sur l'analyse de sensibilité réalisée à partir du scénario 1 afin de se focaliser sur les sources les plus incertaines. Cette approche est plus conforme à la réalité, mais beaucoup plus longue à mettre en place car il devient nécessaire de rechercher les incertitudes spécifiques à toutes les données d'entrée utilisées.

## **4 Détermination des incertitudes dans les inventaires d'émissions à l'échelle régionale : application au cadastre Nord-Pas-de-Calais (NPDC).**

### **4.1 Description du cadastre NPDC**

La région Nord-Pas-de-Calais est la quatrième région de France la plus peuplée avec environ 4 millions d'habitants. Elle est fortement industrialisée avec des activités marquées notamment dans la sidérurgie, le textile et la pétrochimie. L'agriculture est aussi très présente surtout dans la partie sud de la région (essentiellement le Pas-de-Calais) avec des cultures de céréales, betteraves, légumières et des élevages principalement de bovins et de volailles.

L'inventaire de la région Nord Pas-de-Calais couvre une surface de 12 414 km<sup>2</sup> et recense 16 composés ou familles de composés, parmi lesquels le méthane (CH<sub>4</sub>), le monoxyde et dioxyde de carbone (CO et CO<sub>2</sub>), les oxydes d'azotes (NO<sub>x</sub>), le dioxyde de soufre (SO<sub>2</sub>), les composés organiques volatils non méthaniques (COVNM), l'ammoniac (NH<sub>3</sub>), le protoxyde d'azote (N<sub>2</sub>O), les particules en suspension totales (TSP), le chlorure d'hydrogène (HCl), le fluorure d'hydrogène (HF), les métaux lourds (Pb, Zn, Cd, Hg) et les dioxines ou composés assimilés (DXN). Le cadastre a été élaboré par Yann MARTINET (*Martinet, 2004; Martinet 2005*) pendant la période de 2001 à 2004.

### **4.2 Détermination de l'incertitude**

L'objectif de l'étude a été d'obtenir une première estimation des incertitudes sur les émissions des sources fixes de l'inventaire de la région Nord-Pas-de-Calais et de déterminer les secteurs pour lesquels des améliorations seraient bénéfiques pour la diminution de l'incertitude totale du cadastre.

La détermination de l'incertitude a porté sur 8 composés ou familles de composés de cet inventaire d'émissions, le méthane (CH<sub>4</sub>), le monoxyde et dioxyde de carbone (CO et CO<sub>2</sub>), les oxydes d'azotes (NO<sub>x</sub>), le dioxyde de soufre (SO<sub>2</sub>), les composés organiques volatils non méthaniques (COVNM), l'ammoniac (NH<sub>3</sub>) et le protoxyde d'azote (N<sub>2</sub>O).

#### 4.2.1 Méthode et incertitudes utilisées.

L'inventaire se présente sous la forme d'une collection de fichiers EXCEL contenant l'ensemble des sources d'émissions du cadastre. Chaque fichier est spécifique à un secteur d'activités et classé par son code SNAP de niveau 3 ou niveau 2, suivant la finesse des renseignements disponibles lors de la création du cadastre.

##### 4.2.1.a Affectation des incertitudes aux données d'entrée du cadastre.

Les valeurs des activités et des facteurs d'émissions étant disponibles, il a été possible de fixer une incertitude spécifique pour chacun de ces paramètres. Les valeurs d'incertitudes utilisées pour les facteurs d'émissions sont celles définies par le rapport « Good practice guidance for CLRTAP Emission Inventories » (*van Aardenne 2001*) qui propose des classes d'incertitudes par catégorie SNAP (cf. tableau 2.3 du paragraphe 3.21). Pour les activités, l'incertitude est fixée parmi 3 classes, en fonction des sources d'informations et de la méthode utilisée pour déterminer leurs valeurs. Les 3 classes, ainsi que leur incertitude associée sont résumées dans le tableau 2.23.

<i>Classe d'incertitude</i>	<i>Critère de sélection</i>	<i>Demi-intervalle de confiance à 95%</i>
A	données directes	20%
B	nécessite une opération de transformation, pour obtenir l'activité en unités correspondantes au facteur d'émissions (par exemple passage d'un nombre de salariés vers une consommation énergétique).	40%
C	nécessite plusieurs opérations de transformations, avec des approximations supplémentaires.	60%

Tableau 2.23: Incertitudes par défaut sur les activités associées à chaque classe.

##### 4.2.1.b Propagation de l'incertitude.

Afin d'effectuer le calcul de l'incertitude, pour chaque composé et sur l'ensemble de l'inventaire, la méthode de la propagation des erreurs, décrite dans le paragraphe 2.1.1, a été utilisée. Dans un premier temps, les incertitudes sur les facteurs d'émissions et les activités sont combinées en utilisant la règle B. Ensuite, les incertitudes sur les émissions sont associées entre elles grâce à la règle A pour obtenir tout d'abord les incertitudes aux différents niveaux de détails des activités (niveau SNAP 1 et 2) et finalement l'incertitude globale sur l'ensemble de l'inventaire.

## 4.2.2 Résultats

Le tableau 2.24 donne les émissions et leurs incertitudes associées pour l'ensemble des composés ou familles de composés étudiés. Seules les sources fixes ont été prises en compte pour les calculs effectués.

<i>Composé</i>	<i>Émissions (tonnes/an)</i>	<i>Incertitude associée (+/-)</i>
CO	233612	78%
CO <sub>2</sub>	25062376	61%
SO <sub>2</sub>	77080	57%
NO <sub>x</sub>	44944	75%
COV	434863	71%
CH <sub>4</sub>	100963739	133%
NH <sub>3</sub>	32097984	197%
N <sub>2</sub> O	18537830	183%

Tableau 2.24: Valeurs des émissions et incertitude associée pour chaque composé étudié pour les sources fixes

Pour chaque composé ou famille de composés, il est possible de visualiser la contribution de chaque secteur d'activités (code SNAP niveau 1) à l'incertitude totale. Ne pouvant utiliser une analyse de sensibilité, l'équation suivante est utilisée pour déterminer l'influence de chaque secteur d'activité sur l'incertitude des émissions de chaque composé.

$$\frac{I(E_{A,C})}{I(E_{T,C})} = C_{A,C} \quad (2.4)$$

avec

$I(E_{A,C})$  : incertitude sur les émissions du composé C issues de l'activité A (classée par code SNAP niveau 1)

$I(E_{T,C})$  : incertitude sur les émissions totales du composé C.

$C_{A,C}$  : contribution de l'activité A à l'incertitude totale pour le composé C.

Par rapport à une analyse de sensibilité effectuée après une simulation Monte-Carlo (cf. paragraphe 2.2.2), cette approche est moins précise. En effet, ce n'est pas l'influence de chaque contribution de chaque sous-secteur qui est mise en évidence, mais seulement celles des grands secteurs d'activités. Néanmoins, de cette manière, il est déjà possible d'identifier les grands secteurs d'activités qui contribuent le plus à l'incertitude totale de chacun des composés.

L'importance des émissions d'un secteur d'activités et sa contribution à l'incertitude totale sont souvent très liées : Les figures 2.19 à 2.26 montrent, pour chaque composé ou famille de composés, l'influence (sous forme de pourcentage) de chaque secteur d'activités à l'incertitude totale.

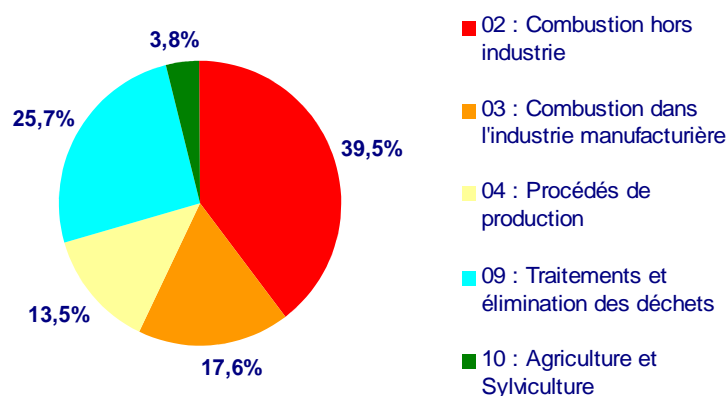


Figure 2.19: Répartition par activité de l'incertitude sur les émissions de monoxyde de carbone (CO)

L'incertitude totale pour le monoxyde de carbone est estimée à  $\pm 78\%$ . Les principales sources d'incertitudes proviennent des activités de combustion (SNAP 02 et 03) qui représentent à elles seules déjà plus de la moitié de l'incertitude. Un quart (25,7 %) provient du traitement et de l'élimination des déchets (SNAP 09). Le reste est issu des procédés de production (13,5 %)(SNAP 04) et du secteur agricole (SNAP 10) pour une faible part (3,8 %).

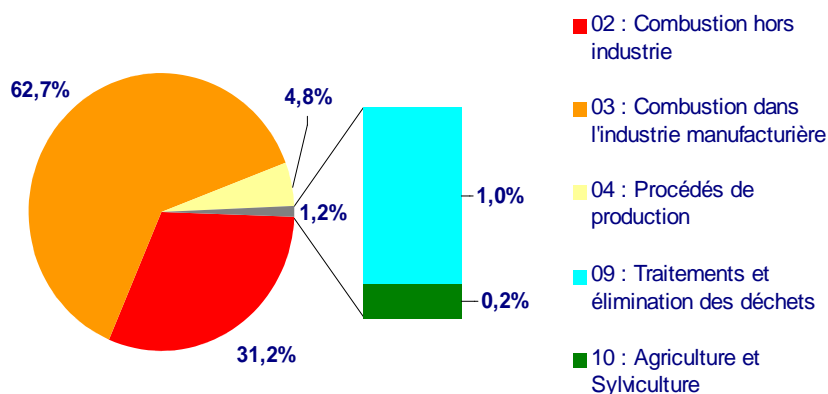


Figure 2.20: Répartition par activité de l'incertitude sur les émissions de dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>).

L'incertitude sur les émissions de dioxyde de carbone provient pour presque deux tiers (62,7 %) des activités de combustion dans l'industrie manufacturière (SNAP 03) et pour environ un tiers (31,2 %) des activités de combustion hors industrie (SNAP 02). 4,8 % sont issus des procédés de production (SNAP 04). Enfin, une très faible partie (6 %) est due aux secteurs des traitements et d'élimination des déchets (1,0 %) (SNAP 09) et des activités agricoles ou de sylviculture (0,2 %) (SNAP 10). L'incertitude totale associée aux émissions de dioxyde carbone est  $\pm 61$  %.

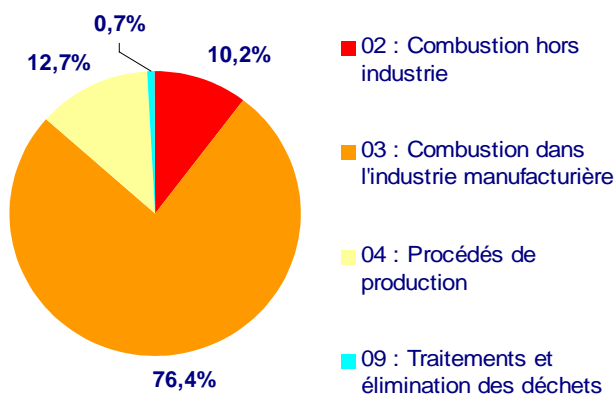


Figure 2.21: Répartition par activité de l'incertitude sur les émissions de dioxyde de soufre (SO<sub>2</sub>).

L'incertitude totale sur les émissions de dioxyde de soufre est évaluée à  $\pm 57$  %. Plus de 75 % de l'incertitude provient des activités de combustion dans l'industrie manufacturière (SNAP 03). Les procédés de production (12,7 %) (SNAP 04) et le secteur des combustions

hors industrie (10,2%) (SNAP 02) totalisent moins d'un quart de l'incertitude totale. Une infime part, 0,7 % est due au secteur de traitements et d'élimination des déchets.

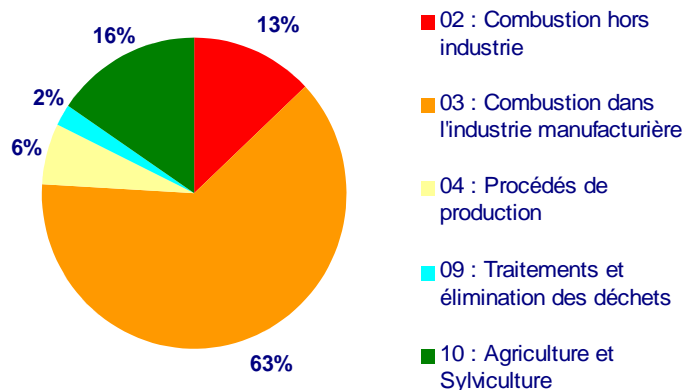


Figure 2.22: Répartition par activité de l'incertitude sur les émissions des oxydes d'azotes (NOx).

Dans le cas des émissions des oxydes d'azotes dont l'incertitude totale est fixée à  $\pm 75\%$ , la principale source d'incertitude provient là aussi des secteurs de la combustion : 63 % étant issu des activités de combustion dans l'industrie manufacturière (SNAP 03) et 13 % dépendant des activités de combustion hors industrie (SNAP 02). La part de l'agriculture et de la sylviculture s'élève à 16 %, les procédés de production représentent 6 % et le traitement et l'élimination des déchets 2 % de l'incertitude totale sur les émissions des oxydes d'azotes.

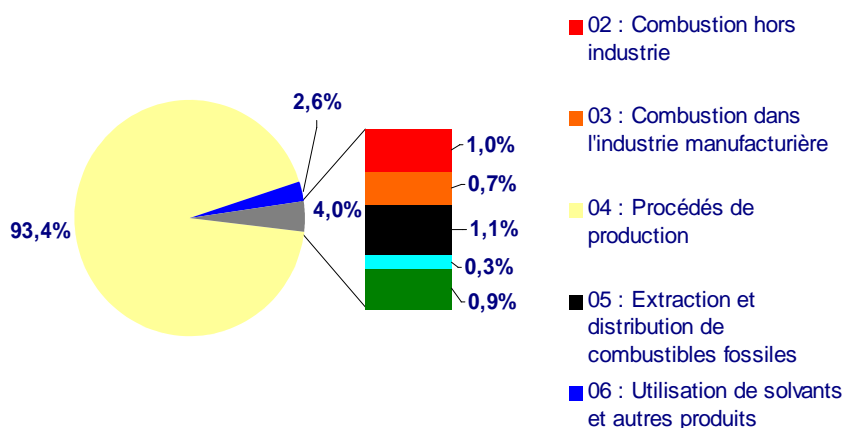


Figure 2.23: Répartition par activité de l'incertitude sur les émissions des composés organiques volatiles non méthaniques (COVNM).

L'incertitude totale sur les émissions des composés organiques volatiles non méthaniques est estimée à  $\pm 71$  %. La principale source d'incertitude (93,4 %) provient des procédés de production (SNAP 04). Le reste (6,6 %) se partage entre les autres secteurs d'activités dont les contributions à l'incertitude totale ne dépassent pas 3 %.

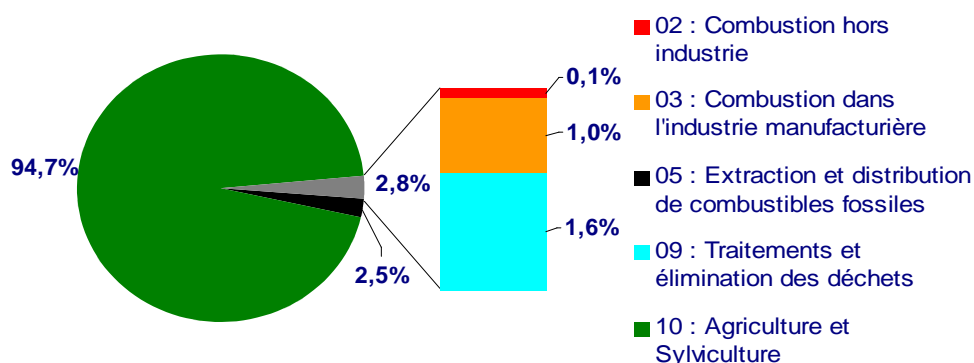


Figure 2.24: Répartition par activité de l'incertitude sur les émissions de méthane ( $CH_4$ ).

La principale source d'incertitude sur les émissions de méthane émane très majoritairement des activités du secteur de l'agriculture et de la sylviculture (SNAP 10) : elle représente 94,7 % de l'incertitude. Les 5 % restant se partagent entre les activités d'extraction et de distribution de combustibles fossiles (2,5 %) (SNAP 05), le secteur du traitement et de l'élimination des déchets (1,6 %) (SNAP 09), et les activités de combustion (1,1 %) (SNAP 02 et 03). L'incertitude sur les émissions de méthane est évaluée à  $\pm 133$  %.

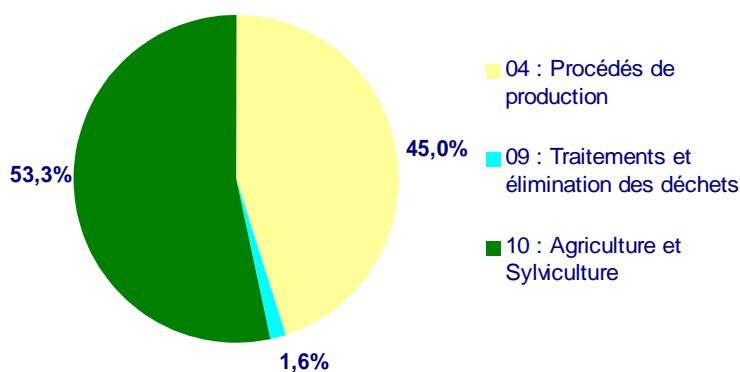


Figure 2.25: Répartition par activité de l'incertitude sur les émissions d'ammoniac ( $NH_3$ ).

Dans le cas des émissions d'ammoniac, l'incertitude sur les émissions est particulièrement



élevée, et estimée à  $\pm 197\%$ . Les deux principales sources d'incertitudes sont d'une part, le secteur de l'agriculture et de la sylviculture (53,3 %) (SNAP 10) et d'autre part, les procédés de production (45,0 %) (SNAP 04). Une toute petite part (1,6 %) est due aux activités de traitements et d'élimination des déchets (SNAP 09).

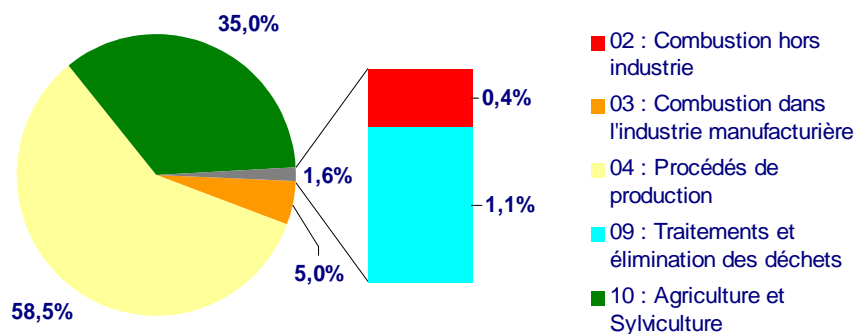


Figure 2.26: Répartition par activité de l'incertitude sur les émissions de protoxyde d'azote ( $N_2O$ ).

L'incertitude sur les émissions de protoxyde d'azote est majoritairement influencée par les émissions issues des procédés de production (SNAP 04) avec 58,5 % et par le secteur de l'agriculture et de la sylviculture avec 35 % (SNAP 10). Les activités de combustion dans l'industrie manufacturière (SNAP 03) représentent 5,0 % de l'incertitude totale. Le reste des activités (SNAP 02 et SNAP 04) ne représentent que 1,5 %. L'incertitude totale sur les émissions de protoxyde d'azote est de  $\pm 183\%$ .

## **5 Conclusion**

Dans ce chapitre, il a été illustré que dans le cas d'applications scientifiques, l'incertitude est directement liée à son exactitude. Cette exactitude est liée d'une part, à la structure de l'inventaire, c'est-à-dire à la manière dont l'inventaire est construit. Lors de sa conception, les erreurs peuvent provenir de l'agrégation des émissions, de l'oubli de sources d'émissions et des erreurs et approximations lors des calculs d'émissions. L'exactitude est d'autre part liée à l'incertitude sur les données d'entrée utilisées pour construire l'inventaire (facteurs d'émissions et données d'activités). Lorsque l'inventaire est construit avec soin le premier type d'erreur est difficilement identifiable et donc difficilement quantifiable. Il n'est généralement pas pris en compte. L'incertitude sur les données d'entrée est facilement identifiable. A chaque donnée d'entrée, une incertitude peut être associée. Par contre, cette dernière s'avère plus difficilement quantifiable. Dans notre cas, pour chacun des inventaires étudiés, toutes les données n'ont pas toujours été disponibles et ont dû, par conséquent, être estimées par l'utilisation d'un barème.

Deux méthodes ont été décrites pour combiner les incertitudes des données d'entrée afin d'obtenir une estimation de l'incertitude sur l'ensemble de l'inventaire : la méthode d'agrégation des erreurs et la méthode Monte-Carlo. La première méthode est relativement simple à mettre en œuvre une fois que l'ensemble des incertitudes sur les données d'entrée sont estimées. La méthode Monte-Carlo est plus longue à mettre en place, mais permet ensuite de réaliser une étude de sensibilité. De plus, elle n'est pas sensible à d'éventuelles corrélations entre différentes sources.

## 6 **Bibliographie du chapitre 2**

**van Aardenne J.**, Phd thesis : Uncertainties in emission inventories, Wageningen University - TNO Institute of Environmental Sciences, **2002**.

**van Aardenne J.**, Tooly L., Rypdal K., Pulles T., Good Practice Guidance for CLRTAP Emission Inventories. Draft chapter for the UNECE Corinair Guidebook on Emission Inventories, **2001**, European Topic Centre on Air and ClimateChange (ETC/ACC), Editors: Tinus Pulles and John van Aardenne.

**Amstel A.**, v.; Olivier J., Janssen L., Analysis of differences between national inventories and an Emissions Database for Global Atmospheric Research (EDGAR), **1999**, Environmental Science & Policy, 2, 275-293.

**ARIA Technologies SA**, IER Stuttgart TNO, Etablissements des cadastres d'émissions atmosphériques du programmes de recherche ESCOMPTE Lots 2 et 4, **2002**.

**Buffard F.**, Baradel M., Programme ESCOMPTE, Réalisation de cadastres d'émission : Rapport Final pour le compte de L'Ademe, **2003**, MVA Limited.

**Cros B.**, Durand P., Cachier H., Drobinsky Ph. et al., The ESCOMPTE program: an overview, **2004**, Atmospheric Research, 69, 241-279.

**Duboudin C.**, Crozat C., Noppe J., Analyse de la méthodologie COPERT III : Analyse d'incertitude et de sensibilité, **2002**, Société de Calcul Mathématique.

**EPA**, Evaluating the uncertainty of emission estimates, EIIP emission inventory improvement program, **1996**,  
Disponible en ligne <http://www.epa.gov/ttn/chief/eiip/techreport/volume06/vi04.pdf>.

**EPA**, EIIP Recommended approach to using the data attribute rating system (dars) EIIP emission inventory improvement program, **1996a**, Disponible en ligne <http://www.epa.gov/ttn/chief/eiip/techreport/volume06/viapp-f.pdf>

**François S.**, Grondin E., Fayet S., Ponche J.-L., The establishment of the atmospheric emission inventories of the ESCOMPTE program, **2005**, Atmospheric Research, 74, 5-35.

**van Gijlswijk R.**, Coenen P., Pulles T., van der Sluijs, P. Uncertainty Assessment of NO<sub>x</sub>, SO<sub>2</sub> and NH<sub>3</sub> Emissions in the Netherlands, **2004**, TNO and Copernicus Institute Research Report.

**Hickman J.**, Hassel D., Joumard R., Samaras Z. Sorenson S., Methodology for

calculating transport emissions and energy consumption, **1999**, Transport research Laboratory.

**IPPC**, Penman J, Kruger D, Galbally I, Hiraishi T et al, Good Practice Guidance and Uncertainty Management in National Greenhouse Gas Inventories (Good Practice Report), IPCC National Greenhouse Gas Inventories Programme, Published for the IPCC by the Institute for Global Environmental Strategies, Japan, **2000**, ISBN 4-88788-000-6.

**Iversen T.**, Modelled and measured transboundary acidifying pollution in Europe - Verification and trends, **1993**, Atmospheric Environment, 27A, (6), 889-920

**Janssen H. J. M.**, Olivier G. J., van Amstel R., Comparison of CH<sub>4</sub> emission inventory data and emission estimates from atmospheric transport models and concentration measurements, **1999**, Environmental Science & Policy, 2, 295-314

**Martinet Y.**, Conception, validation et exploitation d'un cadastre des émissions de polluants atmosphériques sur la région Nord-Pas-de-Calais, (Thèse de doctorat, Université des Sciences et Technologies de Lille), **2004** Disponible en ligne <https://iris.univlille1.fr/dspace/bitstream/1908/972/1/50376-2004-Martinet.pdf> (Page consultée le 25 septembre 2007).

**Martinet Y.**, Wroblewski A., Kergomard C., Ponche J-L., Nollet V., Dechaux J-C., Inventaire spatialisés de polluants atmosphériques : élaboration et utilisation dans des systèmes d'informations géographiques., **2005**, Revue Internationale de Géomatique (Ed. Lavoisier, Paris), 15(1), 63-80.

**OFEFP**, Office fédéral de l'environnement, des forêts et du paysage, Schweiz Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft, Coefficients d'émission des sources stationnaires : manuel, **1995**, 343p.

**Olivier J.**, Bouwman A.F., Van der Maas C.w.M., Berdowski J.J.M., et Al, Applications of EDGAR : Including a description of EDGAR 3.2, **2002**, National Institute for Public Health and the Environment (RIVM)

**Rypdal K.**, & Flugsrud K., Sensitivity analysis as a tool for systematic reductions in greenhouse gas inventory uncertainties Environmental, **2001**, Science & Policy, 4, 117-135

**Schöpp W.**, Klimont Z., Suutari R., Cofala J. Uncertainty analysis of emission estimates in the RAINS integrated assessment model, **2005**, Environmental Science & Policy, 8 601-613

**UNECE/EMEP** Task Force on Emissions Inventories and Projections, EMEP/CORINAIR Emission Inventory Guidebook, **2005**, European Environment

Agency.

**Vermeulen** A. T.; Eisma R.; Hensen A., Slanina J., Transport model calculations of NW-European methane emissions *Environmental, Science & Policy*, 2, 1999, 315-324

## **Chapitre 3 : Sensibilité des modèles de qualité de l'air aux incertitudes sur les cadastres : application au cadastre Nord-Pas-de-Calais et au modèle CHIMERE.**

Ce chapitre décrit le fonctionnement général d'un modèle de qualité de l'air et quelles sont les sources d'incertitude pour un tel modèle photochimique. L'accent a été mis tout particulièrement sur les données d'entrée issues des cadastres d'émissions et leurs influences sur la sensibilité du modèle. Deux méthodes sont présentées et appliquées au cadastre Nord-Pas-de-Calais et au modèle photochimique CHIMERE pour évaluer les incertitudes de celui-ci liées aux données de l'inventaire d'émissions utilisé.

## **1.1 Modélisation de la qualité de l'air et incertitude.**

### **1.1.1 Modèle de la qualité de l'air.**

Un modèle de qualité de l'air est une représentation sous forme d'équations des phénomènes physiques et chimiques qui interviennent dans l'atmosphère et en particulier, à l'interface entre sol et atmosphère. Un modèle de ce type se doit, dans la mesure du possible, d'intégrer à la fois les émissions, le transport, les transformations chimiques et la déposition des différents composés prioritaires de l'atmosphère et/ou présentant un intérêt particulier dans le contexte de l'étude menée. Il peut être considéré comme un laboratoire numérique intégrant les différentes connaissances sur la manière dont les processus chimiques et physiques affectent les concentrations et l'évolution de ces concentrations pour les différents composés chimiques atmosphériques.

Les modèles permettent de répondre à différents besoins en fonction des objectifs poursuivis.

- D'un point de vue politique :
  - ils permettent de fournir une aide à la décision pour la mise en place de nouvelles réglementations par la possibilité de réaliser des études d'impact. Dans ce cas, la modélisation va permettre de « visualiser » l'influence d'une modification des émissions, (une réduction d'un ou plusieurs composés en règle générale) sur les concentrations des principaux polluants de l'atmosphère. Ils permettent par exemple de prévoir l'intérêt et le champ d'activité d'une décision réglementaire.
  - Ils sont aussi utilisés pour obtenir des prévisions journalières, dans un but d'information du public, afin de pouvoir donner des indications préventives.
- D'un point de vue scientifique :
  - les modèles permettent d'étudier et d'approfondir la connaissance des processus chimiques intervenant dans l'atmosphère. Ils permettent également

de tester différents mécanismes chimiques afin de mieux connaître les différentes interactions hors équilibre entre les composants atmosphériques.

- Par ailleurs, ils contribuent à améliorer la connaissance des impacts potentiels directs (retombées, concentrations) que génèrent les émissions et les processus de transfert dans l'atmosphère.

#### 1.1.1.a Description générale

Le fondement des modèles photochimiques est basé sur la description de l'évolution des concentrations chimiques dans l'atmosphère en fonction du temps. La description mathématique de la dynamique des gaz et des aérosols dans l'atmosphère est obtenue par l'utilisation des propriétés de conservation de masse, des moments cinétiques et de l'énergie.

Le transport des polluants est suivi temporellement et spatialement par l'utilisation de l'équation de dispersion atmosphérique (équation : 3.1) aussi appelée équation de transport-diffusion (*Fine, 2003*).

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial x_j}(u_j \partial C_i) + \frac{\partial}{\partial x_j} \left( K_{ij} \frac{\partial C_i}{\partial x_j} \right) + R_i + S_i + L_i \quad (3.1)$$

avec :

j = x,y,z les 3 coordonnées dans l'espace  
i = 1,..., n espèces de polluants

L'équation de transport-diffusion décrit la variation de la concentration  $C_i$  du polluant  $i$  en fonction du temps en tenant compte de 5 processus, respectivement :

- l'advection par le vent ( $u_j$ )
- la diffusion par turbulence caractérisée par le gradient de transport ( $K_j$ )
- la production et la destruction du composé  $i$  par l'ensemble des réactions ( $R_i$ )
- les émissions du composé  $i$  par les sources ( $S_i$ )
- les dépôts du composé  $i$  ( $L_i$ )

Les concentrations de chaque polluant sont décrites par une équation de transport-diffusion, formant ainsi un jeu d'équations différentielles non linéaires, qui satisfont aux relations de conservation dans un courant turbulent. Le couplage entre les différentes



équations résulte des réactions chimiques et constitue une des principales sources de non linéarité du système. De ce fait, le système d'équations ne peut être résolu que par l'utilisation de méthodes numériques non analytiques. A chaque pas de temps  $\Delta t$  d'une simulation, les concentrations de polluants sont réévaluées dans les différentes mailles tridimensionnelles de la grille, représentant un maillage régulier de la zone d'étude.

#### 1.1.1.b Les termes de transport (advection et turbulence)

Deux modes de transport sont généralement pris en compte par les modèles. D'une part, l'advection, qui correspond au déplacement horizontal des polluants par le vent (premier terme de l'équation 3.1). Le principal paramètre utilisé est la vitesse moyenne du vent.

D'autre part, les déplacements dus aux turbulences (deuxième terme de l'équation 3.1). Les flux turbulents sont plus difficiles à mesurer car ils dépendent d'interactions entre les conditions météorologiques et la topographie. En pratique, une « rugosité » est associée à la maille considérée à partir d'informations d'occupation des sols. Plus la surface est rugueuse, plus les turbulences deviennent importantes. Les principales limitations sont les informations disponibles à partir des modèles météorologiques (*Russel 1997*). Les hypothèses faites sont d'une part, que les turbulences sont stationnaires durant le pas temps utilisé (souvent 1h). D'autre part, les échelles spatiales et temporelles sont considérées comme grandes par rapport au temps moyen de résolution et la distance moyenne parcourue par le fluide de particules au cours de cette période.

#### 1.1.1.c Le terme de réactions

La description des réactions chimiques dans l'atmosphère est une des composantes principales des modèles de la qualité de l'air. En effet, la chimie atmosphérique met en jeu des milliers de composés chimiques et de réactions. En réalité, la connaissance de l'ensemble des composés émis dans l'atmosphère et des réactions qui s'y déroulent n'est que partielle. D'autre part, la prise en compte de la totalité de ces paramètres conduirait à des temps de calcul trop importants pour être utilisés raisonnablement dans un modèle.

Le jeu d'équations décrivant les mécanismes réactionnels considérés doit fournir une représentation moyenne de la dynamique chimique de l'atmosphère dans l'état actuel de la

connaissance et compatible avec un temps de calcul raisonnable. Il doit par ailleurs être adapté aux objectifs de l'étude dont fait partie la modélisation. Il existe de nombreux mécanismes réactionnels qui peuvent être utilisés par les modèles. Dans le cas du modèle CHIMERE (<http://www.lmd.polytechnique.fr/chimere/chimere.php>) (Schmidt, 2001), le mécanisme MELCHIOR2 est utilisé. Ce mécanisme prend en compte 44 espèces et 120 réactions. Il est dérivé du mécanisme MELCHIOR (Lattuati, 1997) basé sur 80 composés et plus de 300 réactions.

Les réactions atmosphériques qui sont prises en compte concernent :

- uniquement la phase gazeuse (réactions homogènes en phase gazeuse)
- les réactions hétérogènes de surface pour les aérosols liquides et / ou solides.
- les réactions homogènes en phase liquide dans les aérosols.

Un mécanisme réactionnel est un compromis entre une description la plus exhaustive possible de la chimie atmosphérique et un temps de calcul raisonnable, ce dernier augmentant avec le nombre d'espèces prises en compte. Par conséquent, les mécanismes réactionnels essaient de simplifier au maximum la description des réactions pour réduire le nombre d'espèces et le nombre d'équations prises en compte par le modèle, afin de limiter les temps de calcul, tout en essayant de conserver une description adéquate de la chimie atmosphérique.

Cette simplification peut être faite par différentes techniques dont :

- l'analyse de l'échelle de temps. Elle peut-être utilisée pour identifier et éliminer les espèces à courte durée de vie en supposant qu'elles sont dans un état quasi-stationnaire et en équilibre.
- des méthodes de regroupement. Les composés chimiques sont regroupés par classe de réactivité et de structures similaires. Par exemple, tous les alcanes peuvent être regroupés dans une même classe, les constantes des réactions sont alors calculées sur la base d'une moyenne pondérée de chacun des alcanes pris en compte. Ils peuvent aussi être regroupés par type fonctionnel. Cette approche est basée sur l'hypothèse que la réactivité de la molécule est dominée par les groupes fonctionnels qui la composent.
- une troisième méthode qui consiste à éliminer certaines espèces. Elle vise à retirer les espèces qui contribuent seulement de façon minoritaire à la concentration des espèces jugées importantes pour le processus étudié.

Le nombre d'équations prises en compte par le processus peut lui aussi être réduit en retirant les équations redondantes par une analyse en composantes principales du mécanisme réactionnel.

Les paramètres cinétiques des réactions sont déterminés expérimentalement et dépendent de la température ou du transfert radiatif.

#### 1.1.1.d Les émissions.

Les données utilisées sont issues de cadastres d'émissions. Ces inventaires spécialisés doivent être compatibles avec les mécanismes chimiques ainsi qu'avec les résolutions spatiale et temporelle requises par le modèle (cf. figure 3.1). Les composés du cadastre doivent correspondre aux réactifs des réactions chimiques c'est-à-dire aux polluants primaires. Une part importante de la qualité des résultats d'un modèle provient de la qualité des inventaires utilisés.

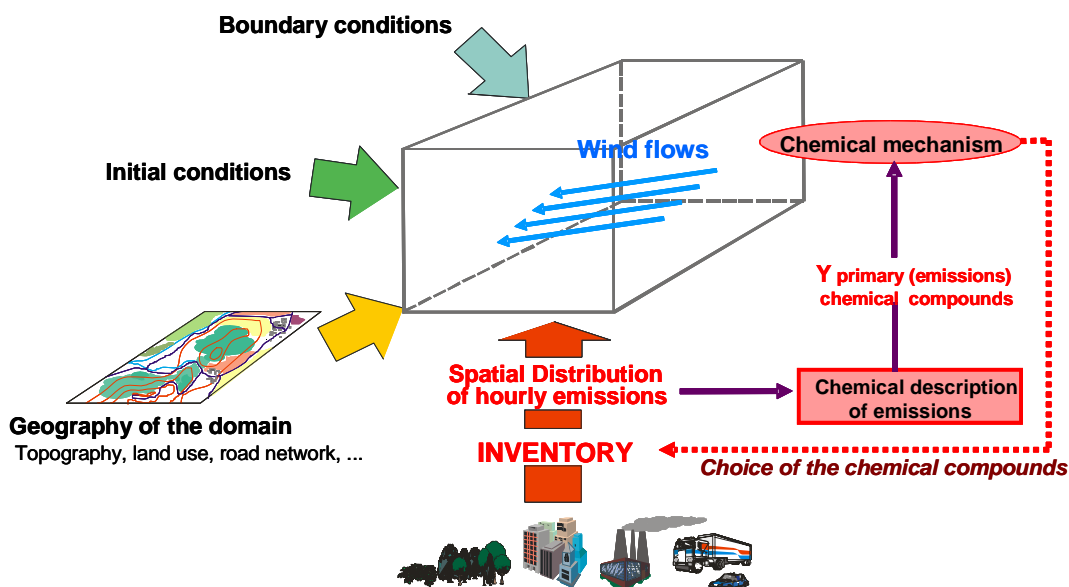


Figure 3.1: Place de l'inventaire d'émissions et du mécanisme chimique dans les modèles de la qualité de l'air (Ponche, 2005).

#### 1.1.1.e Les dépôts (secs et humides).

Ce terme décrit comment les polluants sont retirés de l'atmosphère par transport physique jusqu'à la surface du sol et les processus chimiques et physiques qui s'y produisent. Les dépôts humides sont différenciés des dépôts secs par le fait que les premiers font intervenir les hydrométéores (pluie, brouillard, embruns, nuages).

Concernant les dépôts secs, ils sont souvent décrits en modélisation par analogie aux résistances. Cette modélisation prend en compte 3 paramètres :

- la résistance aérodynamique, qui dépend principalement des turbulences atmosphériques,
- la résistance au transport dans la couche proche du sol,
- la résistance de la canopée (urbaine ou naturelle).

Concernant les dépôts humides ou le lessivage, les hydrométéores peuvent capter un certain nombre de composés gazeux ou se former autour de particules et provoquer leurs dépôts. Les dépôts humides sont difficiles à modéliser du fait des multiples phases qui interviennent (gaz, liquide et solide), des états possibles (gouttes d'eau composant les nuages, brouillard, pluie, neige, glace) et des nombreux processus en jeu. Pour les simulations de pics d'ozone de courtes périodes (quelques jours), les dépôts humides ne sont pas pris en compte, car en général ces épisodes ont lieu durant les périodes sèches. Pour des simulations de périodes plus longues, et/ou pour des périodes pluvieuses, les influences des dépôts humides peuvent devenir plus importantes. Ces processus sont modélisés par des paramètres de « lessivage » ou « wash-out » déterminés de manière empirique ou par calcul du taux de diffusion des polluants dans les gouttes d'eau. La simulation de ces phénomènes est rendue d'autant plus compliquée par le manque de connaissance des distributions en taille des gouttes d'eau et des cristaux de glace, ainsi que de la dynamique des nuages (*Fine 2003*).

#### 1.1.2 Incertitudes en modélisation de la qualité de l'air.

Elles peuvent être divisées en 2 catégories : les incertitudes sur les données d'entrée du modèle et celles issues de la formulation des modèles.

#### 1.1.2.a Incertitudes sur les données d'entrée

- Dans un premier temps, l'incertitude va être évaluée sur les émissions. Elles constituent un des points clés des modèles de qualité de l'air. Ces données proviennent d'inventaires d'émissions mais nécessitent en général un traitement pour les adapter au modèle. Les informations sur les émissions sont l'une des principales sources d'incertitude des modèles de qualité de l'air (*Russet 2000*). L'incertitude sur les inventaires d'émissions peut être très importante (paragraphe 1 du chapitre 2).
- L'incertitude sur les données météorologiques doit également être prise en compte. Les modèles photochimiques ont besoin de paramètres météorologiques avec un pas de temps généralement de l'ordre de l'heure pour chaque maille du domaine modélisé. Ces différents paramètres sont en général :
  - les champs de vents verticaux et horizontaux
  - la température, ou le gradient de températures
  - l'humidité
  - la hauteur de la couche de mélange (dans la troposphère)
  - les champs d'insolation solaire.

L'ensemble de ces données est en général obtenu par l'utilisation d'un modèle météorologique, souvent découplé du modèle photochimique. Les modèles météorologiques ne fournissent pas toujours l'ensemble des données nécessaires au modèle photochimique et certaines données doivent par conséquent être obtenues par paramétrisation.

- Enfin, l'incertitude sur les constantes de vitesse des réactions doit être estimée. Ces constantes sont déterminées de manière expérimentale et donc sujettes aux incertitudes expérimentales.

#### 1.1.2.b Incertitudes issues de la formulation du modèle

Les incertitudes résultantes de la formulation du modèle peuvent être dues :

- à une représentation erronée ou incomplète du phénomène modélisé. Une

représentation incomplète peut provenir du manque de connaissances ou de l'utilisation d'un modèle plus ou moins simplifié, afin de conserver des temps de calcul raisonnables.

– à la résolution numérique des systèmes d'équations. Les systèmes d'équations utilisés ne peuvent quasiment jamais être résolus de manière analytique. Il faut à ce moment recourir à des méthodes numériques, qui ne sont pas exactes, et qui de facto, introduisent des erreurs donc des incertitudes sur les valeurs calculées.

## **1.2 Application au cadastre Nord-Pas-de-Calais.**

### **1.2.1 Contexte de l'étude.**

Cette partie du travail a été réalisée en collaboration avec le Laboratoire de Physico-Chimie des Processus de Combustion et de l'Atmosphère (PC2A) de Lille. Ce laboratoire est chargé de mettre en place le modèle CHIMERE, notamment pour la surveillance de la qualité de l'air en région Nord-Pas-de-Calais. Une première estimation de la sensibilité du modèle CHIMERE aux incertitudes sur les valeurs des émissions du cadastre régional a été mise en œuvre. Le modèle CHIMERE est un modèle multi-échelles de chimie-transport, pouvant être utilisé pour des zones d'étude allant d'une échelle urbaine (100-200 km) à continentale (plusieurs milliers de km). Il a été développé spécifiquement pour l'Europe par l'Institut Pierre-Simon Laplace (IPSL/CNRS) et est utilisé aussi bien dans des projets de recherche que comme outil de prévision opérationnelle de la qualité de l'air.

### **1.2.2 Description et configuration de la simulation étudiée.**

Il s'agit d'évaluer l'influence des incertitudes des données d'émissions anthropiques sur la sensibilité du modèle. Dans un premier temps, le test a été effectué sur une période « normale », c'est-à-dire pour laquelle aucun dépassement de seuils d'alerte de pollution n'a été observé. La simulation est faite sur une période de 5 jours allant du 26 au 31 mars 2004. Elle porte sur le domaine « NPDC 1 » dont les caractéristiques sont définies dans le tableau 3.1. La zone d'étude est centrée sur la région Nord-Pas-de-Calais et prend en compte des parties de la région Picardie, du sud de la Belgique et de l'est de l'Angleterre (Comté du Kent).

<i>Caractéristiques</i>	<i>Domaine NPDC 1</i>
Longitude Est	-0,75° à 4,5°
Latitude Nord	48,64375° à 52,05625°
pas	0,1°
nombre de mailles	2200

Tableau 3.1: Caractéristiques du domaine NPDC1

### **1.2.3 La configuration du modèle**

La figure 3.2 représente l'ensemble des paramètres utilisés par le modèle CHIMERE. La version V200511B du modèle a été utilisée pour réaliser les différentes simulations. Cette version du modèle a été mise en œuvre par le PC2A et s'installe aisément sur un ordinateur utilisant un système d'exploitation « Linux ». Le modèle chimique, cœur du processus de modélisation, utilise le mécanisme MELCHIOR 2, qui est dérivé du mécanisme MELCHIOR. Il est basé sur 44 espèces chimiques différentes qui interviennent dans environ 120 réactions chimiques.

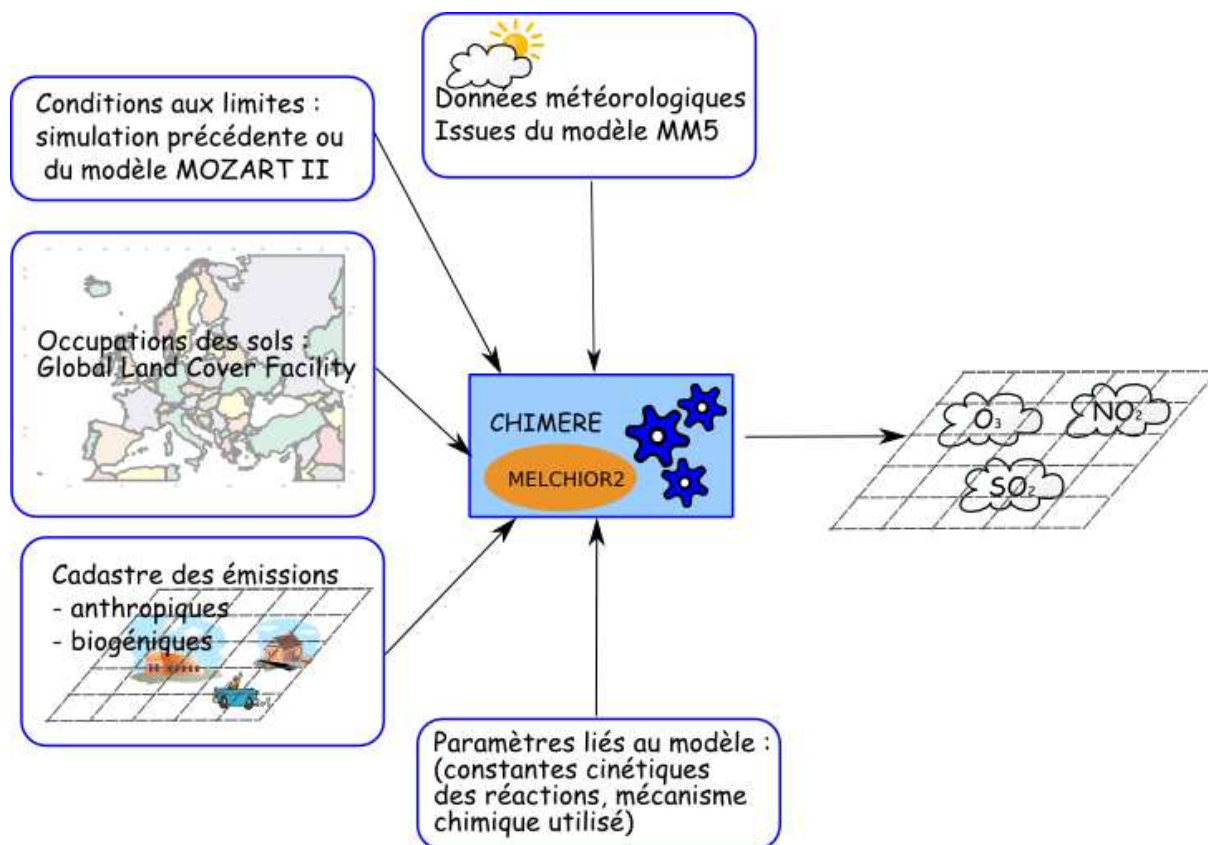


Figure 3.2: Principe du modèle CHIMERE.

Pour les simulations, le modèle a besoin des données d'entrée suivantes :

- les données météorologiques. Elles sont calculées au PC2A à l'aide du modèle météorologique MM5. Le modèle MM5 est développé par la « Pennsylvania State University » (PSU) et le « National Center for Atmospheric Research » (NCAR), afin de simuler la circulation atmosphérique à méso-échelle et à l'échelle régionale.
- les conditions aux limites de la zone simulée. Le modèle CHIMERE propose deux possibilités. La première est d'utiliser les données issues de calculs précédents sur un domaine plus large englobant le domaine simulé. La deuxième possibilité offerte par le modèle, celle adoptée dans cette étude, consiste à utiliser le jeu de conditions aux limites proposé par défaut et issu du modèle MOZART2 (Horowitz, 2003). Ces données sont fournies par l'Institut Max Plank d'Hambourg et sont accessibles avec le modèle CHIMERE.
- l'occupation des sols. Elle a été élaborée à partir de la base de données « Global Land



Cover Facility » (GCLF <http://glcf.umiacs.umd.edu/data/landcover>).

- les émissions.
  - Les émissions biogènes ont été calculées à l'aide d'un outil intégré dans le modèle CHIMERE, qui à partir des données d'occupation des sols, calcule les émissions biogènes pour la zone étudiée.
  - Les émissions anthropiques proviennent du cadastre régional. Elles sont formatées à l'aide d'un programme créé par le PC2A « cadastre.py » (cf. figure 3.3) écrit en langage Python et développé par Mathieu Gillot (*Gillot 2006*). Par défaut pour l'Europe, les outils du modèle CHIMERE permettent de créer un cadastre d'émissions à partir des données de l'inventaire d'émissions européen EMEP (*Mylona 1999*). Le programme du PC2A utilise les profils de spéciation et de répartition temporelle des outils du modèle CHIMERE et les applique aux données du cadastre régional. Il remplace ensuite les valeurs du cadastre par défaut par celles beaucoup plus spécifiques de l'inventaire régional. Pour les mailles extérieures à la région, les valeurs par défaut (du cadastre EMEP) sont conservées.

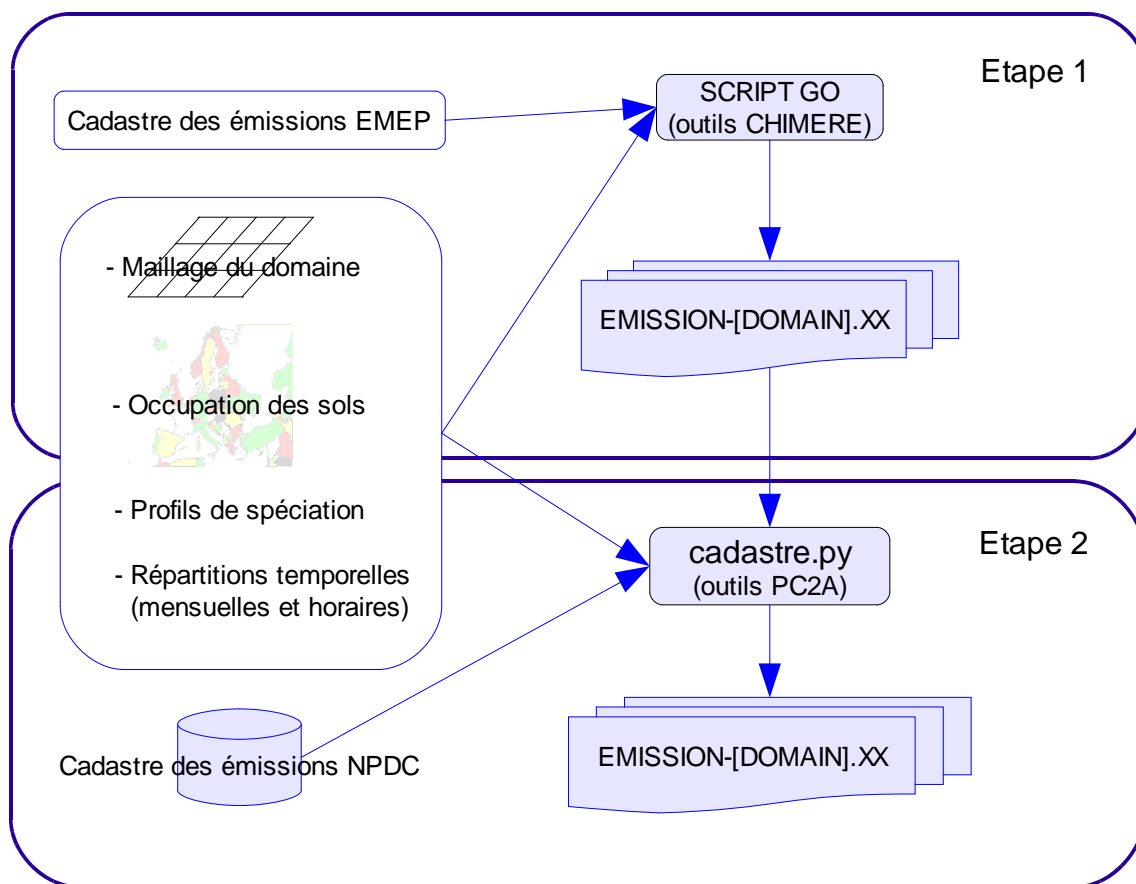


Figure 3.3: Préparation des données anthropiques d'émissions pour le modèle

#### 1.2.4 Méthodologie.

Afin de déterminer l'influence des incertitudes des données d'émissions anthropiques sur les résultats d'une simulation avec le modèle chimère, deux approches différentes ont été suivies. La première approche, appelée scénario « Min-Max » s'est intéressée aux variations extrêmes des données d'entrée. La seconde approche, appelée scénario « Monte-Carlo » a étudié l'effet de petites variations aléatoires sur l'ensemble des données d'entrée. Néanmoins, il a d'abord fallu fixer les incertitudes sur les valeurs des émissions des différents composés utilisées par le modèle et contenues dans le cadastre.

##### 1.2.4.a Incertitudes sur les données d'entrée utilisées.

La première étape consiste à définir des incertitudes pour les données d'entrée. Elles sont définies en fonction des résultats obtenus lors de la détermination des incertitudes sur les sources fixes du cadastre Nord-Pas-de-Calais. Pour les oxydes d'azote, le monoxyde de carbone et le dioxyde de soufre, ces incertitudes ont été fixées à plus ou moins 50 %. Les estimations des émissions d'ammoniac et de méthane étant plus incertaines, leur incertitude a été fixée à plus ou moins 80 %. Pour la famille des composés organiques volatils non méthaniques, l'incertitude a été évaluée à plus ou moins 100 %. de même que pour les particules. Pour la méthode Monte-Carlo, il a également été nécessaire de définir des fonctions de distribution (FDP). Pour éviter d'obtenir des valeurs négatives, des FDP « log-normales » ont été utilisées. Le tableau 3.2 résume les incertitudes adoptées pour chaque composé ou classe de composés, et les types de fonctions de distribution utilisées dans le cadre de la méthode Monte-Carlo.

<i>Composés présents dans l'inventaire</i>	<i>Composés utilisés par le modèle chimère</i>	<i>Incertitudes et fonctions de distribution associées</i>
/	PPM1	+/- 100 % log-normale
PM10 + fraction TSP (0,3)	PPM2	+/- 100 % log-normale
PM2,5 + fraction TSP (0,7)	PPM3	+/- 100 % log-normale
NO <sub>x</sub> NO <sub>2</sub> = 90%; NO = 9,2% et HONO = 0,8% de la masse des NO <sub>x</sub> en équivalents NO <sub>2</sub> .	NO NO <sub>2</sub> HONO	+/- 50 % log-normale
CO	CO	+/- 50 % log-normale
SO <sub>2</sub>	SO <sub>2</sub>	+/- 50 % log-normale
NH <sub>3</sub>	NH <sub>3</sub>	+/- 80 % log-normale
CH <sub>4</sub>	CH <sub>4</sub>	+/- 80 % log-normale
COVNM	C <sub>2</sub> H <sub>6</sub> , NC <sub>4</sub> H <sub>10</sub> , C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> , C <sub>3</sub> H <sub>6</sub> , APINEN, C <sub>5</sub> H <sub>8</sub> , OXYL, HCHO, CH <sub>3</sub> CHO, CH <sub>3</sub> COE, CH <sub>3</sub> OH, C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> OH	+/- 100 % log-normale

Tableau 3.2: Récapitulatif des incertitudes fixées pour les données d'entrée du modèle

1.2.4.b Scénario « Min-Max »

Pour ce scénario, les outils fournis avec le modèle CHIMERE ont été utilisés, ce qui a permis de générer 12 fichiers (un par mois) contenant les concentrations horaires pour chaque espèce, dans chaque maille et suivant trois profils de journée : jours de semaine, samedi, dimanche et jours fériés. Les fichiers « émissions EMEP » contiennent 2 hauteurs d'émissions, mais dans nos simulations, seul le premier niveau (sol) est utilisé. La structure du fichier est résumée ci-dessous (figure 3.4). Ces fichiers contiennent les émissions anthropiques qui sont utilisées comme données d'entrée du modèle.

				Niveau 1	Niveau 2	
<b>22 espèces</b>	<b>espèce 1</b>	<b>3 profils</b>	<b>Jours de semaine</b>	Maille 1	24 valeurs (1 par heure)	24 valeurs (1 par heure)
				...	24 valeurs (1 par heure)	24 valeurs (1 par heure)
				Maille n	24 valeurs (1 par heure)	24 valeurs (1 par heure)
		<b>Samédi</b>	Maille 1	24 valeurs (1 par heure)	24 valeurs (1 par heure)	
			...	24 valeurs (1 par heure)	24 valeurs (1 par heure)	
			Maille n	24 valeurs (1 par heure)	24 valeurs (1 par heure)	
		<b>Dimanche</b>	Maille 1	24 valeurs (1 par heure)	24 valeurs (1 par heure)	
			...	24 valeurs (1 par heure)	24 valeurs (1 par heure)	
			Maille n	24 valeurs (1 par heure)	24 valeurs (1 par heure)	
	...	...	...	...	...	...

Figure 3.4: Structure des fichiers EMISSIONS

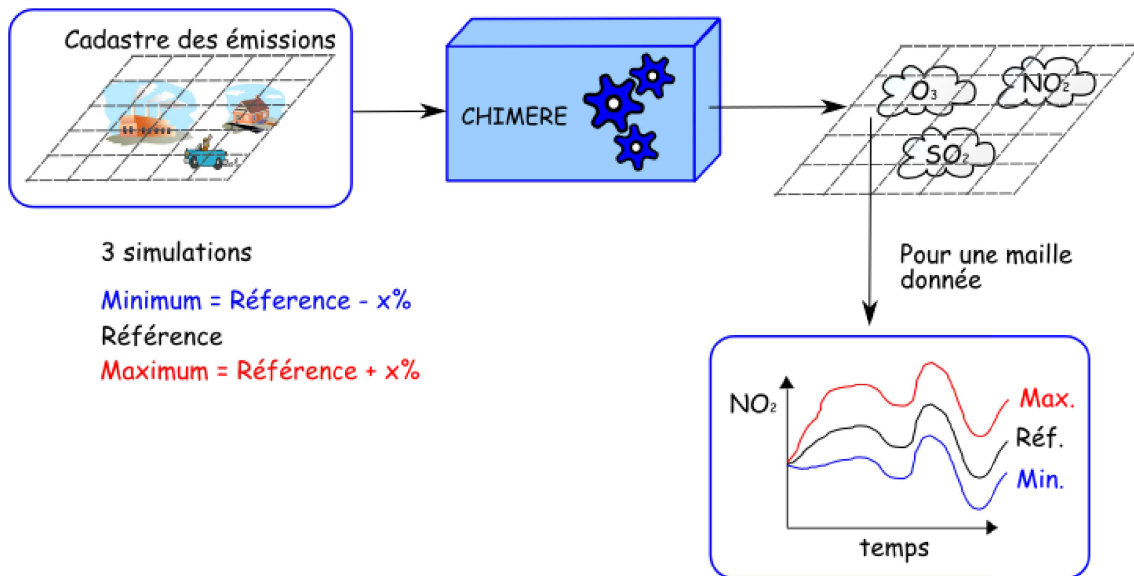


Figure 3.5: Principe du scénario Min - Max

Cette première approche appelée scénario « Min-Max » compare une simulation de référence, avec deux simulations représentant les cas extrêmes où toutes les valeurs sont soit minimisées, soit maximisées. En pratique, trois simulations ont été effectuées pour la même période de temps. Lors de ces simulations, seules les valeurs des émissions des sources anthropiques ont été modifiées. Une première simulation de référence a été effectuée avec les données issues du cadastre. Ensuite, une deuxième simulation a utilisé les données du cadastre diminuées des pourcentages d'incertitude associés (ou fixés à zéro si la valeur est négative). Enfin, une dernière simulation a utilisé des valeurs augmentées des pourcentages d'incertitude associés à chaque composé. Pour finir, les valeurs des émissions des trois simulations, pour chaque composé et chaque maille donnée du domaine simulé, peuvent être comparées. Ceci a été effectué pour des mailles particulières et représentatives du domaine. La figure 3.5 résume la procédure suivie.

#### 1.2.4.c Scénario « Monte-Carlo »

La seconde approche appelée scénario « Monte-Carlo » consiste à réaliser un grand nombre de simulations successives. Pour chacune de ces simulations, les données d'entrée sont modifiées dans chaque maille, de façon aléatoire, à partir des fonctions de distribution associées à chaque composé. De cette manière il est possible de reconstruire pour une maille

donnée, une fonction de distribution à partir des concentrations calculées pour chaque composé. Ces fonctions de distribution permettent alors de définir une incertitude sur la concentration du composé étudié pour chacune des mailles en sortie du modèle. La figure 3.6 illustre cette approche.

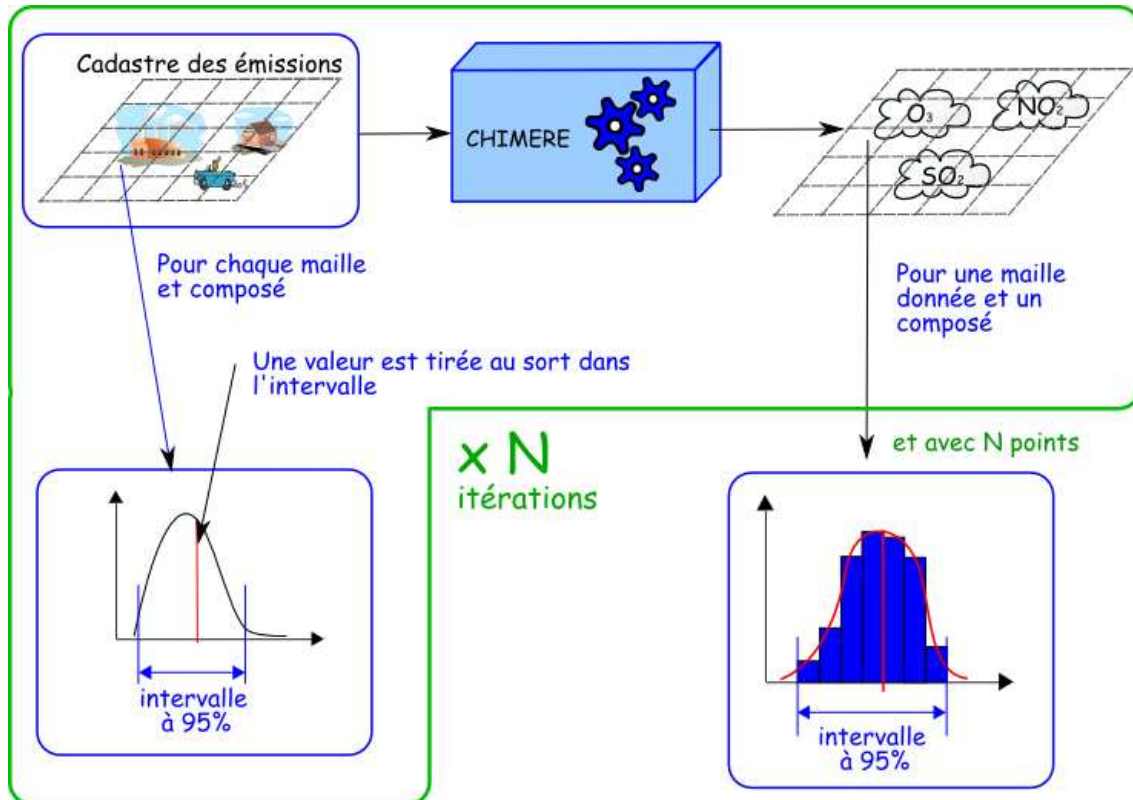


Figure 3.6: Principe du scénario Monte-Carlo

#### 1.2.4.d Préparation des données et mise en place des simulations

La figure 3.7 présente la chaîne de traitement réalisée pour obtenir les données d'entrée utiles au modèle à partir de l'inventaire d'émissions, ainsi que la partie permettant de tenir compte des incertitudes. Cette dernière partie a été développée spécifiquement pour ce travail. Considérant le grand nombre de données d'entrée, leur modification a nécessité la création d'un programme afin d'automatiser la tâche.

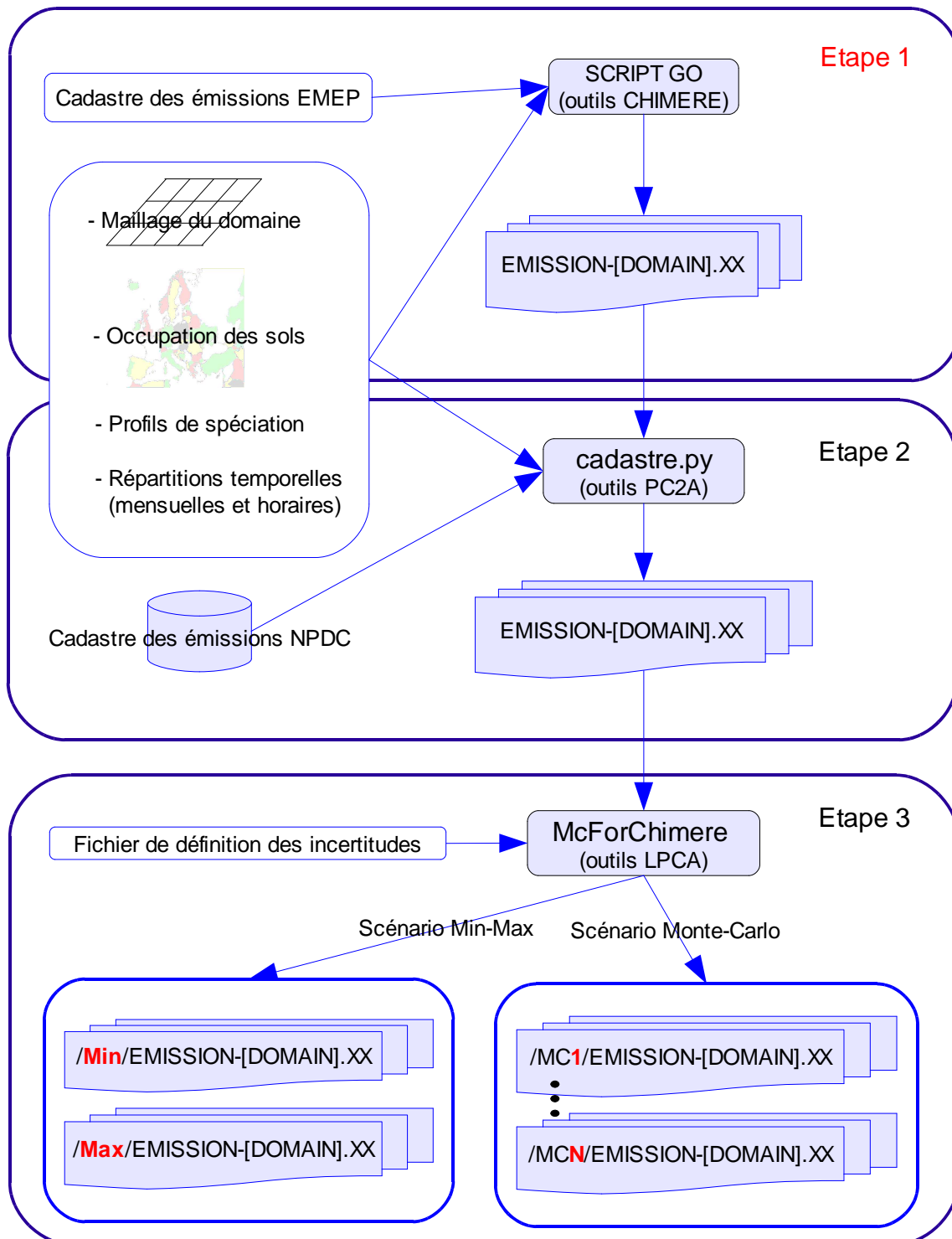


Figure 3.7: Chaîne de traitements des données pour la prise en compte de l'incertitude

La deuxième étape utilise le programme développé au PC2A qui permet de remplacer les émissions fournies par le cadastre EMEP par celles issues du cadastre régional pour les mailles de la région Nord-Pas-de-Calais.

Enfin, une troisième étape de traitement a été ajoutée pour permettre la prise en compte des incertitudes. Pour cela, un programme spécifique permettant d'adapter les données d'émissions aux besoins des deux scénarios a été élaboré. Ce programme réalise deux tâches différentes, chacune spécifique à l'un des deux scénarios. Les figures 3.8 et 3.9 décrivent ces 2 possibilités. Il a été écrit en langage Java et utilise la librairie SSJ (Simulation Stochastique en Java) développée au Département d'Informatique et de Recherche Opérationnelle (DIRO) de l'Université de Montréal pour générer les valeurs aléatoires à partir d'une FDP. (*L'Ecuyer*)

Pour le scénario « Min-Max », deux séries de fichiers supplémentaires sont créées. Une série où toutes les données sont minimisées, l'autre série où toutes les données sont maximisées, en fonction de l'incertitude associée à chaque composé (cf. tableau 3.2).

Dans le cas de la méthode Monte-Carlo, il y a autant de fichiers d'entrée créés que de simulations réalisées. Chacun de ces fichiers est modifié de façon aléatoire pour tenir compte des incertitudes sur les composés étudiés. La nouvelle valeur est calculée à partir de la procédure mise au point au LPCA. La valeur existante dans le fichier de référence est prise comme valeur moyenne. En supposant la distribution normale, l'écart-type peut-être considéré comme égal à l'intervalle de confiance à 95 % de la distribution divisé par quatre. A partir de ces deux paramètres: moyenne et écart-type, il est possible de définir la fonction de distribution de probabilités décrivant l'incertitude. Une valeur aléatoire est ensuite tirée de cette FDP pour remplacer la valeur de référence et cela pour chaque composé et chaque maille du fichier source.



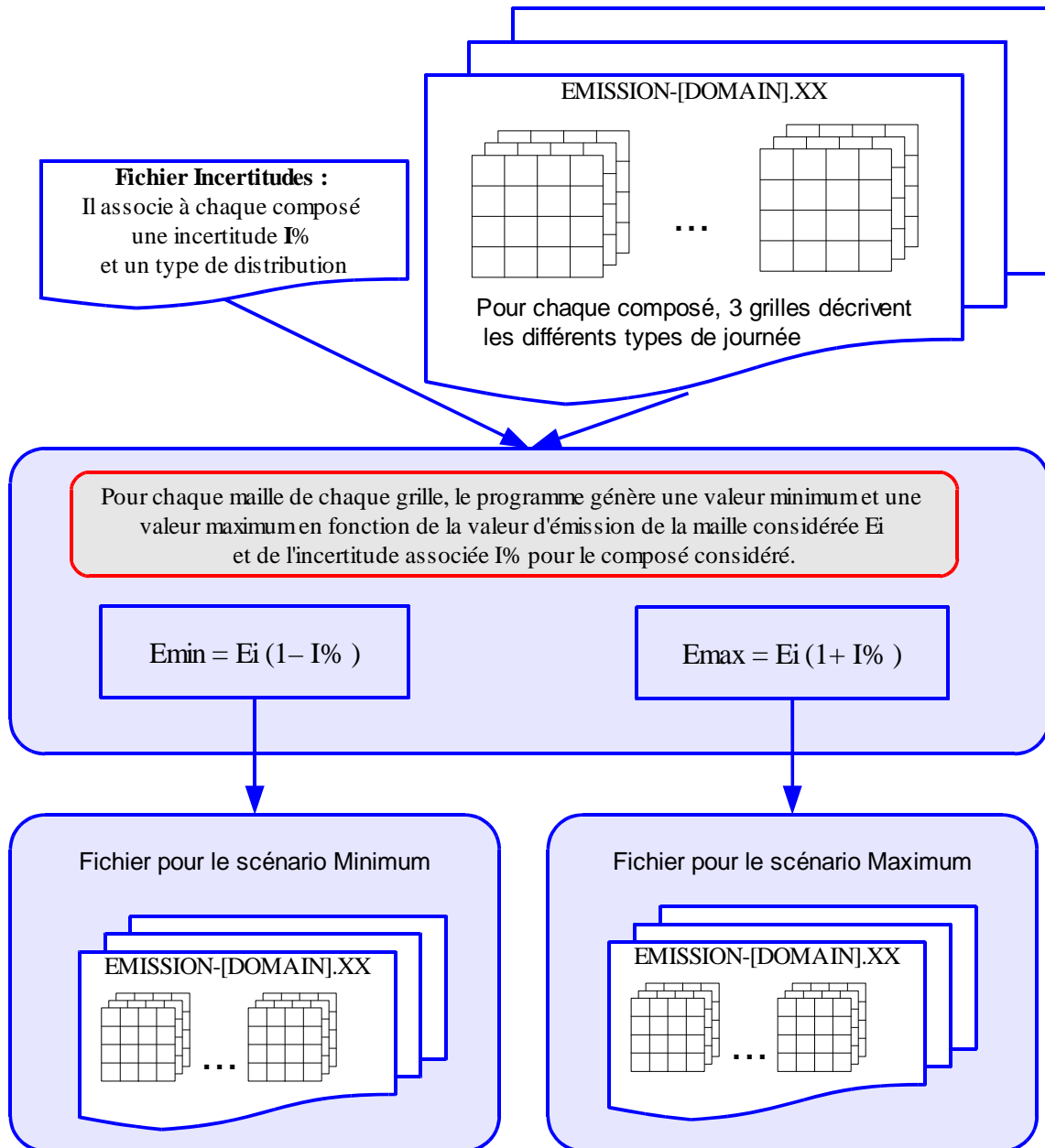


Figure 3.8: Opérations effectuées par le programme pour la préparation des données nécessaires aux scénarios Minimum et Maximum

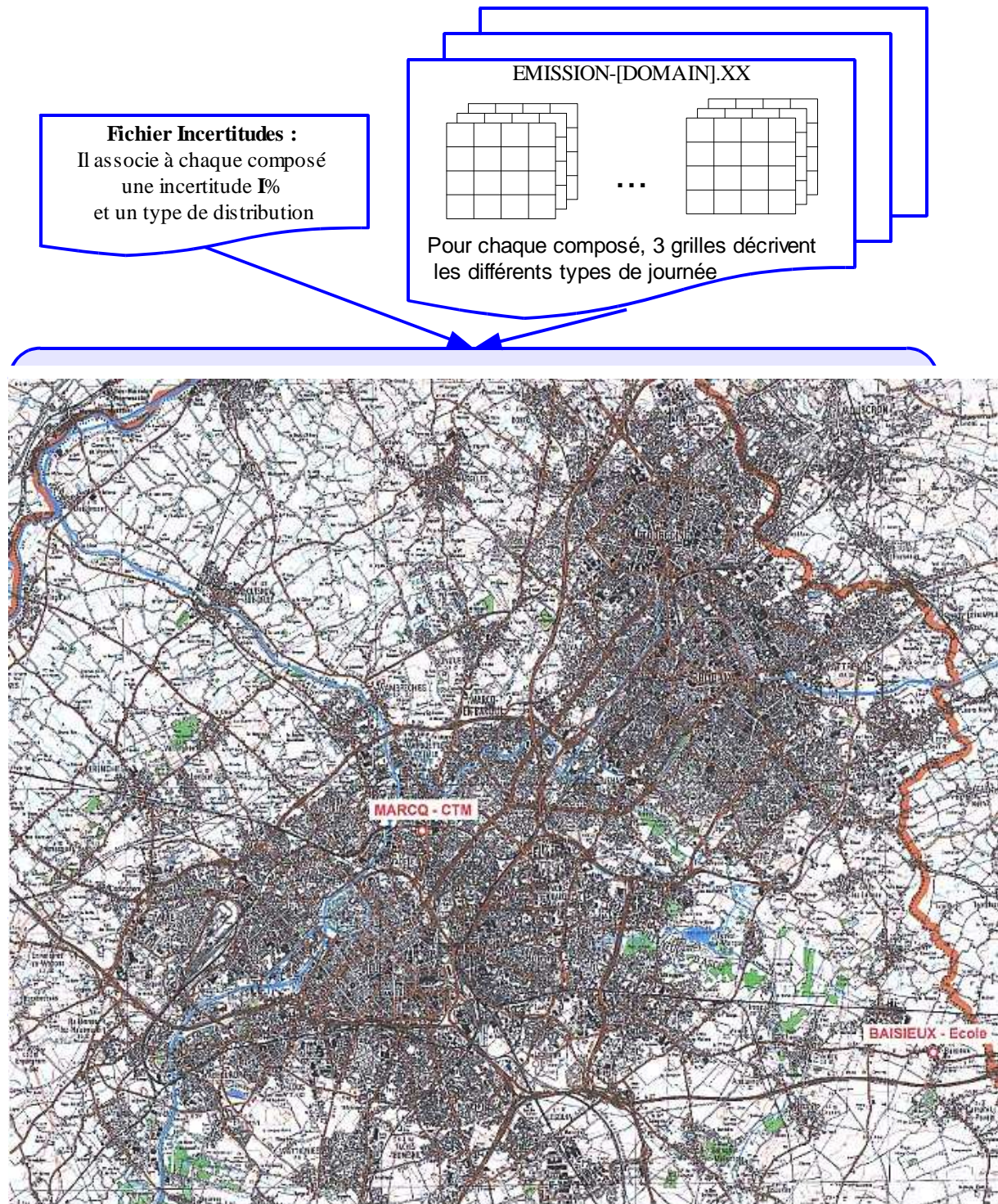


Figure 3.10: Carte situant les 2 sites étudiés

Figure 3.9: Opérations effectuées par le programme pour la préparation des données nécessaires au scénario Monte-Carlo

### 1.2.5.a Scénario « Min-Max »

Pour chaque composé et chaque site, l'évolution dans le temps des concentrations de la simulation de référence est représentée sur les figures 3.11 à 3.22. Elle y est désignée par l'abréviation REF et tracée en noir. Les évolutions des concentrations correspondant aux simulations minimum, désignées par MIN et tracées en bleu, et maximum, désignées par MAX et tracées en rouge, sont aussi représentées sur ces mêmes figures. Les variations des concentrations des scénarios minimum et maximum par rapport aux concentrations du scénario de référence sont également tracées sur ces figures et désignées respectivement par (MIN-REF)/REF en bleu clair et (MAX-REF)/REF en orange. Le premier jour n'est pas considéré dans les calculs, afin de laisser le temps nécessaire à la stabilisation du modèle.

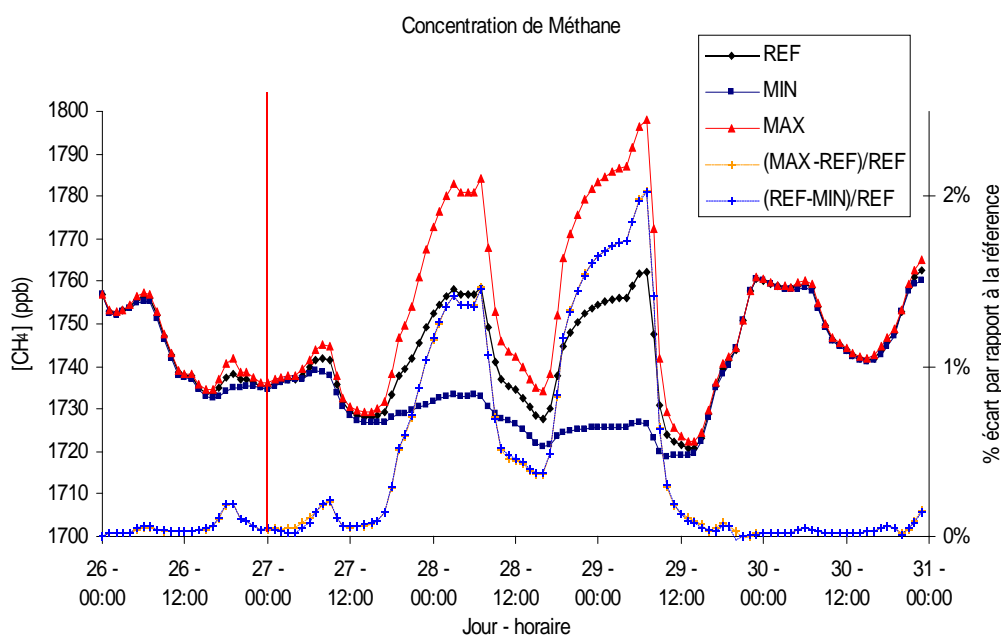


Figure 3.11: Variations de la concentration de méthane sur le site de Baisieux-Ecole pour les différents scénarios et leur écart par rapport au scénario de référence

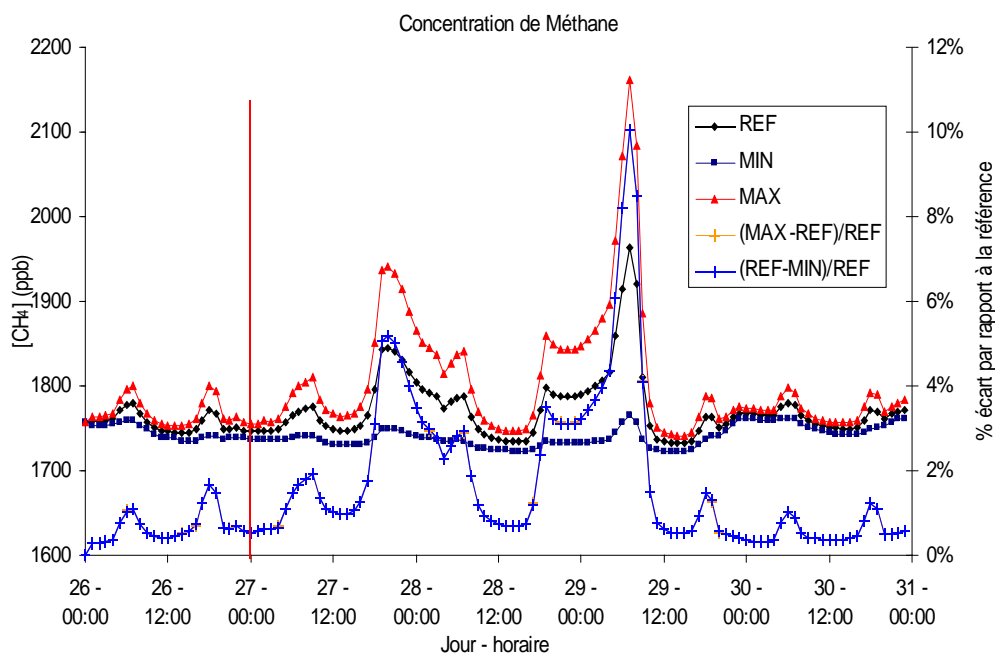


Figure 3.12: Variations de la concentration de méthane sur le site de Marcq-CTM pour les différents scénarios et leur écart par rapport au scénario de référence

Les concentrations de méthane varient très peu dans le temps pour les deux sites, comme le montrent les figures 3.11 et 3.12. Les deux scénarios extrêmes s'écartent très peu du scénario de référence. Les plus gros écarts sont de l'ordre de 2 % pour la maille de Baisieux-Ecole et de 10 % pour le site de Marcq-CTM. Les écarts des deux scénarios sont totalement symétriques : le modèle réagit de manière linéaire sur la plage de concentrations observées. Pour une augmentation ou une diminution des émissions en entrée, la concentration en sortie diminue ou augmente dans les mêmes proportions.



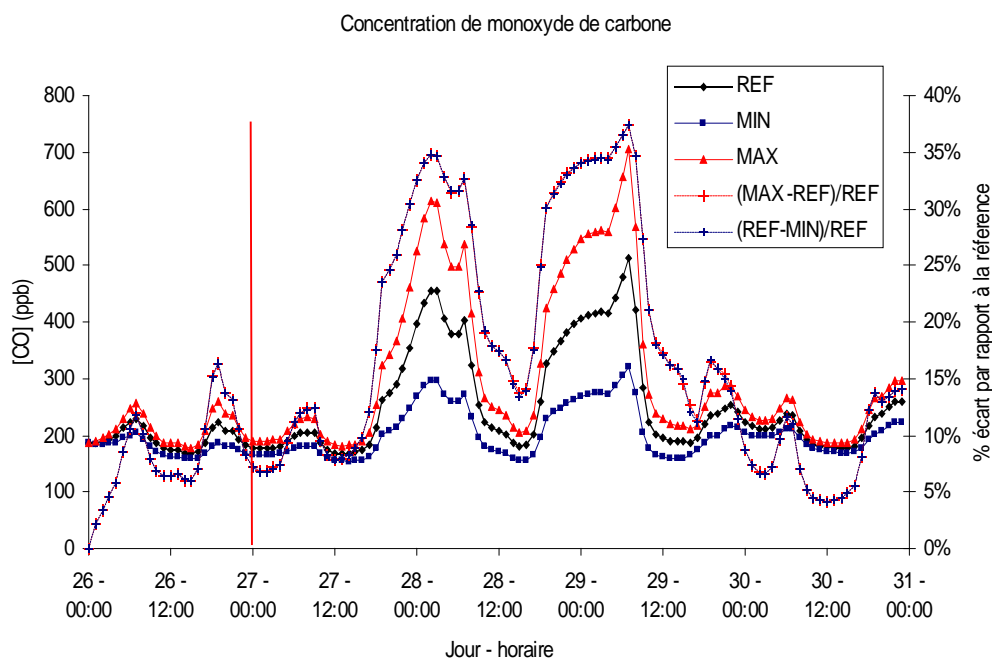


Figure 3.13: Variations de la concentration de monoxyde de carbone sur le site de Baisieux-Ecole pour les différents scénarios et leur écart par rapport au scénario de référence

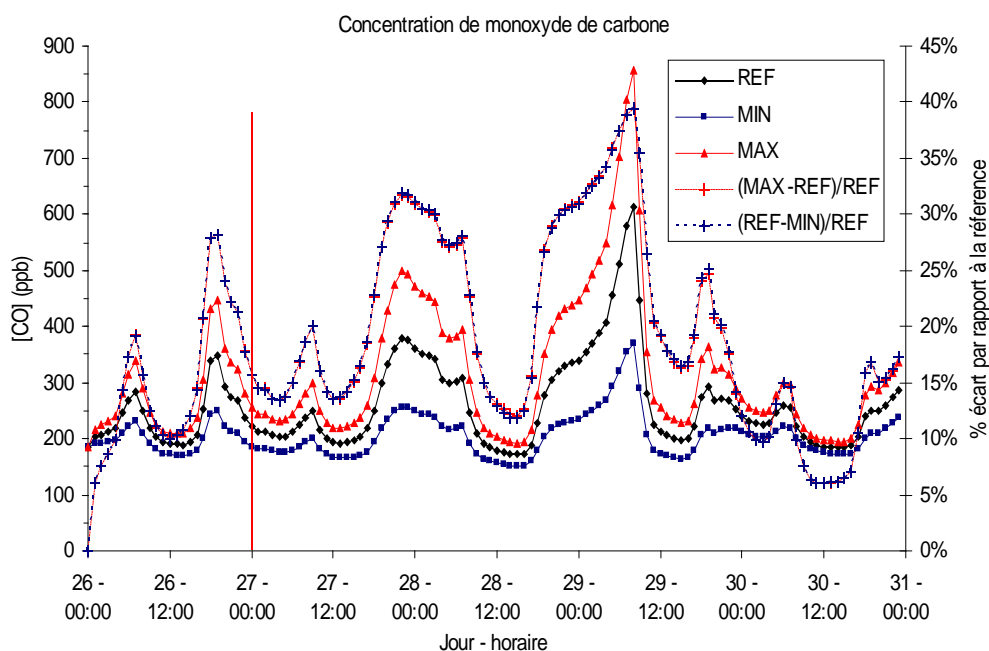


Figure 3.14: Variations de la concentration de monoxyde de carbone sur le site de Marcq-CTM pour les différents scénarios et leur écart par rapport au scénario de référence

Les variations de concentration en monoxyde de carbone sont plus contrastées (figures 3.13 et 3.14). Deux pics sont observés avec des amplitudes similaires sur les deux sites. Les écarts maximaux correspondent aux périodes d'émissions maximales. Les écarts entre les scénarios de minimum et maximum par rapport au scénario de référence suivent très précisément les variations des émissions. Les valeurs des concentrations restent relativement faibles de l'ordre de 200ppb avec des pics pouvant atteindre 700 à 900ppb.

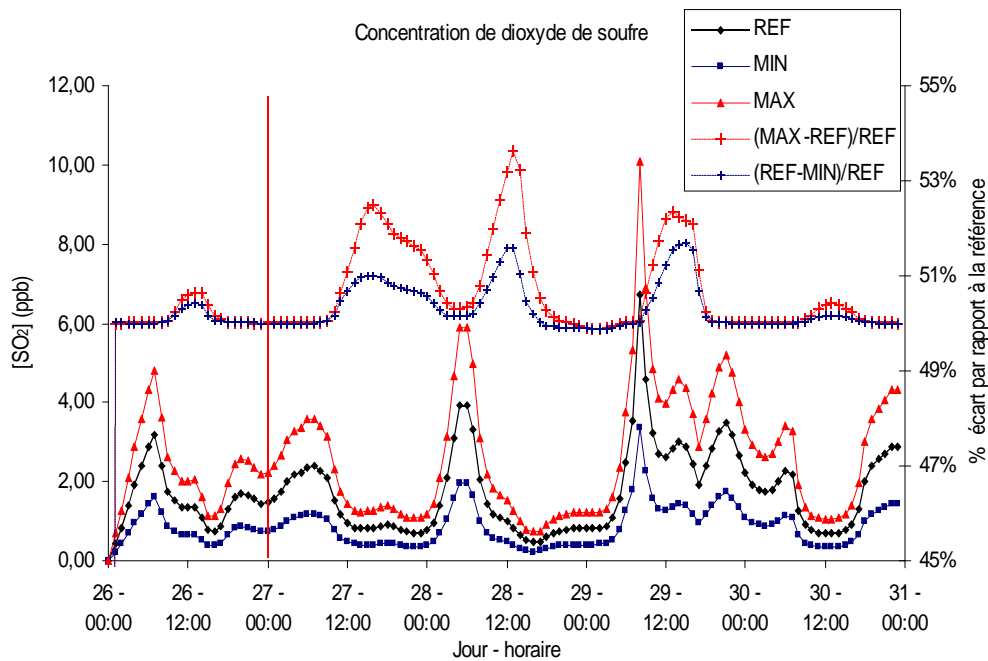


Figure 3.15: Variations de la concentration de dioxyde de soufre sur le site de Baisieux-Ecole pour les différents scénarios et leur écart par rapport au scénario de référence

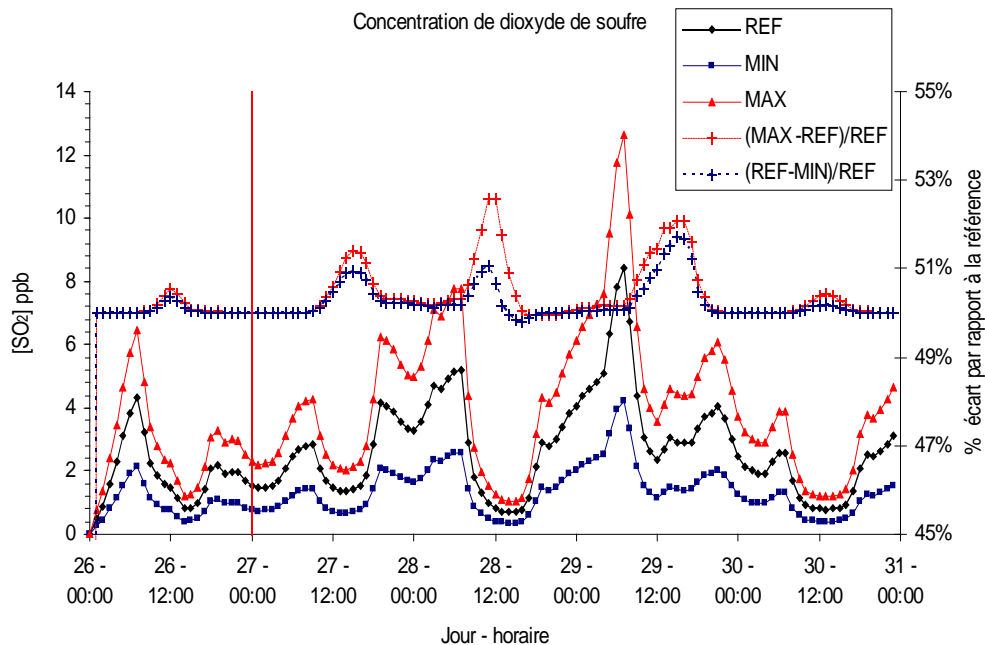


Figure 3.16: Variations de la concentration de dioxyde de soufre sur le site de Marcq-CTM pour les différents scénarios et leur écart par rapport au scénario de référence

Dans le cas du dioxyde de soufre sur les figures 3.15 et 3.16, les écarts des concentrations obtenus des scénarios minimum et maximum par rapport au scénario de référence restent constants quelles que soient les variations des émissions. L'écart moyen reste toujours autour de 50 %. Les valeurs des concentrations restent néanmoins très faibles, de l'ordre de quelques ppb.

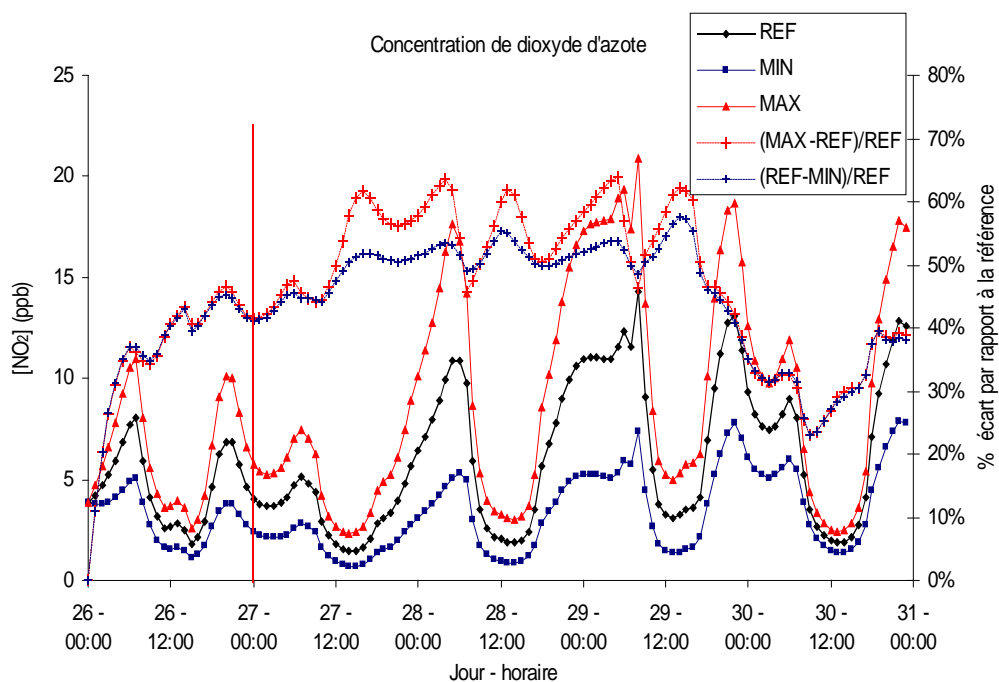


Figure 3.17: Variations de la concentration de dioxyde d'azote sur le site de Baisieux-Ecole pour les différents scénarios et leur écart par rapport au scénario de référence



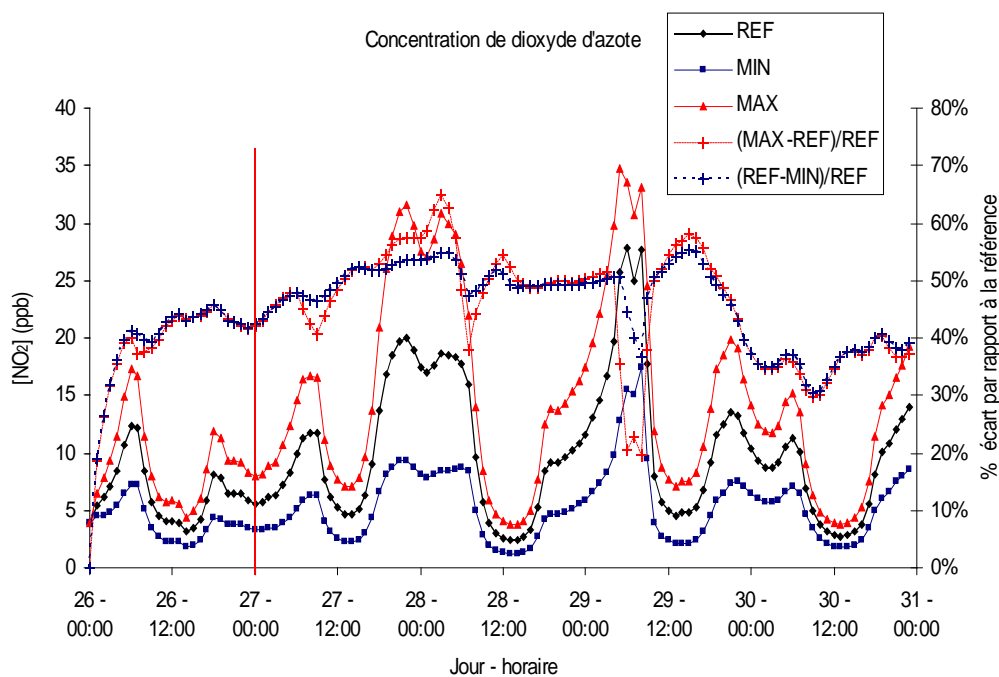


Figure 3.18: Variations de la concentration de dioxyde d'azote sur le site de Marcq-CTM pour les différents scénarios et leur écart par rapport au scénario de référence

Les valeurs des concentrations de dioxyde d'azote sont très faibles (figures 3.17 et 3.18), de l'ordre de quelques ppb avec des pics de concentration atteignant au maximum 15 ppb pour la maille de Baisieux-Ecole et 25ppb pour la maille Marcq-CTM. Les écarts avec le scénario de référence sont relativement constants autour de 50-60 % les 3 premiers jours et diminuent le dernier jour.

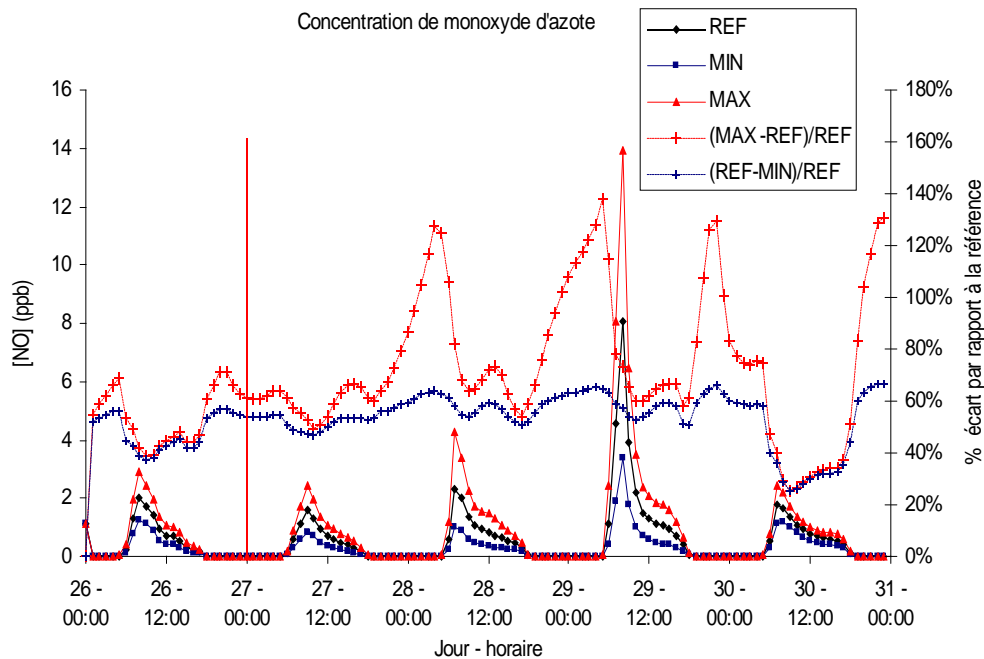


Figure 3.19: Variations de la concentration de monoxyde d'azote sur le site de Baisieux-Ecole pour les différents scénarios et leur écart par rapport au scénario de référence

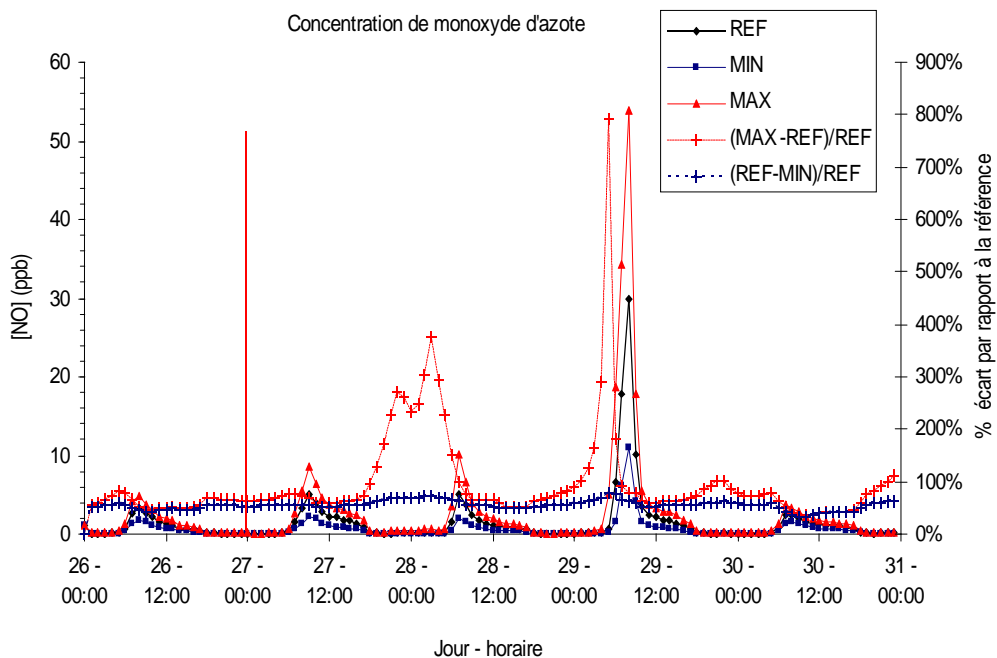


Figure 3.20: Variations de la concentration de monoxyde d'azote sur le site de Marcq-CTM pour les différents scénarios et leur écart par rapport au scénario de référence

Dans le cas du monoxyde d'azote (figures 3.19 et 3.20), des pics réguliers de concentration sont observés sur les 2 sites, chaque jour entre 7h et 9h du matin. Les pics observés sont plus importants dans la maille de Marcq-CTM. Les écarts des concentrations des scénarios minimum et maximum par rapport au scénario de référence sont quasi-constants et tournent autour de 60 % pour la station de Baisieux-Ecole et de 80-90 % pour la station de Marcq-CTM.

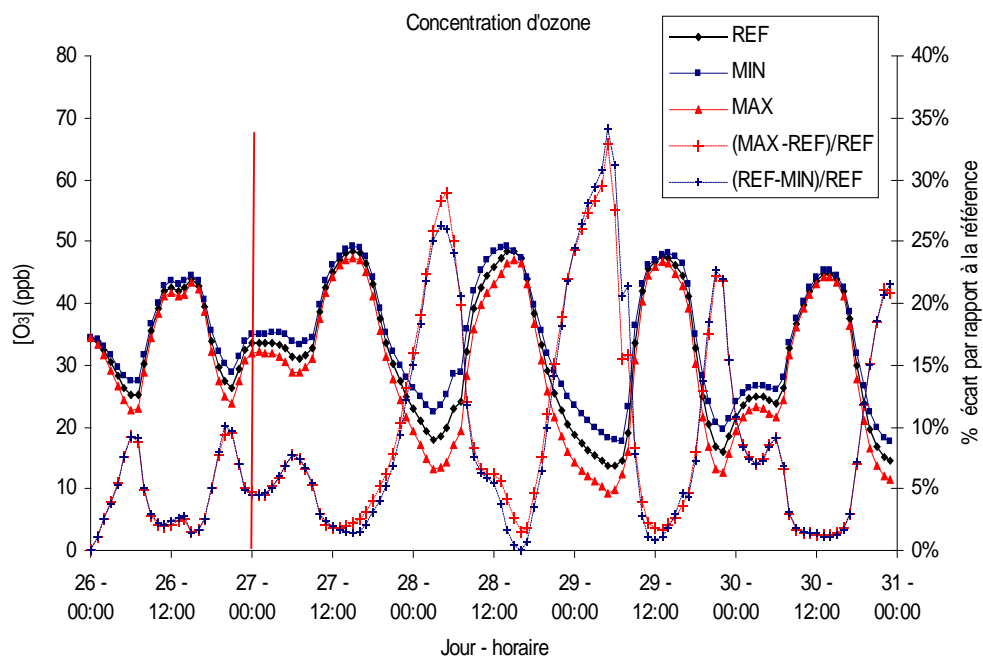


Figure 3.21: Variations de la concentration d'ozone sur le site de Baisieux-Ecole pour les différents scénarios et leur écart par rapport au scénario de référence

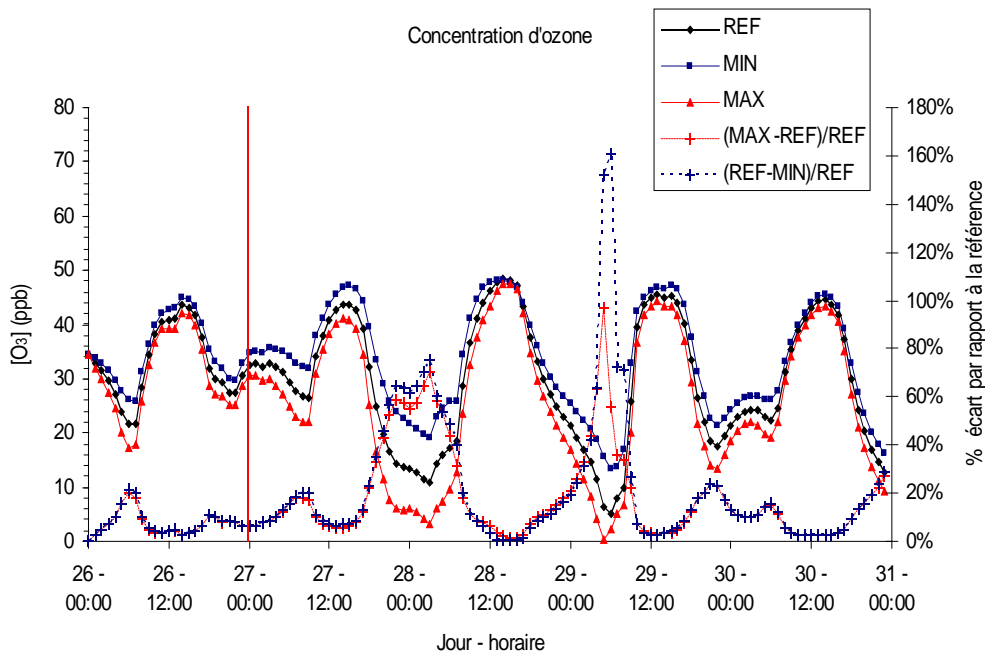


Figure 3.22: Variations de la concentration d'ozone sur le site de Marcq-CTM pour les différents scénarios et leur écart par rapport au scénario de référence

Pour l'ozone (figures 3.21 et 3.22), une inversion des scénarios se produit. Les valeurs maximales de concentration sont observées pour le scénario minimum et les valeurs minimales de concentration pour le scénario maximum. Les écarts les plus importants sont observés pour les minima de concentration en ozone. Ce phénomène s'explique sûrement par la compétition entre les concentrations des oxydes d'azote avec les composés organiques volatils. En traçant sur le même graphe les concentrations d'ozone et de dioxyde d'azote (figure 3.23 et 3.24), une forte anti-corrélation entre les valeurs de concentrations des deux composés est observée. Ceci montre que le modèle est placé dans un régime saturé en  $\text{NO}_x$  et qu'en cas de pics d'émission de  $\text{NO}_x$ , une partie de l'ozone produit est reconsommée par les  $\text{NO}_x$  et les niveaux de concentration d'ozone sont limités.

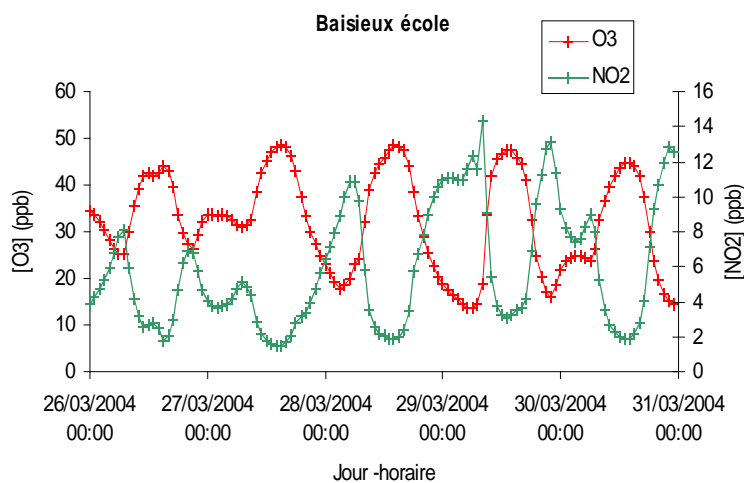


Figure 3.23: Variations des concentrations de dioxyde d'azote et d'ozone dans la maille de Baisieux-Ecole

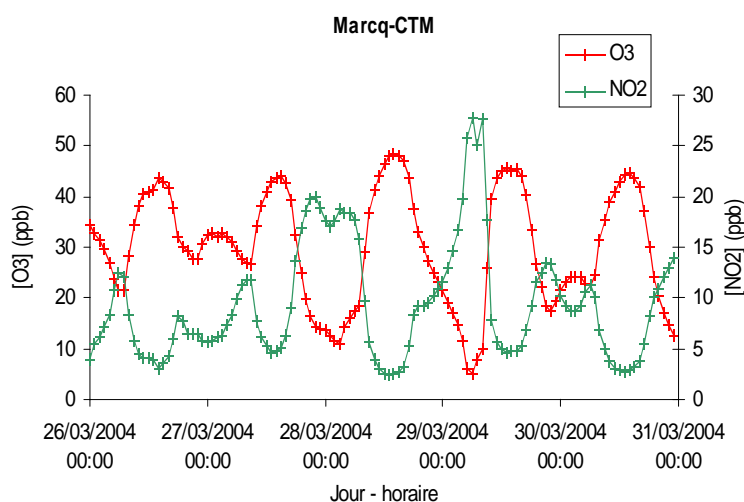


Figure 3.24: Variations des concentrations de dioxyde d'azote et d'ozone dans la maille de Marcq CTM

Pour l'ensemble des composés étudiés qui sont soumis à des réglementations spécifiques, et quel que soit le scénario considéré, leurs concentrations restent en dessous des seuils d'alerte et d'information. Durant la période d'étude considérée, la région Nord-Pas-de-Calais n'a rencontré aucun épisode aigu de pollution spécifique.

Pour la plupart des composés, les écarts de concentrations les plus importants sont observés lors des pics de concentration élevée. Par contre, l'effet inverse est observé pour

l'ozone, ce qui s'explique par un effet de compétition entre les composés organiques volatils (COV) et les oxydes d'azotes (NOx) qui limitent la production d'ozone.

Les tableaux 3.3 et 3.4 résument respectivement pour les sites de Marcq-CTM et de Baisieux-Ecole, les écarts relatifs des concentrations des scénarios minimum et maximum par rapport au scénario de référence. Pour chaque composé étudié, ont été donné les écarts relatifs des concentrations minimum et maximum, ainsi que la moyenne de l'écart pour l'ensemble de la période.

<i>Composé</i>	<i>Scénario Max</i>			<i>Scénario Min</i>		
	<i>minimum</i>	<i>maximum</i>	<i>moyenne</i>	<i>minimum</i>	<i>maximum</i>	<i>moyenne</i>
<b>NO<sub>2</sub></b>	20 %	65 %	<b>46 %</b>	30 %	55 %	<b>46 %</b>
<b>NO</b>	36 %	792 %	<b>103%</b>	34 %	80 %	<b>67 %</b>
<b>O<sub>3</sub></b>	1 %	97 %	<b>19 %</b>	0 %	161 %	<b>22 %</b>
<b>SO<sub>2</sub></b>	50 %	53 %	<b>50 %</b>	50 %	52 %	<b>52 %</b>
<b>CH<sub>4</sub></b>	0 %	10 %	<b>2 %</b>	0 %	10 %	<b>2 %</b>
<b>CO</b>	6 %	40 %	<b>20 %</b>	6 %	40 %	<b>20 %</b>

Tableau 3.3: Écarts des scénarios minimum et maximum par rapport au scénario de référence pour la maille Marcq-CTM

<i>Composé</i>	<i>Scénario Max</i>			<i>Scénario Min</i>		
	<i>minimum</i>	<i>maximum</i>	<i>moyenne</i>	<i>minimum</i>	<i>maximum</i>	<i>moyenne</i>
<b>NO<sub>2</sub></b>	23%	64%	<b>48%</b>	23%	58%	<b>45%</b>
<b>NO</b>	26%	138%	<b>74%</b>	25%	67%	<b>55%</b>
<b>O<sub>3</sub></b>	1%	33%	<b>10%</b>	0%	34%	<b>10%</b>
<b>SO<sub>2</sub></b>	50%	54%	<b>51%</b>	50%	52%	<b>50%</b>
<b>CH<sub>4</sub></b>	0%	2%	<b>0%</b>	0%	2%	<b>0%</b>
<b>CO</b>	4%	37%	<b>18%</b>	4%	37%	<b>18%</b>

Tableau 3.4: Écarts des scénarios minimum et maximum par rapport au scénario de référence pour la maille Baisieux-Ecole

Globalement, l'écart des scénarios minimum et maximum par rapport au scénario de référence est très faible pour le méthane. Ce composé n'a que peu de sources d'émission dans les mailles observées et est relativement peu réactif à basse altitude.

L'ozone présente également des variations faibles sur les 2 mailles. L'ozone est un polluant secondaire et n'est pas émis directement dans l'atmosphère. Dans notre cas, la relation d'anti-corrélation entre les concentrations de dioxyde d'azote et l'ozone apparaît très nettement.

Les écarts de concentration du dioxyde de soufre entre les différents scénarios s'élèvent autour de 50% et varient très peu avec le temps.

Les écarts sont importants pour les oxydes d'azote et notamment pour le dioxyde d'azote pour lequel de grandes plages de variations sont observées.

#### 1.2.5.b Méthode Monte-Carlo

Un paramètre important de la méthode Monte-Carlo est le nombre de simulations effectuées. Afin d'obtenir une FDP représentative de la variable considérée, il faut un nombre minimal d'observations. Pour déterminer ce nombre, deux critères doivent être pris en compte: d'une part, le coût en temps de chaque simulation et d'autre part, la précision du résultat escompté.

Un des avantages de la méthode Monte-Carlo est de pouvoir lui appliquer les règles statistiques standards pour estimer la précision des estimations de la distribution en sortie de modèle. Le choix du nombre de simulations « n » dépend de la précision souhaitée pour la distribution de sortie. En revanche, il est indépendant du nombre de paramètres en entrée (nombre de variables). Le calcul du nombre d'itérations peut se faire suivant deux critères, suivant que la précision souhaitée porte sur la valeur moyenne ou sur les centiles de la FDP obtenue.

##### – *Précision sur la valeur moyenne*

Dans ce cas, le nombre d'itérations nécessaires pour estimer la moyenne « n », est exprimé avec une amplitude donnée « w » et un certain niveau de confiance « 1 -  $\alpha$  ». Un niveau de confiance « 1 -  $\alpha$  » signifie que si la valeur réelle n'est pas dans l'intervalle, la probabilité de l'observation obtenue est inférieure à  $\alpha$ .

Pour un jeu de données de n valeurs générées par une simulation Monte-Carlo ( $x_1, x_2, \dots, x_m$ ), la valeur moyenne  $\bar{x}$  et l'écart-type s peuvent être estimés par les 2 équations

suivantes 3.2 et 3.3.

$$\bar{x} = \sum_{i=1}^n \frac{x_i}{n} \quad (3.2)$$

$$s = \sqrt{\frac{1}{(n-1)} \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2} \quad (3.3)$$

L'incertitude sur la moyenne avec un niveau de confiance à 95% (soit  $c \approx 2$ ) est égale à

$$\left( \bar{x} - c \frac{s}{\sqrt{n}}, \bar{x} + c \frac{s}{\sqrt{n}} \right) \quad (3.4)$$

Si l'écart souhaité autour de la moyenne doit être inférieur à  $w$  unités, le nombre d'itérations nécessaire peut être fixé par

$$2c \frac{s}{\sqrt{n}} < w \quad (3.5)$$

$$n > \left( \frac{2cs}{w} \right)^2 \quad (3.6)$$

A partir d'une première simulation de 10 itérations, la moyenne et l'écart-type peuvent être estimés et utilisés pour déterminer le nombre d'itérations nécessaires pour obtenir la précision souhaitée.

– *Précision sur les centiles*

Cette deuxième approche vise à fixer une incertitude sur la valeur médiane et sur les différents centiles de la distribution. Pour un échantillon de taille  $n$ , les valeurs de  $x$  sont classées par ordre croissant  $x_1 \leq x_2 \leq \dots \leq x_n$ . La valeur  $x_i$  est une estimation du centile  $x_p$  avec

$$p = \frac{i}{n} \quad (0 \leq p \leq 1). \quad (3.7)$$

$(x_i, x_k)$  correspond à l'incertitude sur  $x$  avec un intervalle de confiance  $\alpha$  où  $i$  et  $k$  sont définis par :



$$i = \lfloor np - c \sqrt{np(1-p)} \rfloor \quad (3.8)$$

(  $\lfloor x \rfloor$  correspond à la valeur de x arrondie vers le bas)

et

$$k = \lceil np - c \sqrt{np(1-p)} \rceil \quad (3.9)$$

(  $\lceil x \rceil$  correspond à la valeur de x arrondie vers le haut)

Le nombre d'itérations nécessaires pour obtenir un intervalle de confiance (yi, yk), avec une précision  $\alpha$ , pour le  $p^{\text{ième}}$  centile  $Y_p$ , avec  $y_i$  : estimation de  $Y_{p-\Delta p}$  et  $y_k$  : estimation de  $Y_{p+\Delta p}$ , peut être déterminé selon le raisonnement développé ci-dessous

En ignorant les arrondis, i et k peuvent approximativement être exprimés par les équations suivantes:

$$i = n(p - \Delta p) \quad (3.10)$$

et

$$k = n(p + \Delta p) \quad (3.11)$$

A partir des expressions précédentes, la relation suivante permet d'accéder à la valeur du nombre d'itérations n

$$k - i = 2n \Delta p = 2c \sqrt{np(1-p)} \quad (3.12)$$

d'où

$$n = p(1-p) \left( \frac{c}{(\Delta p)} \right)^2 \quad (3.13)$$

Ces 2 approches supposent néanmoins que les paramètres utilisés en entrée de la simulation soient connus avec une très bonne précision.

A partir de la formule 3.13, il est possible d'estimer le nombre de simulations nécessaires pour que la vraie valeur de la médiane soit comprise entre l'estimation des centiles  $x_{0,49}$  et  $x_{0,51}$ , avec un intervalle de confiance de 95%, soit :

$$n = 0,5 \times 0,5 \times \left( \frac{2}{0,01} \right)^2 = 10000 \text{ itérations.}$$

De même, pour que le centile  $x_{0,05}$  soit compris entre  $x_{0,04}$  et  $x_{0,06}$  ou que le centile  $x_{0,95}$  soit compris entre  $x_{0,94}$  et  $x_{0,96}$ , le nombre d'itérations nécessaires est identique par symétrie et égal

à :

$$n=0,05 \times (1-0,05) \times \left(\frac{2}{0,01}\right)^2 = 1900 \text{ itérations.}$$

Dans cette étude, les incertitudes sur les données utilisées en entrée du modèle (FDP) sont elles-mêmes connues avec un manque de précision. En effet, afin de les estimer, un certain nombre d'approximations a été fait. Par conséquent, l'approximation des incertitudes issues du nombre d'itérations est dominée par les incertitudes sur les données d'entrée.

De plus, le coût en temps de calcul pour chaque itération de la simulation est aussi un paramètre à prendre en compte. Pour les simulations effectuées au LPCA, une itération nécessite plus de 4 heures. Dans ces conditions, le nombre de simulations avec le modèle CHIMERE a été limité à 100, sans prendre en compte la phase atmosphérique particulière. Sur l'ensemble de ces 100 itérations, seules trois n'ont pas abouti en raison d'erreurs lors de la simulation.

Les émissions et les incertitudes associées ont été étudiées pour une date et une heure données, correspondant à la valeur maximale d'émission sur la période considérée, ceci pour chacune des deux mailles.

De même, l'incertitude a été estimée pour la valeur moyenne d'émissions sur 24 heures pour la journée du 29/03/04 dans les 2 mailles.

Pour chaque composé, la valeur moyenne et l'incertitude ont été calculées en prenant en compte 10, 30, 60 ou 97 itérations.

#### 1.2.5.c Résultats obtenus avec la méthode Monte-Carlo.

##### Le monoxyde d'azote (NO)

Les résultats pour le monoxyde d'azote sont énumérés dans le tableau 3.5.

Mode	Maille	Nombre d'itérations	Concentration moyenne (ppb)	Intervalle de confiance à 95%	
				Borne inférieure %	Borne supérieure %
valeur maximum sur la période étudiée	Marcq CTM (6h00 le 29/03/04)	10	29,96	10,4	10,8
		30	29,99	15,0	11,1
		60	29,83	16,5	12,0
		97	29,78	16,4	12,1
	Baisieux Ecole (8h00 le 29/03/04)	10	8,1	5,6	7,3
		30	8,1	7,0	6,6
		60	8,0	7,4	7,5
		97	8,0	7,5	6,6
valeur moyenne sur 24 heures	Marcq CTM (journée du 29/03/04)	10	3,4	7,7	5,1
		30	3,4	11,3	7,1
		60	3,4	13,9	10,1
		97	3,4	13,7	9,9
	Baisieux Ecole (journée du 29/03/04)	10	1,1	3,8	4,0
		30	1,1	3,9	4,9
		60	1,1	4,3	5,0
		97	1,1	4,4	4,9

Tableau 3.5: Valeurs des concentrations et incertitudes associées aux concentrations de monoxyde d'azote pour les différents scénarios

Les concentrations atteintes dans la maille « Marcq-CTM » sont plus importantes que celles observées dans la maille « Baisieux-Ecole ». Elles diffèrent d'un facteur 10 entre les valeurs maximums et les moyennes journalières, et d'un facteur 2 entre les deux sites. Les incertitudes sur les concentrations obtenues au bout de 10 itérations sont sous-estimées. A partir de 60 itérations, elles se stabilisent. L'incertitude délimitant la borne inférieure est plus élevée dans la majorité des cas. Les incertitudes se situent autour de 4% pour la valeur moyenne journalière pour les 2 sites. Dans le cas de la valeur maximale d'émission, ces incertitudes sont respectivement de [-8 %; +6 %] pour la maille « Marcq-CTM » et de [-5 %; +4 %] pour la maille « Baisieux-Ecole ».

### Le dioxyde d'azote (NO<sub>2</sub>)

Le tableau 3.6 résume les résultats pour le dioxyde d'azote.

Mode	Maille	Nombre d'itérations	Concentration moyenne (ppb)	Intervalle de confiance à 95%			
				Borne inférieure %	Borne supérieure %		
valeur maximum sur la période étudiée	Marcq CTM (8h00 le 29/03/04)	10	28,1	4,0	3,7		
		30	28,0	6,9	5,0		
		60	27,8	7,6	6,2		
		97	27,8	7,6	6,1		
	Baisieux Ecole (8h00 le 29/03/04)	10	14,3	3,7	4,1		
		30	14,3	4,6	4,0		
		60	14,2	4,7	4,6		
		97	14,3	4,8	4,2		
		valeur moyenne sur 24 heures	Marcq CTM (journée du 29/03/04)	10	13,2	2,3	2,7
				30	13,2	3,3	3,9
60	13,2			4,2	4,3		
97	13,1		4,1	4,1			
Baisieux Ecole (journée du 29/03/04)	10		8,6	3,8	4,2		
	30	8,7	3,5	3,7			
	60	8,7	4,0	3,7			
		97	8,7	3,7	4,0		

Tableau 3.6: Valeurs des concentrations et incertitudes associées aux concentrations de dioxyde d'azote pour les différents scénarios

Les concentrations maximum en dioxyde d'azote varient du simple au double entre les 2 sites. Elles sont de 28 ppb dans la maille « Marcq-CTM » avec une incertitude de [-8 % ; +6 %] et de 14 ppb dans la maille « Baisieux-Ecole » avec une incertitude de [-5 % ; +4 %]. Les concentrations moyennes journalières sont de 13 ppb dans la maille « Marcq-CTM » et de 9 ppb dans la maille « Baisieux-Ecole ». Elles ont toutes deux une incertitude de ± 4 %. Comme dans le cas du monoxyde d'azote, ce n'est qu'après 60 itérations que les valeurs des incertitudes se stabilisent.

### L'ozone (O<sub>3</sub>)

Les valeurs obtenues pour l'ozone sont récapitulées dans le tableau 3.7.

Mode	Maille	Nombre d'itérations	Concentration moyenne (ppb)	Intervalle de confiance à 95%	
				Borne inférieure %	Borne supérieure %
valeur maximum sur la période étudiée	Marcq CTM (8h00 le 29/03/04)	10	48,6	0,9	1,0
		30	48,5	1,0	1,0
		60	48,5	1,2	1,2
		97	48,4	1,4	1,2
	Baisieux Ecole (8h00 le 29/03/04)	10	48,4	0,7	0,5
		30	48,3	0,5	0,6
		60	48,3	0,6	0,6
		97	48,3	0,7	0,6
valeur moyenne sur 24 heures	Marcq CTM (journée du 29/03/04)	10	25,9	1,0	0,9
		30	26,0	1,5	1,3
		60	26,0	1,5	1,6
		97	26,0	1,5	1,5
	Baisieux Ecole (journée du 29/03/04)	10	27,8	1,0	1,0
		30	27,8	1,0	1,0
		60	27,8	1,0	1,0
		97	27,8	1,0	1,0

Tableau 3.7: Valeurs des concentrations et incertitudes associées aux concentrations d'ozone pour les différents scénarios

Les concentrations d'ozone sont du même ordre de grandeur dans les 2 mailles et ont des valeurs faibles de l'ordre de 50 ppb pour les valeurs maximales et de 30 ppb pour les moyennes journalières. Les incertitudes sont légèrement plus faibles dans la maille de « Baisieux Ecole ». A partir de 30 itérations, les incertitudes ne varient plus beaucoup et ont de faibles valeurs ( au maximum  $\pm 2$  %).

### Le dioxyde de soufre (SO<sub>2</sub>)

Mode	Maille	Nombre d'itérations	Concentration moyenne (ppb)	Intervalle de confiance à 95%	
				Borne inférieure %	Borne supérieure %
valeur maximum sur la période étudiée	Marcq CTM (8h00 le 29/03/04)	10	8,5	12,9	9,9
		30	8,5	15,1	14,4
		60	8,5	14,6	14,1
		97	8,6	15,1	16,5
	Baisieux Ecole (8h00 le 29/03/04)	10	6,6	4,1	5,2
		30	6,6	4,2	6,0
		60	6,6	5,4	5,8
		97	6,7	5,4	7,1
valeur moyenne sur 24 heures	Marcq CTM (journée du 29/03/04)	10	4,3	4,1	4,6
		30	4,2	4,7	5,4
		60	4,2	4,7	5,8
		97	4,2	4,4	5,7
	Baisieux Ecole (journée du 29/03/04)	10	2,6	1,2	1,3
		30	2,6	1,6	1,9
		60	2,6	1,6	1,7
		97	2,6	1,6	1,9

Tableau 3.8: Valeurs des concentrations et incertitudes associées aux concentrations de dioxyde de soufre pour les différents scénarios

D'après les résultats obtenus pour le dioxyde de soufre qui sont résumés dans le tableau 3.8, il apparaît à nouveau que les concentrations et les incertitudes associées sont plus élevées pour la maille « Marcq-CTM ». Elles sont de 9 ppb [-15 %; +17 %] pour la valeur maximale et de 4 ppb [-4 %; +6 %] pour la concentration moyenne journalière à comparer avec une concentration maximale de 8 ppb [-5 %; +7 %] et une concentration journalière moyenne de 3 ppb ± 2 % pour le site de Baisieux-Ecole.

### Le méthane (CH<sub>4</sub>)

Mode	Maille	Nombre d'itérations	Concentration moyenne (ppb)	Intervalle de confiance à 95%			
				Borne inférieure %	Borne supérieure %		
valeur maximum sur la période étudiée	Marcq CTM (8h00 le 29/03/04)	10	1953	2	3,8		
		30	1991	2,6	3,8		
		60	1960	3,3	4,3		
		97	1960	3,1	4,3		
	Baisieux Ecole (8h00 le 29/03/04)	10	1759,8	0,1	0,1		
		30	1762,5	0,2	0,5		
		60	1762,7	0,3	0,5		
		97	1762,6	0,3	0,5		
		valeur moyenne sur 24 heures	Marcq CTM (journée du 29/03/04)	10	1789,0	0,4	0,5
				30	1789,3	0,5	0,7
60	1788,4			0,5	0,6		
97	1788,4		0,4	0,6			
Baisieux Ecole (journée du 29/03/04)	30		1742,8	0,1	0,1		
	60	1742,8	0,1	0,1			
	97	1742,9	0,1	0,1			

Tableau 3.9: Valeurs des concentrations et incertitudes associées aux concentrations de méthane pour les différents scénarios

Les concentrations de méthane sont résumées dans le tableau 3.9. Les concentrations moyennes varient peu entre les 2 sites. Les incertitudes associées sont très faibles. Les valeurs des incertitudes sont stables au bout de 30 itérations.

### Le monoxyde de carbone (CO)

Mode	Maille	Nombre d'itérations	Concentration moyenne (ppb)	Intervalle de confiance à 95%	
				Borne inférieure %	Borne supérieure %
valeur maximum sur la période étudiée	Marcq CTM (8h00 le 29/03/04)	10	612,8	3,7	2,9
		30	611,5	6,5	5,4
		60	611,0	5,8	5,7
		97	611,0	6,9	6,4
	Baisieux Ecole (8h00 le 29/03/04)	10	420,5	2,9	5,5
		30	420,6	4,0	6,4
		60	421,1	3,5	6,2
		97	421,8	3,5	5,8
valeur moyenne sur 24 heures	Marcq CTM (journée du 29/03/04)	10	326,6	1,4	1,7
		30	326,8	3,0	2,7
		60	325,9	2,3	2,6
		97	325,8	2,6	2,7
	Baisieux Ecole (journée du 29/03/04)	10	298,5	1,2	1,9
		30	298,5	1,7	2,4
		60	299,6	2,1	2,7
		97	300,1	2,4	2,9

Tableau 3.10: Valeurs des concentrations et incertitudes associées aux concentrations de monoxyde de carbone pour les différents scénarios

Les résultats pour le CO (voir tableau 3.10) montrent que les concentrations moyennes journalières sont proches entre les 2 sites, de même que leurs incertitudes associées. La concentration maximum est plus importante pour la maille « Marcq-CTM » avec 611 ppb [-7 % ; +6 %] que pour la maille de « Baisieux-Ecole » qui est de 422 ppb [-4 % ; +6 %]. Le nombre d'itérations effectuées est juste suffisant, voire nécessiterait encore quelques itérations supplémentaires pour être certain de la stabilisation des incertitudes.



Les incertitudes obtenues par le scénario Min-Max sont bien plus importantes que celles obtenues par le scénario Monte-Carlo. Cette opposition apparente s'explique par le fait que les 2 scénarios évaluent 2 types d'erreurs différentes. Le scénario Min-Max met en évidence l'incertitude que provoquerait en sortie du modèle une sous-estimation (ou sur-estimation) des émissions du composé dans l'inventaire. Il démontre l'importance que revêt le cadastre d'émissions dans un exercice de modélisation.

Le scénario Monte-Carlo, quant à lui, quantifie les incertitudes qui sont induites par des variations locales autour de la moyenne, pour chaque composé et pour chaque maille. Il met en évidence les fluctuations des concentrations autour de la moyenne dues aux incertitudes sur les émissions issues du cadastre. Les incertitudes calculées résultent uniquement des incertitudes sur les émissions dans l'inventaire. Les incertitudes réelles sont plus importantes et doivent tenir compte des nombreux autres paramètres du modèle (données météorologiques, modèle réactionnel, modélisation des phénomènes de transport et de dépôt...).

## **2 Conclusion**

Dans ce chapitre, l'influence de l'incertitude d'un inventaire d'émissions (ici l'inventaire de la région NPDC) sur la sensibilité d'un modèle photochimique (CHIMERE) a été évaluée au moyen de deux approches différentes. La première approche, le scénario min-max, permet de visualiser les cas extrêmes pour lesquels les erreurs sur les données utilisées en entrée du modèle sont les valeurs limites de l'intervalle d'incertitude. Ce scénario permet de mettre en évidence l'erreur provoquée par un cadastre contenant une erreur systématique (par exemple un facteur d'émissions erroné). Il montre l'importance de l'exactitude du cadastre dans l'exercice de modélisation. La deuxième approche, basée sur une méthode Monte-Carlo, identifie l'incertitude en sortie du modèle due aux fluctuations des données d'entrée dans leur intervalle de confiance. Les incertitudes obtenues de cette manière tiennent compte des variations normales dans les émissions et sont plus proches de la réalité si l'inventaire utilisé est exhaustif. Pour ces 2 approches il est important de garder à l'esprit que les incertitudes calculées sont uniquement dues aux données issues du cadastre d'émissions, mais ne prennent

pas en compte les autres paramètres du modèle qui peuvent eux aussi constituer d'autres sources d'incertitude non négligeables, voire importantes.

### **3 Bibliographie du chapitre 3**

**Fine J.**, Vuilleumier L., Reynolds S., Roth P., Brown N., Evaluating uncertainties in regional photochemical air quality modeling. **2003**, Annual Review of Environment and resources, 28, 59-106.

**Gillot M.**, Développement de l'interface entre le cadastre régional des émissions de polluants et le modèle de qualité de l'air, **2006**, Rapport de stage, Laboratoire de physico-chimie des processus de combustion et de l'atmosphère.

**Horowitz L. W.**, Walters S., Mauzerall D. L., Emmons L. K., Rasch P. J., A global simulation of tropospheric ozone and related tracers: Description and evaluation of MOZART, version 2., **2003**, Journal of Geophysical Research, 108 (D24), 4784-4813.

**Lattuati M.**, Contribution à l'étude du bilan de l'ozone troposphérique à l'interface de l'Europe et de l'Atlantique Nord: modélisation lagrangienne et mesures en altitude., 1997, Thèse de sciences, Université Paris 6, France.

**L'Ecuyer P.** et al, SSJ: Simulation Stochastique en Java, Disponible en ligne <http://www.iro.umontreal.ca/~simardr/ssj/> Département d'Informatique et de Recherche Opérationnelle (DIRO) de l'Université de Montréal.

**Mylona S.**, EMEP emission data, status report 1999., **1999**, Technical Report, EMEP/MSC-W Note 1/99, EMEP, Oslo, Norway.

**Ponche J.-L.**, Communication personnelle / Cours de MASTER Ingénierie de l'Environnement de l'Université Louis Pasteur de Strasbourg sur les inventaires spatialisés d'émissions pour la gestion de l'environnement atmosphérique, **2005**.

**Russell A.**, Regional photochemical air quality modeling : Model Formulations, History, and State of the Science, **1997**, Annual Review of Energy and the Environment, 22 (1), 537-588.

**Russell A.**, Robin D, NARSTO critical review of photochemical models and modelling, **2000**, Atmospheric Environment, 34 (12-14), 2283-2324.

**Schmidt H.**, Derognat C., Vautard R., Beekmann M., A comparison of simulated and observed ozone mixing ratios for the summer of 1998 in Western Europe, **2001**, Atmospheric Environment, 35 (36), 6277-6297.

## **Chapitre 4 : Aérosols issus du trafic automobile : facteurs d'émissions et compositions chimiques**

Ce dernier chapitre s'intéresse à la phase particulaire des émissions anthropiques de l'atmosphère, et tout particulièrement au « carbone suie » ou « black carbon ». Son principal objectif est de déterminer les valeurs des facteurs d'émissions pour le « black carbon » relatif au secteur des transports routiers. Cette étude sur les aérosols carbonés a été effectuée en étroite collaboration avec le Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement « LSCE » de Gif-sur-Yvette, notamment pour la réalisation des campagnes de mesures in situ, et l'analyse des échantillons recueillis.

## 1 **Introduction**

Le dernier chapitre de cette étude concerne une fraction de la phase particulaire des émissions anthropiques dans l'atmosphère. La phase particulaire est sans doute la part des émissions pour laquelle les incertitudes sont les plus importantes. Aux incertitudes sur les quantités émises par les diverses sources, parfois très mal connues autrement que qualitativement, s'ajoute une autre source d'incertitude loin d'être négligeable, concernant la composition et la taille ou granulométrie de ces particules. En effet, ces paramètres sont extrêmement importants, puisqu'ils vont conditionner la réactivité, le transport et l'évolution de ces particules dans l'atmosphère. Par ailleurs, ces particules, qui peuvent être solides ou liquides, avec tous les stades intermédiaires entre ces deux phases, constituent un milieu privilégié pour catalyser des réactions entre des composés d'intérêt majeur pour la pollution atmosphérique au sens large. Les particules constituent le support majoritaire d'une grande partie de la chimie atmosphérique hétérogène, domaine encore assez mal connu actuellement. Il est donc primordial de pouvoir décrire au mieux les émissions de ces particules tant du point de vue des quantités émises que du point de vue de leurs caractéristiques physiques (granulométrie) physico-chimiques (états de surface) que chimiques (compositions).

L'objectif de ces recherches est de renseigner plus précisément les valeurs des facteurs d'émissions d'un type de particules anthropiques : le « black carbon » ou « carbone suie », relatifs au secteur des transports routiers, ceci afin d'améliorer significativement leur description quantitative en zone urbanisée. Pour cela, notre choix s'est porté sur la zone d'étude ESCOMPTE (*Cros, 2004*), du fait que nous disposions de la base de données d'émissions, et en particulier des émissions de particules (*François, 2005*).

Le carbone « suie » ou « Black Carbon » (BC) se définit comme étant la matière carbonée des aérosols atmosphériques absorbant la lumière. Il provient essentiellement de la combustion incomplète d'hydrocarbures et de matières combustibles carbonées. La grande majorité des sources de « BC », exceptés les feux de biomasse, est de type anthropique. Ainsi, les principales sources de « BC » sont constituées par les chaudières, les chauffages domestiques, les feux, les émissions de procédés industriels et les moteurs à combustion interne (fixes et mobiles). Les véhicules, et plus particulièrement les moteurs diesel,

constituent une des sources importantes d'aérosols carbonés.

La taille des particules émises par combustion peut varier de quelques nanomètres de diamètre (diamètre moyen) pour les particules ultra fines formées par nucléation, à quelques millimètres pour les cendres et les agrégats de suie. Les moteurs à combustion interne dégagent essentiellement des particules de taille inférieure à 100 nanomètres (*Lighty, 2000*), contrairement aux autres types de combustion qui génèrent majoritairement des particules de plus grande taille.

Le « BC » peut être considéré comme un composé important pour l'atmosphère du fait de son impact sur le climat et sur la santé. Ainsi, le « BC » des aérosols exerce une influence sur la température et le climat terrestre par la modification des propriétés radiatives de l'atmosphère (*Jacobson, 2001*). Il peut aussi agir comme catalyseur de certaines réactions chimiques atmosphériques comme la production d'acide nitrique qui contribue à la formation d'ozone et de « smogs » (*Ammann, 1998*). D'autre part, le « BC » est reconnu pour provoquer un certain nombre de maladies respiratoires. L'exposition à long terme aux particules fines issues de combustions est aussi un facteur de risque important pour les maladies cardiovasculaires et les cancers du poumon (*Pope, 2002*). En effet, ces particules fines et ultra-fines de « BC » peuvent pénétrer profondément dans les poumons et transporter des composés chimiques toxiques voire cancérogènes, adsorbés sur leur surface, au sein du système respiratoire (*Morawska, 2002*).

## **2 Méthode et mesures effectuées**

### **2.1 Méthodologie.**

Dans le cas des moteurs à combustion interne du transport routier, le « BC » se forme à partir d'un milieu riche en carburant dans lequel les fragments d'hydrocarbures issus de la combustion ont une probabilité très importante de rencontrer un autre fragment et de grandir jusqu'à former une particule plutôt que d'être oxydés en CO ou CO<sub>2</sub>. Comme le dioxyde et le monoxyde de carbone sont eux aussi issus de la combustion, il paraît raisonnable qu'ils puissent être utilisés comme indicateurs pour la formation de « BC » par les véhicules, ce qui a été confirmé par les mesures effectuées sur le terrain. Par ailleurs, un certain nombre

d'études ont déjà montré la corrélation entre le black carbon et le monoxyde de carbone (Baumgardner, 2002; Latha, 2004).

Dans un premier temps, l'objectif a été d'évaluer la somme des concentrations en dioxyde et monoxyde de carbone comme indicateur de concentration en « BC ». Pour cela, la corrélation entre les concentrations de ces différents composés liées à la circulation automobile a été étudiée dans la zone d'étude ESCOMPTE. Dans un second temps, les émissions de « BC » ont été évaluées grâce à cette relation à partir des émissions de monoxyde et dioxyde de carbone. L'étude s'est focalisée sur les zones à forte densité de véhicules (autoroutes, centres villes, parkings souterrains et tunnels) afin de limiter au maximum les risques de biais dus à des émissions de BC issues de sources autres que le trafic routier.

### **2.1.1 Description des sites et des mesures.**

Les mesures ont été effectuées à l'aide d'un véhicule utilitaire léger (Renault Kangoo) du LSCE. Ce véhicule est spécialement équipé pour les mesures en continu du dioxyde et monoxyde de carbone ainsi que pour l'analyse en continu du « BC » et le comptage des particules. Il est également muni d'un système de pompage pour récupérer en parallèle les aérosols sur filtres, qui sont analysés à posteriori.

Les mesures ont été réalisées durant deux périodes d'observation sur deux sites différents :

- La première campagne a eu lieu en région parisienne sur une durée de 3 jours (du 14 au 16 mars 2005). Cette petite campagne de mesures a eu pour objet de tester la validité des dispositifs de mesures et de prélèvements, afin d'optimiser la seconde campagne sur la zone ESCOMPTE.
- La seconde campagne s'est déroulée à Marseille sur une période de 10 jours (du 26 juin au 5 juillet 2005).

Les mesures ont porté sur différentes situations de trafic et d'environnements urbains :

- dans des espaces fermés (tunnels, parkings souterrains)
- sur des parcours urbains (centres villes)
- sur autoroutes et autoroutes urbaines (périphérique autour de Paris, par exemple)

- en stationnement extérieur
- sur des trajets périphérie – centres villes afin de mettre en évidence d'éventuels gradients de concentrations entre les centres villes et les zones périurbaines.

### **2.1.2 Concentration massique en « black carbon ».**

La mesure en continu du Black Carbon (BC) a été réalisée à l'aide d'un aéthalomètre portable (modèle AE-42 de Magee Scientific). Le principe de l'instrument repose sur les propriétés d'absorption optique du BC. La concentration en BC est obtenue par la mesure de l'atténuation optique provoquée par l'accumulation des aérosols sur un ruban de quartz. Cette atténuation optique est ensuite convertie en masse à l'aide d'un facteur de calibration, le BC étant le seul absorbant de lumière significativement important. Le temps d'échantillonnage a été fixé à 1 minute, avec un débit de 4,9 L/mn. L'aéthalomètre a été couplé également à un récepteur GPS (modèle Sportrack de Magellan) afin d'obtenir la localisation de chaque mesure. Le GPS ainsi que l'aéthalomètre sont alimentés à partir de la prise allume-cigare du véhicule.

### **2.1.3 Détermination du nombre de particules**

Le nombre de particules a été mesuré à l'aide d'un compteur de particules à condensation portable (Modèle 3007 de TSI) fonctionnant sur batterie. Il permet la détection des particules de 0,01 $\mu$ m à une taille supérieure à 1 $\mu$ m. Les particules sont grossies par condensation sur des gouttelettes d'alcool isopropylique, puis comptées par un détecteur optique. Le temps d'échantillonnage est également d'une minute, mais cette fois avec un débit d'air échantillonné de 100 cm<sup>3</sup>/mn.

### **2.1.4 Mesure de la concentration en dioxyde et monoxyde de carbone.**

Les concentrations en dioxyde et monoxyde de carbone ont été mesurées à l'aide d'un appareil portable (Q-Track Modèle 8851 de la marque TSI) fonctionnant sur batterie. La température et l'humidité relative de l'air ainsi que les concentrations en CO<sub>2</sub> et CO ont été mémorisées chaque minute. La concentration en CO est déterminée à l'aide d'un capteur



électrochimique. La concentration en CO<sub>2</sub> est mesurée à l'aide d'un détecteur infrarouge, le CO<sub>2</sub> absorbant spécifiquement les rayonnements de longueur d'onde égale à 4,26µm. D'après la loi de Beer-Lambert, la concentration en CO<sub>2</sub> est proportionnelle à l'intensité du rayonnement atteignant le détecteur.

### 2.1.5 Filtres

Pour réaliser des analyses complémentaires en laboratoire, les aérosols ont été collectés sur des filtres à l'aide de deux pompes reliées à des compteurs volumétriques et des porte-filtres. Le débit moyen des pompes est réglé sur 8 à 10 litres par minute et les volumes totaux filtrés vont de 100 litres à un mètre cube par filtre suivant les situations. Des filtres en fibre de verre ont été utilisés, ainsi que des membranes en polycarbonate Nuclepore de 8µm et 0,4µm en porosité montés dans une unité porte-filtre à 2 étages permettant la séparation entre les particules grossières et celles plus fines avec un diamètre de coupure d'approximativement 2µm.

### 2.1.6 Sensibilité des mesures.

A partir des données constructeur des appareils utilisés, les sensibilités effectives pour le compteur de particules et pour les mesures de CO et CO<sub>2</sub> ont pu être déterminées. Pour les mesures de BC, aucune donnée constructeur n'est spécifiée. Néanmoins, Bond et al (*Bond, 1999*) fixent l'incertitude d'un aéthalomètre similaire à celui utilisé à ±15%. Cette valeur sera utilisée pour les incertitudes sur les mesures en continu. Toutes les valeurs sont données dans le tableau 4.1.

<i>Type d'appareil de mesure</i>	<i>Sensibilité utilisée</i>
Compteur de particules (CPC 3007 hand-held condensation particle counter)	+/-20%
Mesure du CO <sub>2</sub> (Qtrak 8551)	+/-3% +/-50ppm +/- 0,36% par °C de variation par rapport à 25°C (T étalonnage)
Mesure du CO (Qtrak 8551)	+/- 3% +/- 0,5 % par °C de variation par rapport à 25°C (T étalonnage)
Black Carbon (aéthalomètre A-42 portable)	+/-15%

Tableau 4.1 Sensibilités des appareils de mesure

### 3 Résultats

#### 3.1 Traitements des données

Dans un premier temps, l'évolution des concentrations mesurées a été tracée en fonction de l'horaire afin de déceler et de corriger un quelconque décalage temporel des données mesurées dû aux différents instruments de mesure utilisés. Les mesures ajustées temporellement ont été ensuite lissées. Les données manquantes, essentiellement lors de l'avancement de la bande pour la mesure du « black carbon », ont été calculées par extrapolation à partir des valeurs précédentes, lorsque celles-ci sont existantes. Les données lissées ont été calculées par un algorithme auto-régressif. En effet, la valeur à un temps donné va dépendre de la mesure pour ce temps et d'une fraction des valeurs mesurées précédemment.

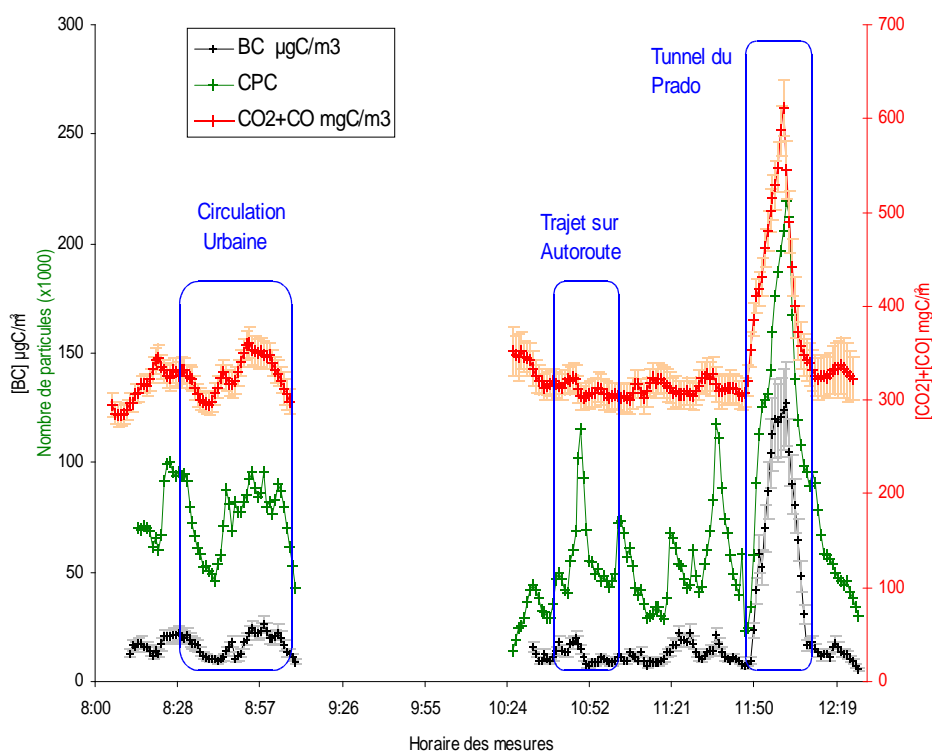


Figure 4.1: Variations des concentrations en BC, en CO<sub>2</sub>+CO et nombre de particules, mardi 28 juin 2005, Marseille.

Les données journalières ont été fragmentées en périodes d'observation correspondant à

des situations de trafic particulières : parkings souterrains, tunnels routiers, circulation urbaine, circulation sur autoroutes. Par la suite, la somme des concentrations en  $\text{CO}_2$  et CO sera notée [COx]. Le graphique de la figure 4.1 montre un exemple d'évolution des concentrations en BC, en [COx] et du nombre de particules, durant une journée type, ici la journée du mardi 28 juin 2005 à Marseille et sa fragmentation en différentes périodes d'observation. Les tableaux 4.2 et 4.3, respectivement pour Paris et Marseille, regroupent les concentrations minimales, maximales et moyennes observées en BC, en [COx] et le nombre de particules, pour les différentes périodes d'observation. Les mesures ont été regroupées par catégorie en fonction du contexte des mesures (tunnels, trafic urbain, parkings souterrains, autoroutes, autoroutes urbaines...). La catégorie « toute la journée » regroupe l'ensemble des mesures effectuées pour la journée correspondante, c'est à dire les situations de trafic évoquées précédemment, ainsi que l'ensemble des autres situations non spécifiques.

Catégorie	Période	Horaire	[BC] ( $\mu\text{gC}/\text{m}^3$ )			[COx] ( $\text{mgC}/\text{m}^3$ )			Nombre de particules		
			min.	max.	moy.	min.	max.	moy.	min	max	moy
<b>Toute la journée</b>	Mardi 15/03/05	9:41 - 14:55	1,6	29,4	10,8	229	454	317	8397	205204	73722
	Mercredi 16/03/05	10:30 - 13:14	2,3	61,1	20,2	280	425	340	17686	328258	122452
	Moyenne	#	2	45,3	15,5	255	440	329	13042	266731	98087
<b>Tunnel des Halles</b>	Mardi 15/03/05	12:22 - 12:34	24,1	62,3	48,5	359	488	435	124501	360350	240221
	Mercredi 16/03/05	11:44 - 11:58	6,4	58,1	35,9	279	417	386	42368	269647	188636
	Moyenne	#	15,2	60,2	42,2	319	453	411	83435	314999	214429
<b>Parking souterrain Bercy</b>	Mardi 15/03/05	13:29 - 13:44	6,9	64,4	30,6	300	598	446	66349	123924	92092
<b>Périphérique</b>	Lundi 14/03/05	12:14 - 12:56	7,2	60,8	20,8	265	366	312	66570	353697	183871
	Mercredi 16/03/05	12:35 - 13:14	5,3	50,7	23,8	301	387	343	41081	316917	124917
	Moyenne	#	6,2	55,8	22,3	283	376	327	53826	335307	154394
<b>Urbain</b>	Mercredi 16/03/05	12:00 - 12:30	3,1	34,9	12,9	293	438	358	39745	282522	103105

Tableau 4.2: Valeurs minimales, maximales et moyennes pour les concentrations de BC et [COx] mesurées à Paris

Catégorie	Période	Horaire	[BC] ( $\mu\text{gC}/\text{m}^3$ )			[COx] ( $\text{mgC}/\text{m}^3$ )			Nombre de particules		
			min.	max.	moy	min.	max.	moy	min	max	moy
<b>Toute la journée</b>	Dimanche 26/06/05	9:30 - 12:51	2,8	22,2	9,2	273	333	293	10126	54001	29009
	Mardi 28/06/05	8:06 - 14:32	5,3	26,4	14,6	283	399	326	13946	117978	58307
	Jeudi 30/06/05	8:28 - 19:03	1,1	28,9	8,7	259	317	287	8539	128006	40764
	Lundi 04/07/05	8:12 - 17:39	1,4	48,3	15,3	374	499	427	7093	212283	60224
	Moyenne	#	2,7	31,4	12	297	387	333	9926	128067	47076
<b>Autoroute</b>	Lundi 27/06/05	10:45 - 11:10	3,2	21,7	9,5	277	342	305	0	229086	65489
	Lundi 27/06/05	12:22 - 12:43	5,6	18,3	11,4	275	309	297	7902	125654	69656
	Mardi 28/06/05	10:42 - 11:05	2,2	26,2	11,6	289	333	310	23051	168880	61924
	Jeudi 30/06/05	10:34 - 10:55	8,4	34,3	16,7	281	317	293	19264	168395	72816
	Samedi 02/07/05	9:35 - 10:03	6,0	27,6	15,5	359	393	372	19321	201520	81088
	Moyenne	#	5,1	25,6	13,0	296	339	315	13908	178707	70195
<b>Tunnel du Prado</b>	Dimanche 26/06/05	9:41 - 9:50	35,4	68,8	54,3	335	480	417	74139	145914	116689
	Mardi 28/06/05	11:48 - 12:02	10,7	132,2	83,6	302	665	475	27945	246252	158995
	Moyenne	#	23,1	100,5	68,9	318	572	446	51042	196083	137842
<b>Parking souterrain</b>	Dimanche 26/06/05	9:55 - 10:18	5,0	41,2	20,6	283	379	321	18114	68482	39003
	Jeudi 30/06/05	13:06 - 13:40	15,4	103,1	52,4	382	670	539	25825	87042	46351
	Moyenne	#	10,2	72,1	36,5	332	524	430	21970	77762	42677
<b>Urbain matin</b>	Lundi 27-06-05	8:44 - 9:04	7,0	35,5	18,0	257	349	296	18005	174780	83286
	Mardi 28/06/05	8:30 - 9:09	6,2	33,1	16,7	287	376	326	36057	119278	72757
	Vendredi 01/07/05	8:53 - 9:15	3,1	26,9	9,4	302	385	343	11874	154389	48829
	Moyenne	#	5,5	31,8	14,7	282	370	322	21979	149482	6829
<b>Urbain après-midi</b>	Jeudi 30/06/05	18:12 - 18:38	5,3	21,6	10,8	291	328	308	16256	97534	32406
	Vendredi 1/07/05	16:17 - 16:44	2,1	26,4	8,5	343	407	369	10790	88367	37356
	Vendredi 1/07/05	18:10 - 18:25	1,0	17,9	6,3	338	362	353	14209	62745	29314
	Lundi 4/07/05	16:43 - 17:12	3,5	33,2	15,5	409	453	430	9165	93806	45820
	Moyenne	#	3,0	24,8	10,2	346	388	365	12605	85613	36224

Tableau 4.3: Valeurs minimales, maximales et moyennes pour les concentrations de BC et de [COx] mesurées à Marseille

De manière prévisible, et étant donné le renouvellement moins efficace de l'air, les concentrations moyennes en milieux clos et confinés (tunnels et parkings souterrains) sont les plus élevées. Les moyennes se situent entre 30 et 40  $\mu\text{gC}/\text{m}^3$  pour le BC et entre 400 et 440  $\text{mgC}/\text{m}^3$  pour la [COx], avec des valeurs maximales allant jusqu'à 130  $\mu\text{gC}/\text{m}^3$  de BC et 665  $\text{mgC}/\text{m}^3$  pour la [COx] dans le cas du tunnel du Prado. Par contre, contrairement aux

concentrations de BC et [COx], le nombre de particules est relativement faible dans les parkings souterrains aussi bien à Paris qu'à Marseille.

Les concentrations en milieu extérieur sont bien évidemment plus faibles. Les concentrations les plus élevées à ciel ouvert se retrouvent sur le périphérique, puis sur l'autoroute et en milieu urbain. En ville à Paris, la concentration en BC est de  $13 \mu\text{gC}/\text{m}^3$  et celle de [COx] autour de  $360 \text{mgC}/\text{m}^3$ . A Marseille, une distinction a été faite entre le matin et le soir : la concentration moyenne en BC est plus faible le soir autour de  $10 \mu\text{gC}/\text{m}^3$  par rapport à celle du matin qui est de  $15 \mu\text{gC}/\text{m}^3$ , le phénomène est inversé pour la [COx], laquelle est de  $320 \text{mgC}/\text{m}^3$  le matin et de  $360 \text{mgC}/\text{m}^3$  l'après-midi.

Sur les autoroutes aux alentours de Marseille, les concentrations de BC et [COx] sont très proches de celles observées en ville. Elles sont de  $13 \mu\text{gC}/\text{m}^3$  pour le BC et de  $315 \text{mgC}/\text{m}^3$  pour [COx]. Sur le périphérique parisien, les valeurs sont plus élevées pour le BC.

Le nombre de particules est plus élevé à Paris qu'à Marseille. Dans les 2 cas, les maxima sont mesurés dans les tunnels, puis par ordre décroissant, sur autoroutes, et enfin sur les zones urbaines.

Les [COx] sont proches entre Marseille et Paris, avec une valeur respectivement de  $347 \text{mgC}/\text{m}^3$  et de  $335 \text{mgC}/\text{m}^3$  pour les mesures journalières (valeurs moyennes de l'ensemble des situations rencontrées). Ces valeurs restent proches dans les différentes catégories étudiées. Ainsi, dans les parkings souterrains, elles sont de  $430 \text{mgC}/\text{m}^3$  à Marseille et de  $446 \text{mgC}/\text{m}^3$  à Paris. Sur autoroute, la valeur moyenne de [COx] est de  $315 \text{mgC}/\text{m}^3$  à Marseille et de  $327 \text{mgC}/\text{m}^3$  sur les autoroutes péri-urbaines parisiennes. En zone urbaine, à Marseille, cette concentration est de  $322 \text{mgC}/\text{m}^3$  le matin et de  $365 \text{mgC}/\text{m}^3$  l'après-midi. A Paris, la valeur est de  $358 \text{mgC}/\text{m}^3$  pour l'ensemble de la journée.

### **3.2 Relation entre le nombre de particules et la concentration en BC**

Le rapport entre le nombre de particules et la concentration en BC a été calculé en fonction des différentes situations sur les 2 sites. Ces valeurs sont résumées dans le tableau 4.4. Le nombre entre parenthèses correspond au nombre de périodes d'observation effectuées. Le tableau donne également pour chaque catégorie, le pourcentage de particules

supplémentaires par rapport aux milieux clos  $\left( \frac{nb\ particules - nb\ particules\ milieux\ clos}{nb\ particules\ milieux\ clos} \times 100\% \right)$ .

La corrélation entre le nombre de particules et la concentration en BC a également été déterminée (cf. annexe 1 pour Marseille et annexe 2 pour Paris). Dans les zones fermées, les corrélations entre le BC et le nombre de particules sont bonnes, et varient entre 0,7 et 0,99. En extérieur, les valeurs de ces corrélations sont en général beaucoup plus variables et se situent entre 0,2 et 0,8.

	<i>Description</i>	<i>Nombre de particules / [BC]</i>	<i>Variation par rapport aux milieux clos</i>
<b>Paris</b>	Périphérique	7039 (2)	26%
	Urbain	7053 (4)	26%
	Milieus clos	5584 (4)	0%
	Trajet Gif – Paris	8384 (5)	50%
<b>Marseille</b>	Milieus clos	1708 (4)	0%
	Autoroute	5334 (8)	212%
	Urbain	3616 (13)	112%

Tableau 4.4: Variation du rapport (nombre de particules) / (concentration en BC) par rapport aux milieux clos

Les émissions de BC peuvent être considérées comme un traceur stable provenant principalement de la circulation routière. L'augmentation du rapport entre le nombre de particules et la concentration en BC, ainsi que leur moins bonne corrélation, en milieu extérieur, montrent clairement la présence de particules issues de différentes autres sources. Cette observation indirecte pourrait également suggérer la présence d'aérosols secondaires, qui se formeraient alors rapidement en milieu extérieur. La formation de particules par nucléation a été particulièrement observée en atmosphère propre (Rodriguez, 2005; Makela, 1997; Kulmala, 1998); mais aussi récemment dans l'atmosphère polluée de milieux urbains (Hamed, 2007; Kulmala, 2004). En outre, il a été observé que l'élargissement par condensation des particules est plus rapide en milieu pollué.

L'augmentation du ratio entre le nombre de particules et la concentration en BC entre zones fermées et extérieures est plus importante à Marseille qu'à Paris. Cette différence s'expliquerait par le plus grand nombre de particules issues d'autres sources que le trafic

automobile dans la région de Marseille.

### **3.3 Rapport BC/OC – comparaison des mesures embarquées aux mesures des stations fixes.**

Les mesures de BC sur filtres effectuées en voiture à Paris et Marseille ont été comparées à celles effectuées sur les trois sites fixes étudiés durant la campagne Marseillaise. Les trois sites présentent des profils différents dont les caractéristiques principales sont les suivantes :

- L'observatoire : situé en plein Marseille, il n'est néanmoins pas directement voisin de routes fréquentées. Ce site permet de caractériser le bruit de fond urbain.
- La Timone : situé à côté de l'hôpital de la Timone, il est voisin d'une artère de Marseille très fréquentée par les véhicules, ce site est directement au contact des émissions des véhicules.
- Port-de-Bouc : situé dans la ville de Port-de-Bouc à proximité des sites industriels de l'étang de Berre, sous l'influence des industries voisines.

La fraction carbonée totale (« Total Carbon » TC) des aérosols correspond à l'ensemble des aérosols carbonés restant après un traitement acide servant à éliminer les carbonates. Elle peut être divisée en deux groupes, d'une part les composés carbonés organiques (« Organic Carbon » OC) et d'autre part le « black carbon » (BC).

Les rapports BC/TC moyens ont été déterminés à partir des différents filtres pour chaque site et différentes périodes de la journée. Ces valeurs sont résumées dans le tableau 4.5, ainsi que les paramètres des droites de régression de la concentration en OC en fonction de la concentration en BC.



Site	Période	Rapport BC/TC moyen (%)	Droite de régression $OC = f(BC)$			
			Pente (OC/BC)	Ordonnée à l'origine	Coefficient de régression.	Nb Points
<b>Observatoire</b>	toutes les données	35%	0,95	2,78	0,660	27
	nuit (23h00 - 5h00)	34%	0,41	3,33	0,300	8
	matin (5h00 - 10h00)	35%	0,56	3,80	0,661	8
	journée (10h00 - 16h30)	35%	0,89	3,57	0,625	11
<b>Observatoire sans les week-ends</b>	toutes les données	36%	0,94	2,22	0,889	19
	nuit (23h00 - 5h00)	34%	0,13	3,74	0,108	6
	matin (5h00 - 10h00)	34%	0,60	3,84	0,767	6
	journée (10h00 - 16h30)	41%	1,09	1,22	0,982	7
<b>Timone</b>	toutes les données	37%	0,33	4,55	0,338	18
	journée entière ( 24h)	44%	0,28	4,10	0,284	4
	journée (10h00 - 16h30)	45%	0,10	5,95	0,122	7
	nuit (23h00 - 5h00)	30%	2,66	0,52	0,800	7
<b>Timone sans les week-ends</b>	toutes les données	40%	0,53	3,35	0,652	13
	journée entière ( 24h)	44%	0,12	4,97	0,127	3
	journée (10h00 - 16h30)	45%	0,65	2,74	0,580	5
	nuit (23h00 - 5h00)	32%	2,01	0,27	0,897	5
<b>Port de Bouc</b>	toutes les données (journées 24h)	47%	0,36	2,10	0,774	7
<b>Port de Bouc sans les week-ends</b>	toutes les données (journées 24h)	50%	0,47	1,57	0,945	5
<b>Voiture - Marseille</b>	toutes les données	42%	1,13	8,84	0,898	14
	milieu fermé	42%	0,90	34,89	0,728	5
	milieu fermé (sans le filtre 265)	45%	0,89	21,07	0,999	4
	urbain	43%	0,86	7,30	0,998	6
<b>Voiture - Paris</b>	toutes les données	52%	0,404	4,75	0,413	12
	milieu fermé	61%	0,563	1,78	0,472	4
	milieu fermé sans 1 filtre	69%	0,81	-3,3	0,998	3
	trajet Paris - Gif	49%	0,371	4,451	0,869	5
	urbain	45%	$f^{(1)}$	$f^{(1)}$	$f^{(1)}$	1
	périphérique	38%	$f^{(1)}$	$f^{(1)}$	$f^{(1)}$	1

<sup>(1)</sup> Ne disposant que d'une seule mesure, cette propriété ne peut être calculée.

Tableau 4.5: Mesures de BC et de OC sur filtres – Marseille & Paris

Les concentrations de BC et OC sont très corrélées pour toutes les mesures effectuées en voiture, celles-ci restent importantes sur le site de l'observatoire le matin et la journée, d'autant plus si l'on tient uniquement compte des mesures effectuées les jours de la semaine. Au site de la Timone, une bonne corrélation est obtenue uniquement pour les mesures effectuées la nuit et les mesures journalières en semaine. Dans le cas du site de Port de Bouc, la corrélation est bonne, surtout lorsque les week-ends ne sont pas pris en compte.

Ci-dessous, les rapports BC/TC moyens sont classés dans un ordre décroissant:

- (1) Port de Bouc 47% (50%)
- (2) Voiture 42%
- (3) Timone 37% (40%)
- (4) Observatoire 35%(36%)

Les valeurs entre parenthèses correspondent aux mesures effectuées uniquement en semaine.

Le site de Port de Bouc arrive en tête avec une valeur de 47% (50% sans prendre en compte les week-ends). Cette forte teneur en BC est sûrement à relier à la proximité de sites industriels. La valeur moyenne obtenue à partir des mesures effectuées en voiture est proche de celle obtenue sur le site de la Timone surtout lorsque seules les mesures effectuées en semaine sont prises en compte. Les valeurs les plus faibles sont obtenues pour le site de l'Observatoire, un peu plus à l'écart du trafic automobile.

Dans le cas des mesures embarquées, la valeur moyenne observée pour le trafic urbain à Paris est très proche de celle relevée à Marseille 45% et 43%, respectivement. Par contre, les mesures en milieux fermés sont très différentes, à Marseille la valeur moyenne se situe autour de 42% alors qu'à Paris cette valeur atteint 61%.

### **3.4 Bilan de masse chimique**

La reconstruction de la masse totale est faite séparément pour les particules fines et les grosses particules. Elle est basée sur plusieurs hypothèses:

- Les particules de BC mesurées sont supposées appartenir à 90% au mode fin et 10%

au mode grossier en milieux fermés et 85% au mode fin et 15% au mode grossier en milieu extérieur.

- La masse des particules de OC se répartit en général en milieu fermé à 80% dans les particules fines et à 20% dans les grosses particules et en extérieur à 60% dans les particules fines et 40% dans le mode grossier.
- La concentration en matière insoluble autre que le BC (qui sera définie ci-après sous l'appellation de « poussières ») est estimée à partir des concentrations mesurées en  $\text{Ca}^{2+}$ .
- La matière organique particulaire (Particulate Organic Matter -POM) est estimée à partir des concentrations de carbone organique OC. Un facteur 1,4 est appliqué dans les modes (fin et grossiers) en milieux clos. En milieu extérieur, un facteur 1,6 est utilisé pour le mode fin et 1,8 pour le mode grossier.

Les figures 4.2 et 4.3 représentent graphiquement la reconstruction des masses pour les différents cas de figure étudiés. Les concentrations des particules fines en milieux clos sont de 3 à 5 fois plus élevées par rapport aux mesures faites en extérieur. Elles sont composées majoritairement de POM et de BC. Pour le mode grossier, la masse totale d'aérosol diffère peu entre le milieu extérieur et les milieux clos. Par contre, la composition est très différente. En milieux clos, la majorité des aérosols se compose de POM et de BC alors qu'en extérieur, elle est majoritairement composée de « poussières » et dans une moindre mesure de POM. Pour les aérosols urbains, les différences ne sont pas vraiment significatives entre les mesures effectuées le matin et l'après-midi. L'augmentation des POM, des ions sulfates et ammonium observée l'après-midi pourrait très probablement être due à la formation d'aérosols secondaires. Néanmoins, les mesures sont certainement trop proches de la circulation pour permettre réellement de distinguer de grandes différences entre le matin et l'après-midi. Les mesures effectuées près de l'Étang de Berre correspondent à un bruit de fond industriel. Elles se caractérisent par une proportion élevée de BC par rapport à celle de POM dans le mode fin et par la prédominance des POM sur le BC dans le mode grossier.

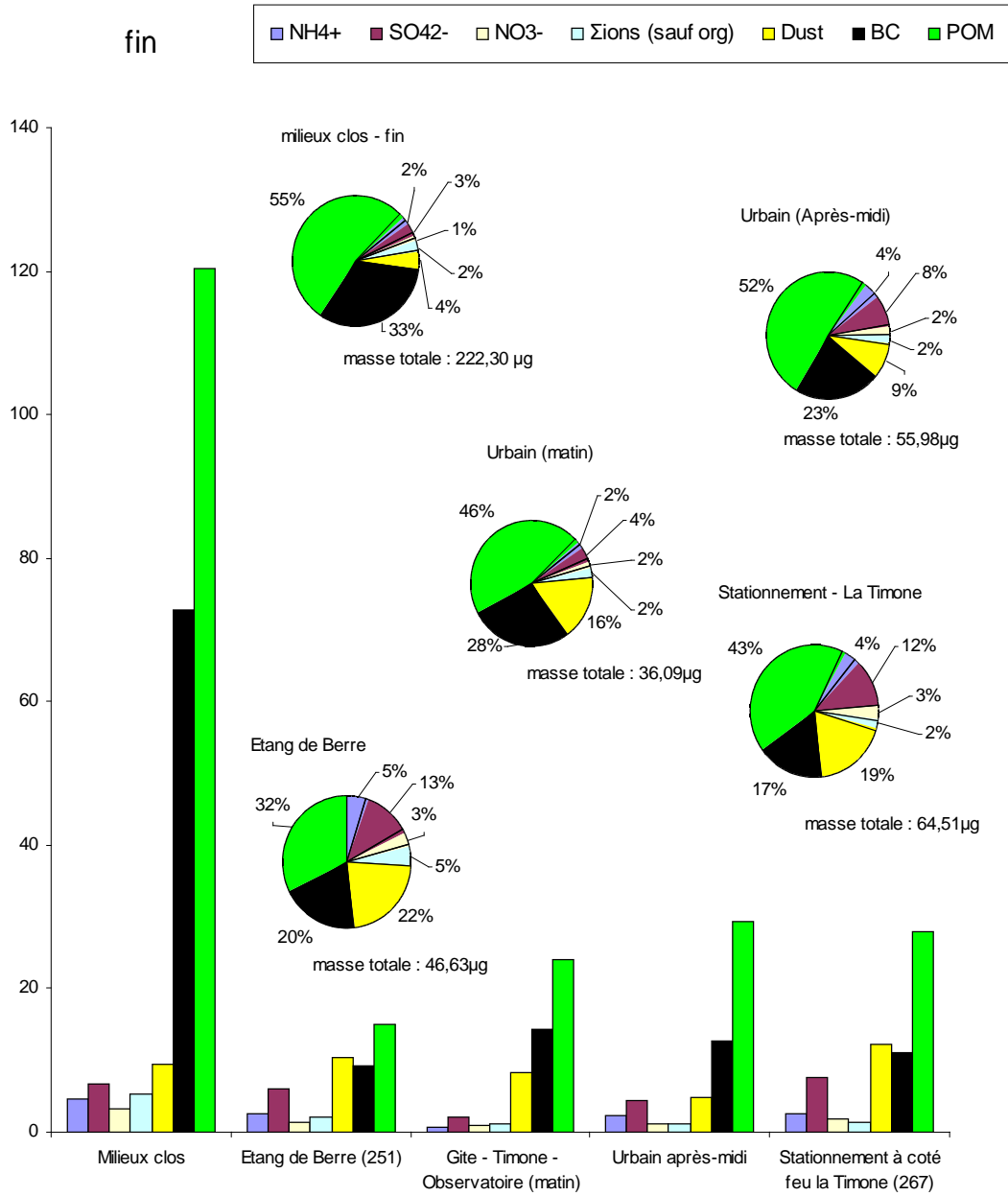


Figure 4.2: Reconstruction de la masse pour la fraction des particules fines collectées à Marseille.

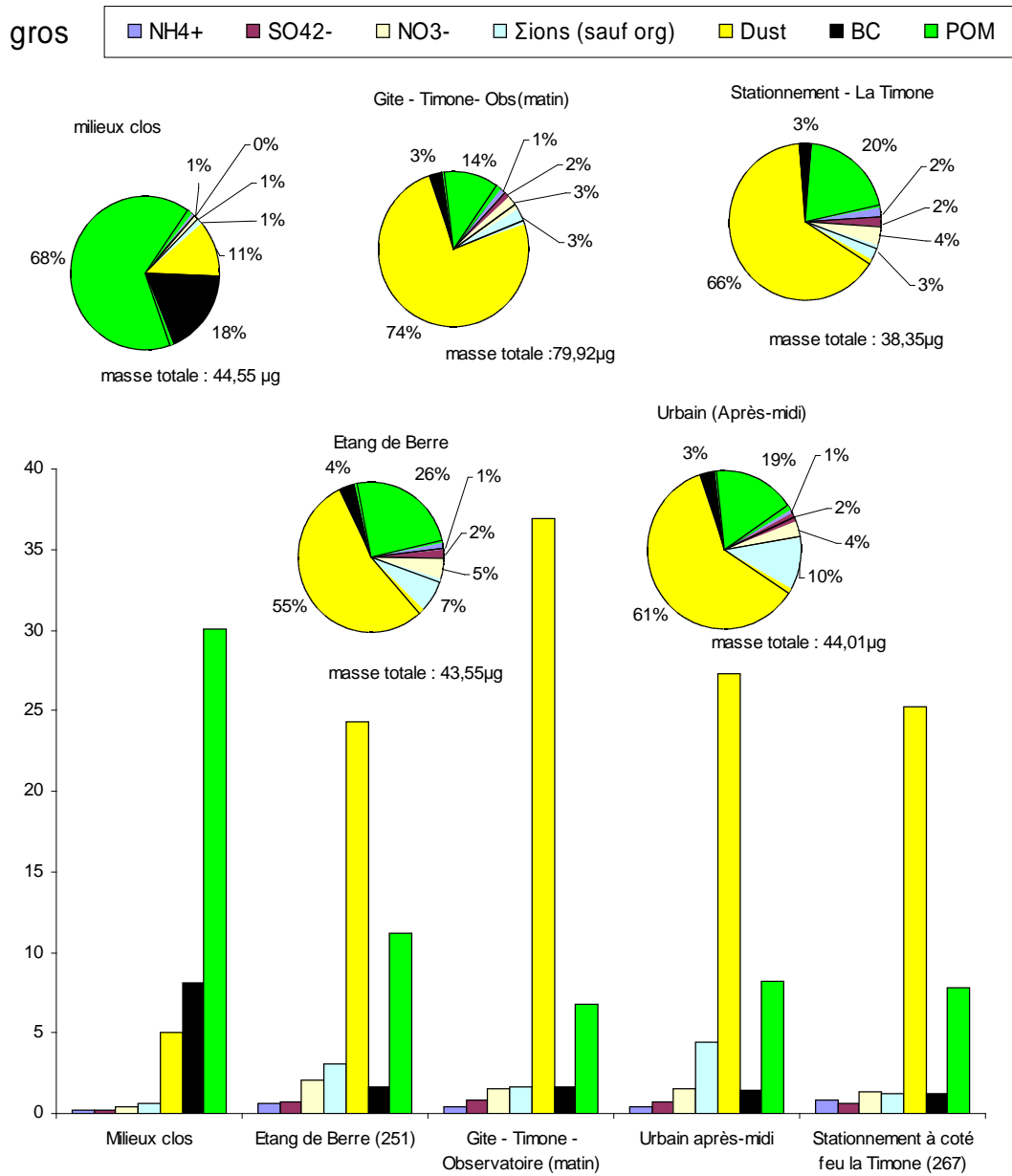


Figure 4.3: Reconstruction de la masse pour la fraction des grosses particules collectées à Marseille.

### 3.5 Détermination des facteurs d'émissions

Les meilleures corrélations entre la concentration en BC et la concentration de [COx] ont été obtenues en milieux fermés, c'est-à-dire pour les mesures effectuées dans les tunnels et les parkings souterrains. Les corrélations sont en général bonnes sur autoroutes et sur le périphérique. Par contre, celles trouvées en milieux urbains sont moins évidentes, en particulier en région parisienne.

Pour les périodes d'observation durant lesquelles des coefficients de corrélation significatifs ont été obtenus, les droites de régression ont été tracées afin de déterminer l'équation de la relation linéaire entre la concentration de « black carbon » et la concentration de [COx]. Les intervalles de confiance (à 95%) sont calculés pour la pente et l'ordonnée à l'origine de chaque droite. Pour chaque situation particulière observée durant plusieurs jours, la moyenne des pentes et celle des ordonnées à l'origine ont été calculées.

La relation linéaire entre la concentration en black carbon et la somme des concentrations en dioxyde et monoxyde de carbone a permis de définir un facteur d'émissions pour le BC. En effet, la pente de la droite correspond au facteur d'émissions du « black carbon » (cf. équation 4.1) car  $\Delta([\text{CO}_2] + [\text{CO}])$  représente environ 99% des émissions carbonées lors d'une combustion (Cachier, 1998). Les facteurs d'émissions ainsi calculés sont exprimés en  $\mu\text{g}$  de BC émis par mg de carbone (issus du carburant brûlé).

$$pente = FE_{BC} = \frac{\Delta BC (\mu\text{gC}/\text{m}^3)}{\Delta(\text{CO}_2 + \text{CO})(\text{mgC}/\text{m}^3)} \quad (4.1)$$

Dans un cas idéal (sans bruit de fond), la droite de régression devrait passer par l'origine. L'ordonnée à l'origine toujours négative indique, dans notre cas, la présence d'un bruit de fond pour le dioxyde et le monoxyde de carbone. La valeur du bruit de fond peut être extrapolée à partir de la droite de régression en calculant la valeur de l'abscisse du point pour lequel l'ordonnée est nulle. La figure 4.4 représente un exemple de droite de régression tracée pour le parcours dans le parking souterrain du Vieux Port à Marseille.

Les facteurs d'émissions calculés ainsi que les autres paramètres des droites de régression sont présentés dans les tableaux 4.6 et 4.7 respectivement pour Paris et Marseille.

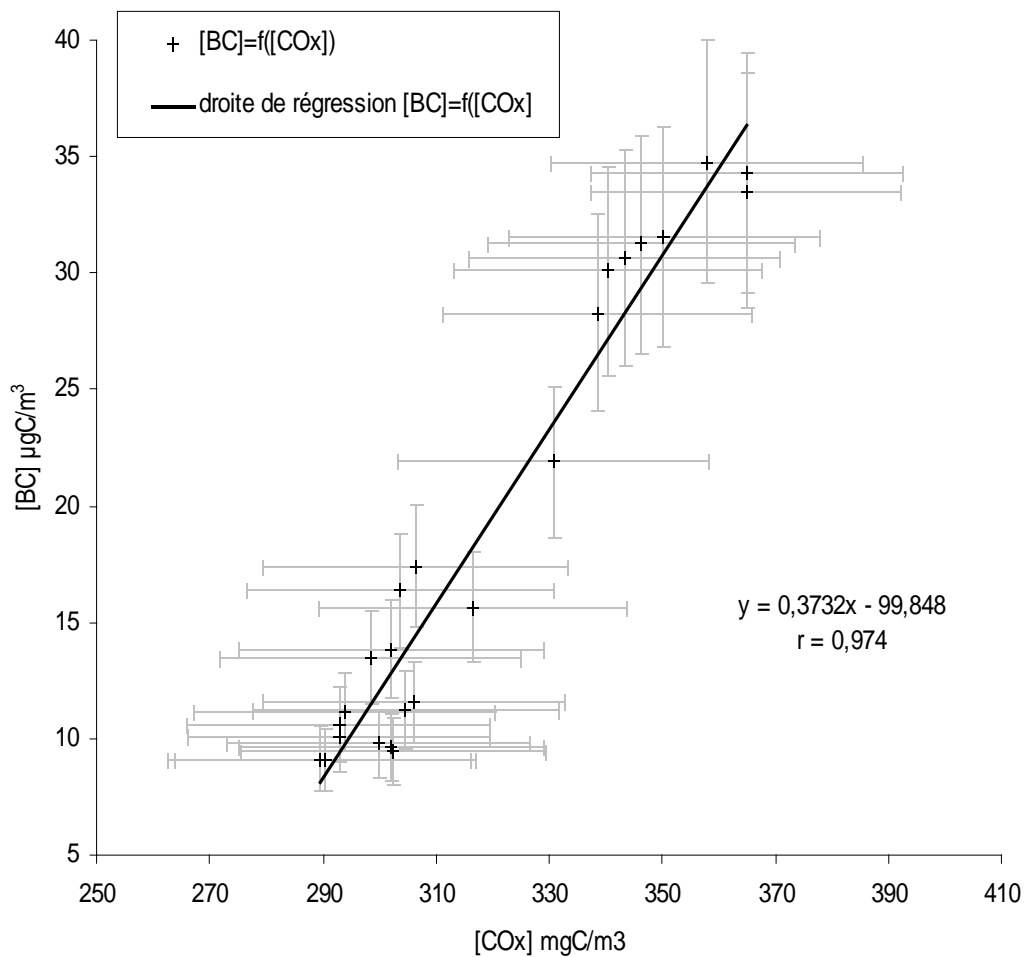


Figure 4.4: Droite de régression entre les concentrations de [CO<sub>x</sub>] et de BC, pour le site « parking souterrain » du Vieux Port de Marseille, le 26/06/05

Catégorie	Date	Horaire	Pente - FE g(BC)/kgC (Fuel)	Incertitude sur la pente	Ordonnée à l'origine ( $\mu\text{gC}/\text{m}^3$ )	Incertitude sur l'ordonnée à l'origine	Coefficient de régression r	Bruit de fond en $\text{CO}_2+\text{CO}$ y pour $x=0$ ( $\text{mgC}/\text{m}^3$ )	Nombre de points
Tunnel des Halles	Mardi 15/03/05	12:22 -12:34	0,218	49%	-51,4	87 %	0,81	236	13
	Mercredi 16/03/05	11:44 - 11:58	0,389	22%	-110,3	29 %	0,94	284	15
	<b>Moyenne</b>	<b>#</b>	<b>0,303</b>	<b>22,4%</b>	<b>-80,8</b>	<b>34 %</b>	<b>#</b>	<b>266</b>	<b>#</b>
Parking souterrain Bercy	Mardi 15/03/05	13:29 - 13:44	0,220	34%	-58,6	55 %	0,86	267	16
Périphérique	Lundi 14/03/05	12:14 - 13:56	0,557	24%	-149,4	28%	0,79	268	43
	Mercredi 16/03/05 <sup>a</sup>	12:35 - 13:14	0,414	33%	-118,1	39%	0,74	285	34
	<b>Moyenne</b>	<b>#</b>	<b>0,485</b>	<b>20 %</b>	<b>-133,7</b>	<b>24 %</b>	<b>#</b>	<b>277</b>	<b>#</b>
Urbain	Mercredi 16/03/05	12:00 - 12:30	0,264	38%	-77,5	47 %	0,71	294	22

Tableau 4.6: : Paramètres des régressions obtenus suite à la campagne de mesures faite à Paris sur les différents types de parcours.



Catégorie	Date	Horaire	Pente - FE g(BC)/kg C(Fuel)	Incertitude sur la pente	Ordonnée à l'origine ( $\mu\text{gC}/\text{m}^3$ )	Incertitude sur l'ordonnée à l'origine	Coefficient de régression r	Bruit de fond en $\text{CO}_2+\text{CO}$ y pour $x=0$ ( $\text{mgC}/\text{m}^3$ )	Nombre de points
Autoroute	Lundi 27/06/05	10:45 - 11:10	0,220	20 %	-58,3	23%	0,91	264	26
	Lundi 27/06/05	12:22 - 12:43	0,183	56 %	-43,4	70%	0,69	237	18
	Mardi 28/06/05	10:42 - 11:05	0,470	21 %	-134,1	23%	0,90	286	24
	Jeudi 30/06/05	10:34 - 10:55	0,426	25 %	-109,1	29%	0,88	257	22
	Samedi 02-07-05	9:35 - 10:03	0,386	39 %	-128,4	44%	0,70	333	29
	<b>Moyenne</b>	<b>#</b>	<b>0,337</b>	<b>14 %</b>	<b>-94,7</b>	<b>17 %</b>	<b>#</b>	<b>281</b>	<b>#</b>
Tunnel du Prado	Dimanche 26/06/05	9:41 - 9:50	0,271	25 %	-61,7	43 %	0,97	228	10
	Mardi 28/06/05	11h48 - 12h02	0,469	15 %	-126,6	24 %	0,90	270	15
	<b>Moyenne</b>	<b>#</b>	<b>0,370</b>	<b>13 %</b>	<b>-94,2</b>	<b>22 %</b>	<b>#</b>	<b>255</b>	<b>#</b>
Parking souterrain	Dimanche 26/06/05	9:55 - 10:18	0,373	10 %	-99,8	12 %	0,97	268	24
	Jeudi 30/06/05	13:06 - 13:40	0,208	27 %	-58,4	50 %	0,72	280	35
	<b>Moyenne</b>	<b>#</b>	<b>0,291</b>	<b>12 %</b>	<b>-79,1</b>	<b>20 %</b>	<b>#</b>	<b>272</b>	<b>#</b>
Urbain matin	Lundi 27- 06-05	8:44 - 9:04	0,294	39,8%	-68,7	50,9%	0,77	234	21
	Mardi 28/06/05	8:30 - 9:09	0,245	13,9%	-63,2	17,5%	0,92	259	40
	Vendredi 01/07/05	8:53 - 9:15	0,088	41,9%	-20,0	62,3%	0,74	229	23
	<b>Moyenne</b>	<b>#</b>	<b>0,209</b>	<b>20,3%</b>	<b>-50,7</b>	<b>25,5%</b>	<b>#</b>	<b>243</b>	<b>#</b>
Urbain après-midi	Jeudi 30/06/05	18:12 - 18:38	0,506	23%	-146,6	24%	0,91	290	20
	Vendredi 1/07/05	16:17 - 16:44	0,153	43%	-48,6	51%	0,72	317	23
	Vendredi 1/07/05	18:10 - 18:25	0,433	29%	-147,2	30%	0,89	340	16
	Lundi 4/07/05	16:43 - 17:12	0,581	35%	-234,0	38%	0,79	403	23
	<b>Moyenne</b>	<b>#</b>	<b>0,418</b>	<b>16%</b>	<b>-144,08</b>	<b>19%</b>	<b>#</b>	<b>344</b>	<b>#</b>

Tableau 4.7: Paramètres des régressions obtenus suite à la campagne de mesures faite à Marseille pour les différents type de parcours.

Une deuxième approche a été utilisée pour calculer ces facteurs d'émissions, qui consistait à appliquer l'équation 4.1 à partir de 2 points caractéristiques. Les points doivent correspondre à la base et au sommet d'un pic spécifique à une situation particulière comme le passage d'un camion, le démarrage à un feu vert de circulation, l'entrée ou la sortie d'un tunnel ou d'un parking souterrain. La figure 4.5 représente une période de mesures correspondant au trajet entre le gîte situé à Allauch et l'observatoire de Marseille en passant par le site de la Timone. Sur cette figure est matérialisé un pic spécifique au passage d'un camion. Le tableau 4.8 résume les valeurs trouvées par cette méthode ainsi que celles obtenues par régression (en Annexes 3 et 4, sont donnés les détails des valeurs mesurées).

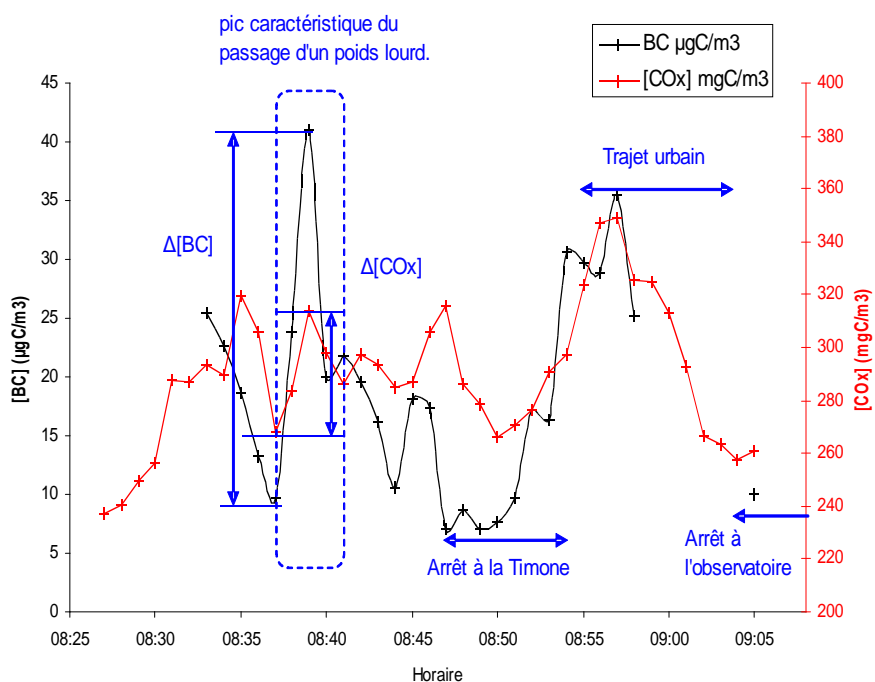


Figure 4.5: Trajet du gîte d'Allauch (10 km au nord – est du centre ville de Marseille) à l'observatoire en passant par La Timone. Mesures de BC et CO<sub>2</sub>+CO, Marseille, lundi le 27/06/05.

Catégorie	Facteurs d'émissions par pic spécifique g(BC)/kgC(Carburant)		Facteurs d'émissions par régression g(BC)/kgC(Carburant)	
	Paris	Marseille	Paris	Marseille
Milieus fermés	0,38	0,35	0,28 (±19%)	0,33 (±9%)
Camion	/	0,7	/	/
matin	/	/	/	0,21 (±20%)
soir	/	/	/	0,42 (±16%)
Circulation urbaine				
toute la journée	0,39	0,75	0,26 (±38%)	0,31 (±13%)
Autoroute / Périphérique	0,58	0,52	0,49 (±30%)	0,34 (±14%)

Tableau 4.8: Facteurs d'émissions du black carbon

En milieux fermés, c'est-à-dire pour les parkings souterrains et les tunnels, les valeurs des facteurs d'émissions sont comprises entre 0,22 g/kgC et 0,37 g/kgC avec une valeur moyenne se situant autour de 0,31 g/kgC. Pour les profils urbains, à Paris, la période de mesures retenue donne un facteur d'émissions moyen égal à 0,26 g/kgC. A Marseille, la distinction a été faite entre les mesures effectuées le matin et celles réalisées l'après-midi. Le matin, les facteurs d'émissions obtenus sont plus faibles et se situent autour de 0,21 g/kgC, alors que l'après-midi, ces valeurs sont particulièrement importantes avec une valeur moyenne de 0,42 g/kgC. Enfin, sur les autoroutes de la région marseillaise, le facteur d'émissions moyen était de 0,34 g/kgC alors que sur le périphérique extérieur parisien, ce dernier était de 0,49 g/kgC.

Les valeurs du bruit de fond en monoxyde et dioxyde de carbone estimées à partir des droites de régression sont relativement stables et se situent entre 260 et 280 mgC/m<sup>3</sup>. En négligeant la contribution du monoxyde de carbone, ces valeurs correspondent à un intervalle de 530 à 580 ppm de CO<sub>2</sub>. Cette fourchette de valeurs est dépassée pour les parcours urbains : à Paris, la somme des concentrations en monoxyde et dioxyde de carbone est égale à 294 mgC/m<sup>3</sup> et pour Marseille durant les après-midis, cette concentration atteignait 344mgC/m<sup>3</sup>.

Les facteurs d'émissions trouvés à partir de la sélection de pics spécifiques sont en accord avec les valeurs obtenues par régression, mais sont toujours supérieurs de 0,1 à 0,2 unités sauf pour ceux déterminés sur les parcours urbains où la différence est beaucoup plus importante. En effet, cette approche donne une valeur de 0,75 g/kgC alors que le facteur d'émission moyen obtenu par régression est de 0,31 g/kgC. Cette différence peut s'expliquer par le fait

que la circulation en ville est caractérisée par de nombreux changements de régime moteur : accélération, décélération, arrêt, redémarrage. La méthode utilisant la régression a tendance à moyenniser l'ensemble de ces changements de régime, par opposition à la méthode des pics, qui est utilisée de manière plus sélective et correspond souvent par exemple à une phase de redémarrage des véhicules arrêtés aux feux rouges.

### **3.6 Comparaison des résultats avec les facteurs d'émissions relevés dans la littérature**

Le tableau 4.9 résume différentes valeurs de facteurs d'émissions du black carbon par quantité de carburant consommée, trouvées dans la littérature. Une première remarque à considérer avant toute comparaison est la spécificité du parc automobile français. En effet, la proportion de véhicules diesel utilisés comme voitures particulières ou véhicules utilitaires légers représentait en 2005 plus de 50% de ces véhicules pour le parc statique (nombre de véhicules immatriculés en service) et jusqu'à 63% du parc roulant (ou parc « dynamique » qui est une estimation de la circulation effective des véhicules, *Hugrel, 2004*). Dans ces conditions, il est difficile de comparer les valeurs trouvées pour les véhicules légers en France à celles d'autres pays où les contributions des voitures diesel sont bien moindres.

Pour les véhicules légers (particuliers et utilitaires légers), il existe un facteur 10 entre un parc composé uniquement de véhicules essence et le parc français de composition mixte essence – diesel à environ 50/50. Les valeurs trouvées pour les véhicules poids lourds (0,7 g/kgC) sont comprises dans celles trouvées dans la bibliographie, qui se situent elles-mêmes dans un domaine de 0,5 à 1,66 g/kgC.

<i>Références</i>	<i>Source émettrice</i>	<i>FE gBC/kgC dans le fuel</i>	<i>Conditions - Commentaires</i>
<i>Miguel, 1998</i>	Véhicules légers (essence)	0,04 <sup>a</sup>	mesuré dans le tunnel de Caldecott, Baie de San Francisco pendant l'été 1996.
	Poids lourds (diesel)	1,66 <sup>a</sup>	
<i>Kirchstetter, 1999</i>	Véhicules légers (essence)	0,04 <sup>a</sup>	mesuré dans le tunnel de Caldecott, Baie de San Francisco pendant l'été 1997.
	Poids lourds (diesel)	1,49 <sup>a</sup>	
<i>Bond, 2004</i>	Tout véhicule (essence)	0,40 <sup>a</sup>	valeur issues de Gillies and Gertler 2000.
	Tout véhicule (diesel)	0,76 <sup>a</sup>	
<i>Geller, 2005</i>	Véhicules légers (essence)	0,04	mesuré dans le tunnel de Caldecott, Baie de San Francisco, Août et Septembre 2004
	Poids lourds (diesel)	1,01	
<i>Rogge, 1993</i>	Voitures essence	0,049 <sup>b</sup>	test sur banc à rouleaux en suivant le protocole « cold-start Federal Test Procedure » (FTP) pour simuler des conditions de conduite urbaine. valeur correspondant à la moyenne de 6 véhicules.
	Voitures essence catalysées	0,002 <sup>b</sup>	test sur banc à rouleaux en suivant le protocole « cold-start Federal Test Procedure » (FTP) pour simuler des conditions de conduite urbaine. valeur correspondant à la moyenne de 7 véhicules.
	Poids lourds (diesel)	0,74 <sup>b</sup>	test sur banc à rouleaux valeur correspondant à la moyenne de 2 véhicules.
<i>Grieshop, 2006</i>	Vitesse élevée (milieu de journée).	0,13 (0,11) <sup>c</sup>	milieu de journée (10h - 16h) pourcentage de poids lourds estimé à 19,2% tunnel autoroutier de Pittsburgh, Pennsylvanie
	Petite vitesse (heure de pointe)	0,09 (0,07) <sup>c</sup>	heure de pointe (7h-9h) pourcentage de poids lourds estimé à 11% tunnel autoroutier de Pittsburgh, Pennsylvanie
	Majorité de camions (tôt le matin)	0,18 (0,15) <sup>c</sup>	tôt le matin (0h-6h) pourcentage de poids lourds estimé à 36% tunnel autoroutier de Pittsburgh, Pennsylvanie
	Véhicules légers (essence)	0,031	facteur d'émission extrapolé
	Poids lourds (diesel)	0,50	
<i>Cette étude</i>	Tunnels et parkings souterrains (sans camion)	0,3 - 0,4	uniquement véhicules légers (diesel – essence)
	Urbain mixte	0,3 - 0,75	
	Périphérique - Autoroute	0,4 - 0,6	
	Poids lourds	0,70	

(a) : ramené à une masse de carbone dans le fuel en considérant les fractions massiques du diesel et de l'essence à respectivement 0,87 et 0,85. (Miguel et al, 1998).

(b) : ramené à une masse de carbone dans le fuel en considérant les fractions massiques du diesel et de l'essence à respectivement 0,87 et 0,85, et les densités à 830 g/l et 743 g/l. (Miguel et al 1998) .

(c) : valeur entre parenthèses en g/kg de fuel conversion à partir des fractions massiques de Miguel et al, 1998

Tableau 4.9: Facteurs d'émissions du BC - Comparaison à d'autres études

### **3.7 Application de nos résultats aux calculs d'émissions : cartographie des émissions de BC annuelles dues aux transports routiers.**

Du fait de l'existence et de la disponibilité des cadastres d'émissions de la région de Marseille, en particulier les cadastres d'émissions de CO et CO<sub>2</sub> et de nos facteurs d'émissions calculés, une cartographie des émissions de BC issues du secteur du transport a pu être construite pour cette zone (figure 4.6). Les données sur les émissions de dioxyde et monoxyde de carbone pour le secteur des transports routiers sont issues du cadastre ESCOMPTE pour l'année 1999 (François, 2005). Deux types de facteurs d'émissions ont été utilisés, un premier pour les véhicules légers fixé à 0,31 g/kgC et un second pour les poids lourds égal à 0,7 g/kgC.

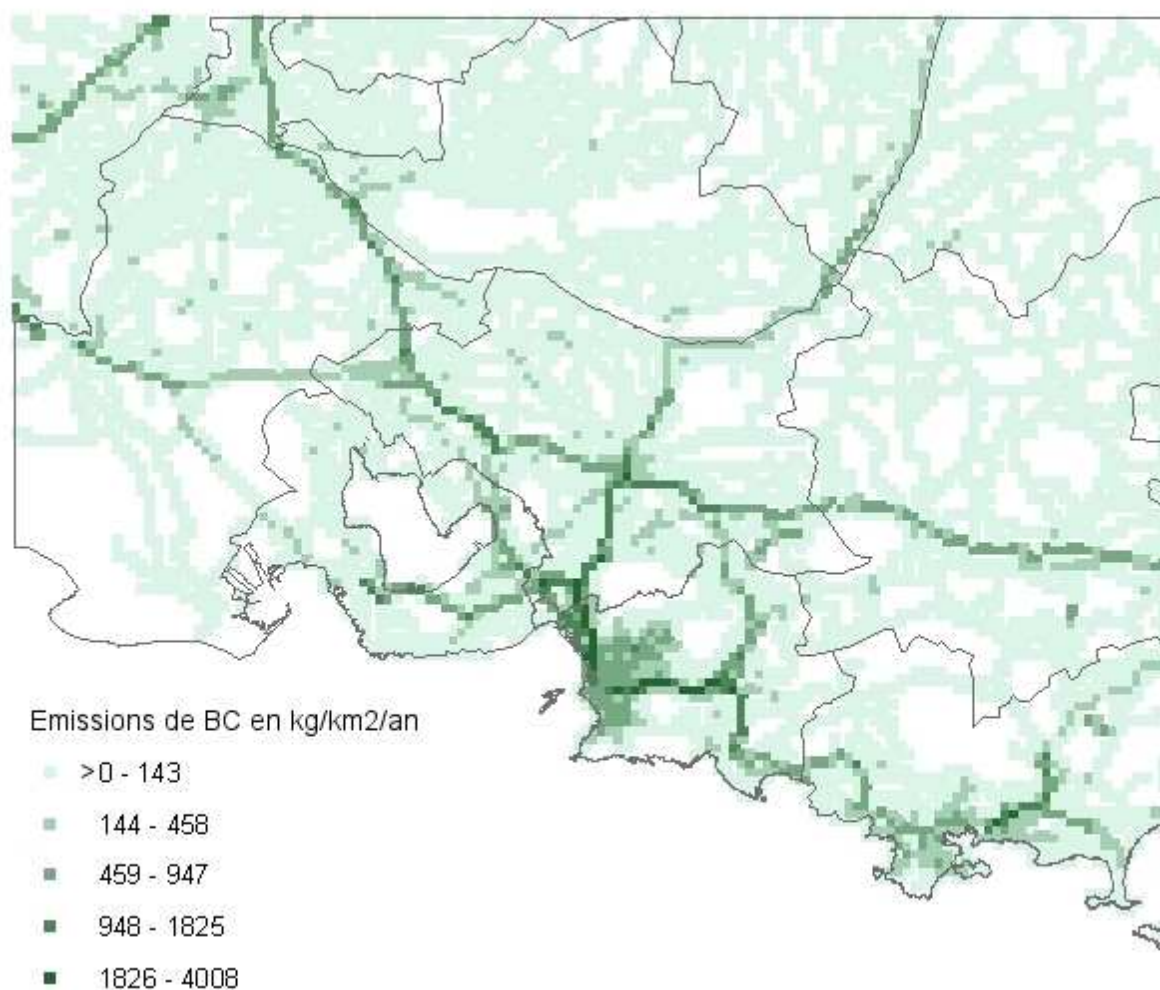


Figure 4.6: Émissions annuelles spatialisées au km<sup>2</sup> de « Black Carbon » dues au secteur des transports routiers calculées pour l'année 1999.

## 4 Conclusion

Lors de cette étude, il a été démontré que l'utilisation de la somme des concentrations de monoxyde et de dioxyde de carbone ( $[\text{CO}_2 + \text{CO}]$ ) comme indicateur de concentration en [BC] est une hypothèse valide. En se basant sur ce constat et sur des mesures « in situ », des facteurs d'émissions pour le BC spécifiques au parc automobile français ont pu être calculés. En effet, celui-ci se distingue de par sa forte proportion de véhicules diesel. De ce fait, le

secteur des transports routiers constitue un grand émetteur de BC dans l'atmosphère.

Par ailleurs, les mesures du nombre de particules ont également permis de montrer de façon indirecte la formation rapide d'aérosols secondaires en milieu extérieur par comparaison avec les mesures faites en milieux fermés. Les mesures sur filtres ont aussi permis de détailler les compositions des aérosols et de montrer les différences entre milieux fermés et milieu extérieur.



## 5 **Bibliographie du chapitre 4**

**Ammann M.**, Kalberer M., Jost D.T., Tobler L. *et al.*, **1998**, Heterogeneous production of nitrous acid on soot in polluted air masses, *Nature*, Volume 395, Pages 157-160

**Baumgardner D.**, Raga G., Peralta O., Rosas I. *et al.*, **2002**, Diagnosing black carbon trends in large urban areas using carbon monoxide measurements, *J. Geophys. Res.*, Volume 107(D21), Page 8342,

**Bond T.**, Streets D., Yarber K., Nelson S., Woo J. *et al.*, **2004**, A technology-based global inventory of black and organic carbon emissions from combustion Journal of Geophysical Research (Atmospheres), Volume 109, Page 14203.

**Bond T.**, Anderson T., Campbell D., **1999**, Calibration and intercomparison of filter-based measurements of visible light absorption by aerosols, *Aerosol Science and Technology*, vol. 30, Pages 582-600.

**Cachier**, H. Harisson, M. & Van Grieken, R. (ed.) *Atmospheric Particles Carbonaceous Combustion Aerosols* John Wiley & Sons Ltd., **1998**, Pages 295-347.

**Cros B.**, Durand P., Cachier H., Drobinski Ph. *et al.*, **2004**, The ESCOMPTE program: an overview, *Atmospheric Research*, Volume 69, Pages 241–279.

**François S.**, Grondin E., Fayet S., Ponche J.-L., The establishment of the atmospheric emission inventories of the ESCOMPTE program, **2005**, *Atmospheric Research*, 74, 5-35.

**Geller**, M.; Sardar, S.; Phuleria, H.; Fine, P., Sioutas, C. Measurements of Particle Number and Mass Concentrations and Size Distributions in a Tunnel Environment *Environ. Sci. Technol.*, **2005**, 39, 8653-8663.

**Grieshop**, A. P.; Lipsky, E. M.; Pekney, N. J.; Takahama, S. & Robinson, A. L. Fine particle emission factors from vehicles in a highway tunnel: Effects of fleet composition and season *Atmospheric Environment, Particulate Matter Supersites Program and Related Studies*, **2006**, 40, 287-298.

**Duan**, F.; He, K.; Ma, Y.; Jia, Y.; Yang, F.; Lei, Y.; Tanaka, S. & Okuta, T. Characteristics of carbonaceous aerosols in Beijing, China *Chemosphere*, **2005**, 60, 355-364

**Hugrel**, C. & Joumard, R. Transport routier – Parc, usage et émissions des véhicules en France de 1970 à 2025, *INRETS-LTE*, **2004**.

**Kirchstetter**, T. W.; Harley, R. A.; Kreisberg, N. M.; Stolzenburg, M. R. & Hering, S. V. On-road measurement of fine particle and nitrogen oxide emissions from light- and heavy-duty motor vehicles Atmospheric Environment, **1999**, 33, 2955-2968.

**Lighty** J. S., Veranth J. M., Sarofim A. F., **2000**, Combustion aerosols: factors governing their size and composition and implications to human health, Air & Waste Manage. Assoc. Volume 50, Pages 1565-1618.

**Latha** K.M. & Badarinath, K **2004**, Correlation between black carbon aerosols, carbon monoxide and tropospheric ozone over a tropical urban site, Atmospheric Research, Volume 71, Pages 265–274.

**Miguel**, A.; Kirchstetter, T.; Harley, R. & Hering, S. On-Road Emissions of Particulate Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Black Carbon from Gasoline and Diesel Vehicles Environ. Sci. Technol., **1998**, 32, 450-455.

**Morawska** L., Zhang J., **2002**, Combustion sources of particles: 1. Health relevance and source signatures, *Chemosphere*, Volume 49, Pages 1045–1058.

**Jacobson** M. Z., **2001**, Strong radiative heating due to the mixing state of black carbon in atmospheric aerosols, *Nature*, Volume 409, Pages 695-697.

**Rogge**, F.; Hildemann, M.; Mazurek, A. & Caw Glen, R. Sources of Fine Organic Aerosol. 2. Noncatalyst and Catalyst-Equipped Automobiles and Heavy-Duty Diesel Trucks Environ. Sci. Technol., **1993**, 27, 636-651.

**Pope** C.A., Burnett R.T., Thun M.J., Calle E.E., *et al.*, **2002**, Lung cancer, cardiopulmonary mortality, and long-term exposure to fine particulate air pollution. JAMA. Volume 287(9): Pages 1132-1141.

**Yu** S., Dennis R. L., Bhave P. V., Eder B. K., Primary and secondary organic aerosols over the United States: estimates on the basis of observed organic carbon (OC) and elemental carbon (EC), and air quality modeled primary OC/EC ratios Atmospheric Environment, Particulate Matter: Atmospheric Sciences, Exposure and the Fourth Colloquium on PM and Human Health - Papers from the AAAR PM Meeting, **2004**, 38, 5257-5268.

## **Conclusion générale**

L'importance des cadastres dans la prévention et l'étude de la pollution atmosphérique ainsi que leur complexité et la difficulté de leur construction ont été présentées et démontrées. Connaître l'incertitude sur les données d'émissions d'un inventaire apporte une information complémentaire importante pour son utilisation. Une méthodologie a été mise en place pour évaluer les incertitudes sur les émissions de composés ou classes de composés prioritaires pour être appliquée aux cadastres d'émissions du projet ESCOMPTE et de la région Nord Pas de Calais (NPDC).

Dans le cadre du programme ESCOMPTE, le travail a porté sur l'inventaire d'émissions annuel de 1999. Cet inventaire comprend 4 grandes catégories de sources : Transports (Tr), Sources Fixes (SF), Grandes Sources Ponctuelles (GSP) et Biogéniques (B). Dans notre étude, les sources biogènes n'ont pas été prises en compte. L'étude a porté sur les six composés ou classes de composés suivants : monoxyde de carbone (CO), dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>), composés organiques volatils non méthaniques (COVNM), oxydes d'azote (NO<sub>x</sub>), dioxyde de soufre (SO<sub>2</sub>), méthane (CH<sub>4</sub>). Pour réaliser les calculs d'incertitude sur ces émissions, 3 scénarios ont été considérés:

- Le scénario 1 basé sur des incertitudes par défaut pour les différentes données sources, correspond au cas le plus défavorable. Ce scénario a donc tendance à surestimer les incertitudes et a permis de ce fait, d'obtenir une estimation de l'incertitude maximale.
- Le scénario 2 utilisant des valeurs « optimistes » des incertitudes sur les données sources, a permis d'avoir une estimation de l'incertitude minimale pouvant être obtenue dans le meilleur des cas, à partir des valeurs par défaut.
- Le scénario 3 prend en compte des incertitudes déterminées avec plus de précision pour les sources contribuant le plus à l'incertitude globale. Ces sources ont dû être mises en évidence au préalable par une analyse de sensibilité sur le premier scénario. Ce scénario est le plus réaliste par rapport aux données disponibles.

Par la suite, la combinaison des incertitudes est réalisée au moyen de 2 méthodes complémentaires l'une de l'autre: la méthode de propagation des erreurs d'une part, et la méthode « Monte-Carlo », d'autre part.

A partir des résultats de la simulation Monte-Carlo, une analyse de sensibilité a été

effectuée. Cette dernière a permis de calculer les incertitudes des différents grands secteurs d'activités (Tr, SF ou GSP) et de mettre en évidence celles qui contribuaient le plus à l'incertitude sur l'émission de chaque composé considéré.

Pour le CH<sub>4</sub>, les COVNM, le CO et le CO<sub>2</sub>, il s'est avéré que la principale source d'incertitudes correspond à la combustion hors industrie du secteur résidentiel (SF). L'incertitude sur les émissions de NO<sub>x</sub> provient essentiellement du secteur des transports, et plus particulièrement, du secteur routier avec en premier lieu les poids lourds suivis par les véhicules particuliers puis les activités maritimes. Dans le cas du SO<sub>2</sub>, l'incertitude principale est issue des GSP : primordialement les procédés de l'industrie pétrolière à part presque égale avec le transport maritime (Tr) suivis de près par 2 autres activités des GSP : les activités de raffinage et de production de pétrole.

Suite à cette analyse de sensibilité, les incertitudes globales ont été calculées en considérant les différentes incertitudes sur les paramètres d'entrée estimées dans le cadre du scénario 3, ce dernier étant le plus spécifique à l'inventaire spatialisé d'émissions ESCOMPTE. Les résultats obtenus ont montré que ces incertitudes étaient :

- inférieures à 10% pour le SO<sub>2</sub>, les NO<sub>x</sub> et le CO<sub>2</sub>.
- autour de 20% pour le CO
- autour de 25% pour le CH<sub>4</sub>
- autour de 30% pour les COVNM

Et ceci quelle que soit la méthode de calcul utilisée (« Propagation des Erreurs » ou « Monte-Carlo »).

Pour le cadastre Nord-Pas-de-Calais, les incertitudes ont été évaluées pour les sources fixes et pour 8 composés ou familles de composés : les monoxyde et dioxyde de carbone CO et CO<sub>2</sub>, les oxydes d'azote NO<sub>x</sub>, le dioxyde de soufre SO<sub>2</sub>, les composés organiques volatils non méthaniques COVNM, l'ammoniac NH<sub>3</sub> et le protoxyde d'azote N<sub>2</sub>O. Dans le cas de cet inventaire, seule la méthode de « propagation des erreurs » a été utilisée. Les incertitudes obtenues sont plus importantes que celles de l'inventaire ESCOMPTE et leurs valeurs se situent :

- autour de 60 % pour le CO<sub>2</sub> et le SO<sub>2</sub>
- autour de 70 % pour les COVNM
- autour de 75 % pour les NO<sub>x</sub>
- autour de 80 % pour le CO
- autour de 130 % pour le CH<sub>4</sub>
- et de près de 200 % pour le NH<sub>3</sub> et le N<sub>2</sub>O

D'autre part, la sensibilité du modèle CHIMERE aux incertitudes du cadastre d'émissions Nord-Pas-de-Calais a été testée. Deux méthodes ont été utilisées, avec dans les 2 cas un intervalle d'incertitudes fixé pour chaque donnée d'entrée d'émissions. La première approche évalue les cas extrêmes où toutes les valeurs sont minimisées ou maximisées et comparées à un scénario de référence. La seconde approche est basée sur la méthode « Monte-Carlo » : un grand nombre de simulations ont été effectuées sur la même période en modifiant de manière aléatoire (dans l'intervalle d'incertitudes fixé) les données d'entrée issues du cadastre. Pour chaque composé simulé, un intervalle de confiance a ainsi pu être déterminé à partir des n simulations réalisées et comparées à la valeur de référence. Les résultats diffèrent selon le composé et la maille du cadastre considéré. Néanmoins, les incertitudes moyennes en sortie du modèle restent en général plus faibles que celles assignées en entrée, bien qu'elles puissent être beaucoup plus importantes localement en cas de pics d'émissions particuliers.

La seconde partie du travail de recherche a été entreprise afin de compléter les cadastres ESCOMPTE existant, notamment pour les émissions de particules carbonées issues du secteur des transports routiers, en introduisant un composé supplémentaire, le « Black Carbon » BC. Pour cela, deux campagnes de mesures ont été organisées en 2005 sur 2 zones d'étude différentes :

- La première en région parisienne d'une durée de 3 jours (du 14 au 16 mars 2005) ) dont l'objectif prioritaire était de tester les méthodes de mesures, l'appareillage utilisé et les modes opératoires.
- La seconde dans la région de Marseille pendant une période de 10 jours (du 26 juin au 5 juillet 2005) pour appliquer la méthodologie validée en région parisienne à la zone

### ESCOMPTE de Marseille.

Ces expérimentations *in situ* ont été effectuées à l'aide d'un véhicule utilitaire léger équipé pour les mesures directes et en continu des concentrations en CO, CO<sub>2</sub> et BC ainsi que du nombre de particules. Simultanément et en parallèle, les aérosols atmosphériques ont été prélevés par pompage sur filtres afin de compléter les mesures par des analyses chimiques à posteriori des particules en fonction de leur taille. Les mesures effectuées ont été classées en fonction des types d'environnements directs (situations de trafic et localisation). Ainsi, différentes corrélations entre les concentrations en CO+CO<sub>2</sub> et BC ont pu être établies, chacune étant représentative d'une des 5 situations du trafic routier considérées :

- milieux confinés et/ou clos (tunnels, parkings souterrains),
- parcours urbains (centre ville),
- autoroutes et autoroutes urbaines (périphérique autour de Paris),
- stationnement extérieur,
- trajets du centre urbain vers la périphérie.

A partir des résultats obtenus lors des campagnes de mesures 2005, des facteurs d'émissions pour le BC ont été déterminés dans des cas spécifiques : circulation urbaine, milieux fermés (tunnels et parkings souterrains), autoroutes et poids lourds. Les valeurs trouvées ont permis, par comparaison avec les résultats d'autres études, de mettre en évidence la particularité du parc automobile français qui comporte un très grand nombre de véhicules diesel. En effet, les facteurs d'émission trouvés pour le BC sont jusqu'à 10 fois plus importants en France par rapport aux valeurs existant dans la bibliographie qui se réfèrent à des parcs composés soit uniquement de véhicules à essence, soit comportant des fractions très minoritaires de véhicules diesel.

Pour finir, les résultats obtenus ont été utilisés pour construire un cadastre d'émissions de BC sur le modèle des cadastres du programme ESCOMPTE. Cet inventaire spatialisé de BC apparaît tout à fait cohérent et pertinent et vient compléter utilement la base de données ESCOMPTE. Il permet notamment de visualiser la distribution des émissions de BC sur l'ensemble de la région couverte par le domaine ESCOMPTE.

## **Annexes**



<i>Date</i>	<i>Description</i>	<i>Horaire</i>	<i>r</i>	<i>Nombre moyen particules / [BC] moyen</i>
Dimanche 26/06/05	Tunnel du Prado	9h41 - 9h50	0,88	2149
	Parking du vieux Port Urbain	9h55 - 10h18 12h06 - 12h48	0,9 0,53	1895 2953
	Feux rouge la Timone	12h06 - 12h48	0,11	3437
	Trajet Observatoire - Port de Bouc	10h08 - 11h24	0,31	4232
Lundi 27/06/05	Autoroute	10h45 - 11h10	0,80	6921
	Trajet Port de Bouc - Observatoire	12h19 - 13h06	0,69	5637
	Autoroute	12h22 - 12h43	0,24	6084
	Trajet Observatoire - Gite	17h44 - 18h34	0,81	3146
Mardi 28/06/05	Gite - La Timone - Observatoire	8h06 - 9h09	0,78	4357
	Observatoire - Port de Bouc	10h26 - 11h07	0,34	4426
	Port de Bouc - Tunnel du Prado	11h19 - 11h47	0,46	4283
	Tunnel du Prado	11h48 - 12h02	0,99	1903
	Gite - Bld de la Blancarde	14h05 - 14h32	0,46	3187
Jeudi 30/06/05	Gite - Observatoire	8h30 - 9h13	0,49	3509
	Stationnement Observatoire	9h14 - 10h24	0,18	14539
	Observatoire - Martigues	10h25 - 10h55	0,63	4748
	Parking souterrain	13h06 - 13h40	0,78	884
	Cours Lieutaud - Observatoire	16h53 - 17h20	0,52	3026
	Observatoire - Gite	18h13 - 19h03	0,71	3629
Vendredi 01/07/05	Gite - La Timone - Observatoire	8h35 - 9h16	0,41	4428
Samedi 02/07/05	Gite - La Timone - Observatoire	8h32 - 9h09	0,79	5025
	Trajet Observatoire - Port de Bouc	9h27 - 10h05	0,84	4471
	Observatoire - la Timone - Gite	17h59 - 18h37	0,84	3600
Lundi 04/07/05	Gite - La Timone - observatoire	8h12 - 9h09	0,42	3689
	Autoroute Port de Bouc - Marseille	10h48 - 11h16	0,62	6616
	Vieux port -> observatoire (urbain)	11h18 - 11h45	0,76	2986
	Observatoire - La Timone -Gite	16h45 - 17h39	0,83	2998
Mardi 05/07/05	Observatoire - La Timone - Gite	17h01 - 17h46	0,58	3660

Annexe 1: Corrélation entre le nombre de particules et la concentration en BC, Marseille

<i>Date</i>	<i>Description</i>	<i>Horaire</i>	<i>r</i>	<i>Nombre moyen particules/ [BC] moyen</i>
Lundi 14/03/05	Trajet Gif – Paris	11h31 – 12h04	0,79	7586
	Périphérique	12h04 – 12h56	0,77	8819
	Urbain	13h08 – 13h23	0,54	9900
	Stationnement parking extérieur	13h24 – 13h55	0,73	5650
	Urbain	14h06 – 15h02	0,04	6602
Mardi 15/03/05	Trajet Gif – Paris	10h34 – 11h00	0,29	7091
	Tunnel St Cloud	11h09 – 11h15	0,76	9111
	Tunnel des Halles	11h44 – 11h58	0,96	5257
	Urbain	12h00 – 12h30	0,2	8009
	Tour du périphérique	12h35 -13h14	0,46	5259
	Paris – Saclay	13h17 – 13h30	0,7	10753
Mercredi 16/03/05	Trajet Gif – Paris	10h26 – 10h55	0,68	7785
	Urbain	11h05 – 11h43	0,38	5396
	Tunnel des Halles	12h22 – 12h34	0,84	4954
	Parking Bercy	13h29 -13h44	0,66	3014
	Urbain	14h06 – 14h31	0,28	4906
	Paris – Gif	14h32 -14h55	0,84	8707

Annexe 2: Corrélation entre le nombre de particules et la concentration en BC, Paris

<i>Catégorie</i>	<i>Date</i>	<i>Horaire</i>	<i>Concentration en BC (<math>\mu\text{gC}/\text{m}^3</math>)</i>	<i>Concentration en CO<sub>2</sub> + CO (<math>\text{mgC}/\text{m}^3</math>)</i>	<i>Facteur d'émissions (FE)</i>	
Périphérique	Lundi 14/03/05	12h34	7,16	283,9	0,34 ( $\pm 21\%$ )	
		11h37	19,89	321,3		
	Mercredi 16/03/05	12h35	23,36	301,1	0,21 ( $\pm 21\%$ )	
		12h36	34,59	353,7		
		12h38	12,07	330,1	1,01 ( $\pm 21\%$ )	
		12h40	35,92	353,7		
		13h04	19,20	344,9	0,68 ( $\pm 21\%$ )	
		13h05	38,99	373,9		
		13h06	18,61	338,5	0,67 ( $\pm 21\%$ )	
		13h07	50,73	386,7		
		13h07	50,73	386,7	0,55 ( $\pm 21\%$ )	
		13h09	5,26	304,5		
	Moyenne					0,58 ( $\pm 20\%$ )
	Urbain	Lundi 14/03/05	14h08	50,12	390,2	0,57 ( $\pm 21\%$ )
14h15			5,32	311,9		
14h15			5,32	311,9	0,38 ( $\pm 20\%$ )	
14h19			20,30	351,7		
Mardi 15/03/05		11h12	22,06	307,0	0,21 ( $\pm 21\%$ )	
		11h14	8,01	355,7		
Mercredi 16/03/05		12h17	6,311	328,2	0,41 ( $\pm 21\%$ )	
		12h18	18,347	357,7		
Moyenne					0,39 ( $\pm 20\%$ )	
Tunnels		Mercredi 16/03/05	11h11	7,51	281,9	0,41 ( $\pm 21\%$ )
	Tunnel St Cloud	11h12	16,73	304,5		
	Mercredi 16/03/05	11h44	6,39	279,5	0,36 ( $\pm 21\%$ )	
	Tunnel des Halles	11h47	47,71	395,1		
	Moyenne					0,38 ( $\pm 20\%$ )

Annexe 3: Facteurs d'émissions par mesures directes de pics - Paris

<i>Catégorie</i>	<i>Date</i>	<i>Horaire</i>	<i>Concentration en BC (<math>\mu\text{gC}/\text{m}^3</math>)</i>	<i>Concentration en CO<sub>2</sub> + CO (<math>\text{mgC}/\text{m}^3</math>)</i>	<i>FE</i>
Milieux fermés	Dimanche 26/06/05 – Tunnel du Prado	9h40	9,58	304,1	0,39 ( $\pm 20\%$ )
		9h47	64,80	444,3	
	Dimanche 26/06/05 – Parking du Vieux Port	10h15	4,95	284,4	0,41 ( $\pm 20\%$ )
		10h04	41,19	373,4	
	Mardi 28/06/05 – Tunnel du Prado	11h47	4,09	296,1	0,35 ( $\pm 21\%$ )
		12h02	132,53	664,7	
		12h02	132,53	664,7	
	Jeudi 30/06/05 - Parking souterrain	12h13	8,42	316,8	0,36 ( $\pm 21\%$ )
		13h05	4,043	311,4	
			13h10	73,51	611,1
		Moyenne			0,35 ( $\pm 20\%$ )
Camions	Lundi 27/06/05	8h37	9,69	267,6	0,68 ( $\pm 19\%$ )
		8h39	40,92	313,9	
		12h43	8,884	299,1	
		12h46	35,16	359,7	
	Jeudi 30/06/05	8h40	8,80	277,5	0,98 ( $\pm 19\%$ )
		8h42	42,07	311,4	
		8h41	9,43	273,1	
		8h51	28,56	320,3	
		10h38	17,57	297,1	
		10h39	34,34	317,3	
	Lundi 04/07/06	8h58	19,52	438,4	0,87 ( $\pm 18\%$ )
		8h59	36,65	458,1	
		16h51	33,15	453,1	
		16h52	12,52	424,6	
		Moyenne			0,70 ( $\pm 20\%$ )
Circulation urbaine	Dimanche 26/06/05	12h06	6,12	312,9	0,95 ( $\pm 19\%$ )
		12h08	32,23	347,8	
	Jeudi 30/06/05	9h11	22,02	300,6	0,63 ( $\pm 20\%$ )
		9h19	1,19	267,6	
		10h25	1,123	274,0	
		10h32	19,19	300,1	0,69 ( $\pm 20\%$ )

	16h27	19,44	377,4	0,93 ( $\pm 18\%$ )	
	16h29	4,27	361,1		
	16h31	5,81	372,9	0,66 ( $\pm 18\%$ )	
	16h32	14,63	386,2		
Vendredi 1/07/05	16h33	11,00	372,9	0,21 ( $\pm 19\%$ )	
	16h34	18,16	406,9		
	16h36	4,70	376,9	1,22 ( $\pm 20\%$ )	
	16h37	26,37	394,6		
	18h14	1,386	338,0		
		18h17	17,91	360,6	0,73 ( $\pm 19\%$ )
	Samedi 2/07/05	8h57	8,88	357,2	0,86 ( $\pm 19\%$ )
9h00		37,52	390,6		
18h06		4,91	401	0,67 ( $\pm 19\%$ )	
18h09		27,95	435,4		
Lundi 04/07/06	16h52	12,52	424,6	0,72 ( $\pm 18\%$ )	
	16h53	21,32	436,9		
	16h54	6,301	426,1	0,75 ( $\pm 19\%$ )	
	16h56	23,643	449,2		
	Moyenne			0,75 ( $\pm 20\%$ )	
Autoroute	Mardi 28/06/05	8h20	7,47	311,9	0,42 ( $\pm 19\%$ )
		8h24	27,17	359,2	
	Jeudi 30/06/05	18h19	6,55	306,5	0,70 ( $\pm 19\%$ )
		18h24	21,63	328,1	
		18h41	4,67	296,7	0,47 ( $\pm 20\%$ )
		18h44	21,16	332,1	
	Vendredi 1/07/05	8h44	15,82	377,4	0,12 ( $\pm 18\%$ )
		8h47	9,80	327,7	
		18h33	4,67	366,5	1,06 ( $\pm 19\%$ )
		18h35	13,02	374,4	
	Lundi 04/07/06	8h24	9,74	385,2	0,41 ( $\pm 20\%$ )
		8h27	42,91	465,9	
		8h30	15,43	419,7	1,1 ( $\pm 18\%$ )
		8h31	27,26	430,5	
		17h14	12,21	432,0	0,25 ( $\pm 18\%$ )
17h15		17,83	454,1		
17h17		16,38	442,3	0,15 ( $\pm 18\%$ )	
17h18		19,12	460		
	Moyenne			0,52 ( $\pm 20\%$ )	

Annexe 4: Facteurs d'émissions par mesures directes de pics - Marseille