

“ Analyse des sources primaires diffuses de métaux et HAP et modélisation des flux annuels émis dans les eaux de ruissellement ”, ANR INOGEV : Innovations pour une Gestion durable de l’Eau en Ville, Tâche 3, Rapport final de sous-tâche

Guido Petrucci, Marie-Christine Gromaire, Ghassan Chebbo

▶ **To cite this version:**

Guido Petrucci, Marie-Christine Gromaire, Ghassan Chebbo. “ Analyse des sources primaires diffuses de métaux et HAP et modélisation des flux annuels émis dans les eaux de ruissellement ”, ANR INOGEV : Innovations pour une Gestion durable de l’Eau en Ville, Tâche 3, Rapport final de sous-tâche. [Rapport de recherche] Ecole des Ponts - ParisTech. 2014. hal-01712942

HAL Id: hal-01712942
https://enpc.hal.science/hal-01712942

Submitted on 19 Feb 2018

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L’archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d’enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Projet ANR-09-VILL-0001-01

INOGEV : Innovations pour une Gestion durable de l'Eau en Ville

Programme Villes Durables 2009

Tâche 3

Rapport final de sous-tâche :

« Analyse des sources primaires diffuses de métaux et HAP et modélisation des flux annuels émis dans les eaux de ruissellement »

Rédacteurs de ce rapport	
Civilité, prénom, nom	M. Guido Petrucci
	Mme Marie-Christine Gromaire M. Ghassan Chebbo
Téléphone	01 64 15 37 60
Adresse électronique	gromaire@leesu.enpc.fr
Date de rédaction	Janvier 2014

Table des matières

Introduction 5
Méthode générale 8
Les sources primaires diffuses de polluants dans le ruissellement urbain 8
Sources liées à l'occupation du sol 9
Sources liées aux activités 9
Sources liées aux comportements 11
Dépôt atmosphérique 11
Structure de la méthode d'estimation 11
Estimation de l'incertitude 13
Estimation de l'incertitude pour les paramètres élémentaires 14
Propagation de l'incertitude 17
Applications 18
Méthodologies d'estimation des émissions 21
Trafic routier et chauffage domestique 21
Dépôt atmosphérique 46
Matériaux de toiture 50
Résultats 56
Conclusions et perspectives 64
Bibliographie 66

Liste des figures

Figure 1 - Sources diffuses de polluants dans les eaux de ruissellement urbaines 8

Figure 3 - Bassin versant de Sucy-en-Brie. Limites du bassin versant (bleu), rues (BDTOPO, rouge), bâtiments (BDTOPO, blanc)..... 18

Figure 4 - Bassin versant du Pin Sec (source: Lamprea, 2009)..... 19

Figure 5 - Bassin versant de Chassieu, avec occupation du sol. Source: Becouze, 2010. 20

Figure 6 - Schéma des sources considérées. Les lignes en pointillé sont des apports négligeables. 21

Figure 7 - Trafic moyen journalier annuel mesuré dans la zone de Sucy. Sources: CG94, DIRIF. ... 23

Figure 8 - Carte du trafic moyen journalier annuel sur le bassin versant de Sucy-en-Brie. 26

Figure 9 - Carte du trafic moyen journalier annuel sur le bassin versant de Chassieu 29

Figure 9 - Contenu en HAP de 8 types de pneus. Source: Sadikstis et al., 2012. 39

Figure 14 - Synthèse bibliographique du contenu en HAP des pneus. 39

Figure 15 - Synthèse bibliographique des valeurs d'usure des pneus. 40

Figure 16 - Estimations du dépôt atmosphérique annuel à Sucy. 49

Figure 17 - Répartition des émissions de Cu sur les trois sites. 57

Figure 18 - Répartition des émissions de Pb sur les trois sites. 58

Figure 19 - Répartition des émissions de Zn sur les trois sites..... 59

Figure 20 - Répartition des émissions de HAP sur les trois sites..... 60

Liste des tableaux

Tableau 1- Typologies des tronçons de route dans le bassin versant de Sucy-en-Brie et attribution d'une charge de trafic 24

Tableau 2 - Estimation du trafic en l'absence de mesures. Source: WG-AEN, 2006..... 25

Tableau 3 - Typologies des tronçons de route dans le bassin versant de Chassieu et attribution d'une charge de trafic 28

Tableau 4 - Synthèse des résultats des estimations du volume annuel de trafic sur les trois sites. 31

Tableau 5 – Moyennes des concentrations en métaux dans les plaquettes de freins. Source : Hjortenkrans et al. (2007). 32

Tableau 6 - Moyenne des concentrations en métaux des plaquettes de freins. Adaptation au cas français des valeurs proposées par Hjortenkrans et al. (2007)..... 33

Tableau 7 - Synthèse bibliographique des concentrations en métaux des plaquettes de freins. .. 34

Tableau 8 - Synthèse des valeurs retenus pour le calcul des émissions dues à l'usure des freins. 37

Tableau 9 - Synthèse bibliographique des concentrations de métaux dans les pneus. 37

Tableau 10 - Valeurs retenus pour les concentrations en métaux et HAP des pneus. 39

Tableau 11 - Synthèse des valeurs retenus pour le calcul des émissions dues à l'usure des pneus. 41

Tableau 12 - Synthèse bibliographique des concentrations de métaux dans les chaussées. 42

Tableau 13 - Valeurs retenus pour les concentrations en métaux et HAP des chaussées 42

Tableau 14 - Synthèse des valeurs retenus pour le calcul des émissions dues à l'usure des chaussées. 43

Tableau 15 - Valeurs retenus pour les concentrations en métaux des carburants. 44

Tableau 16 - Synthèse des valeurs retenus pour le calcul des émissions à l'échappement. 46

Tableau 17 - Estimations du dépôt atmosphérique annuel à Pin Sec. 49

Tableau 18 - Emissions spécifiques par les matériaux de toiture. 51

Tableau 19 – Matériaux de couverture. 51

Tableau 20 - Distribution des matériaux pour gouttières et descentes. 54

Tableau 21 - Emissions spécifiques sur les trois bassins versants. Les flux sont normalisés par la surface imperméable de chaque bassin. Le format est $\mu \pm \sigma$ (C_v)..... 56

Introduction

Dans le cadre de la gestion des flux polluants vers les systèmes aquatiques, le contexte réglementaire constitué par la Directive Cadre sur l'Eau de 2000 incite à identifier et contrôler les polluants dès leurs sources. Le propos est de favoriser les actions préventives par rapport à celles curatives, généralement plus coûteuses, complexes et n'empêchant pas, au moins temporairement, les impacts négatifs sur l'environnement. Les efforts déployés au cours des dernières décennies pour limiter les sources ponctuelles de pollution, particulièrement industrielles, ont porté au devant de la scène les sources de pollution diffuses, et en particulier celles liées aux villes : bien que reconnues depuis longtemps (e.g. Deutsch et Desbordes, 1981), la croissance urbaine rapide, la concentration et la variété d'activités anthropiques qu'elle favorise, la multiplicité des substances prenant part au métabolisme urbain, sont autant de raisons soutenant l'importance et l'actualité de l'identification des flux de polluants émis par les villes.

Cet intérêt a porté à la réalisation d'un nombre croissant d'études des flux urbains de polluants vers les eaux de ruissellement, souvent regroupé sous l'expression anglaise « Substance Flow Analysis » (SFA ; Brunner et Rechberger, 2003 ; Hansen et Lassen, 2002 ; Terekhanova et al., 2012) qui, dans son sens plus général, désigne l'étude des flux d'une substance au travers d'un système déterminé. L'approche des SFA est souvent très simple, se fondant sur des bilans de masse pour chaque compartiment du système analysé. Hansen et Lassen (2002) résument la procédure des SFA en : « *input + formation = output + degradation + accumulation* ». La difficulté réside dans la quantification de l'ensemble des flux : dans la grande majorité des cas, ces flux ne sont pas directement mesurables, ou ne le sont qu'à des échelles spatiales et temporelles différentes de celles auxquelles on s'intéresse. Par conséquent, la pratique d'une SFA est constituée principalement par une collecte importante de données disparates, une homogénéisation de ces données, une adaptation au cas spécifique traité, une série de « transformations d'échelle » permettant de reconduire les estimations à l'échelle souhaitée. Si, donc, la méthodologie générale des SFA peut être facilement identifiée, chaque application spécifique demande des adaptations importantes selon les caractéristiques du système, de la substance analysée, des données à disposition.

Le propos des SFA est aussi bien scientifique qu'opérationnel : il peut inclure le support aux évaluations d'impact sur l'environnement, l'établissement de priorités pour l'élaboration de politiques (quelles sources de polluants sont les plus significatives) et pour la recherche

scientifique (quelles sources de polluants sont conjointement significatives et peu connues). Suivant le propos spécifique à chaque SFA, le point focal de l'analyse peut varier. Certaines SFA, par exemple, principalement centrées sur l'évaluation des impacts sur le milieu récepteur, détaillent avec précisions les flux s'écoulant dans les systèmes d'assainissement (e.g. les déversoirs d'orage, les stations d'épuration, les boues produites, etc. ; Benedetti et al., 2006; Rule et al., 2006). Cependant, ces SFA utilisent souvent de très fortes simplifications dans l'estimation des sources primaires de polluants : s'intéressant aux flux en réseau, elles négligent l'origine de ces flux. Dans ces cas, on fait souvent recours à des approches agrégées, utilisant des concentrations moyennes de polluants dans le ruissellement selon des classes d'utilisation des sols (voir, par exemple, la synthèse réalisée par Göbel et al., 2007). Le principal désavantage de ces solutions est que, en réduisant la capacité de comprendre quels processus sont effectivement responsables de la charge de polluant (par exemple, si une pollution des eaux de ruissellement de toiture dépend des matériaux de couverture, des accessoires tels les gouttières ou les noues, ou bien du dépôt atmosphérique), elles empêchent d'identifier des stratégies de mitigation. Elles ne permettent pas de prévoir les effets d'une modification, par exemple, des matériaux de construction ou de la composition des carburants, et ne sont donc pas adaptées à une perspective de contrôle à la source des flux polluants (Cui et al., 2010). Pour pouvoir aller dans cette direction, il faut faire référence à d'autres approches de SFA, qui visent à identifier et quantifier ce qu'on peut appeler les « sources primaires » de polluants, c'est-à-dire les sources et les processus élémentaires qui contribuent à la formation du flux global de polluants à l'échelle de la ville (e.g. Bjorklund, 2011 ; Chèvre et al., 2011 ; Davis et al., 2001).

La difficulté principale de ces études, en lien avec la disponibilité de données que nous avons évoquée plus haut, réside dans la multiplicité des facteurs influençant les différentes sources et émissions. Dans la série de calculs qui constitue la SFA, à chaque étape quelques concentrations, ratios, etc. doit être estimé. Plusieurs de ces facteurs sont difficiles à quantifier, ou même complètement inconnus. Au-delà de la recherche et collecte de données il est souvent nécessaire, sur la base de la littérature scientifique et technique, ainsi que de l'expérience de l'analyste, d'adopter des « hypothèses raisonnables » sur les facteurs devant être estimés (e.g. Davis et al., 2001 ; Westerlund, 2001). Cette solution pragmatique permet de surmonter les manques d'informations associées à l'estimation des sources primaires, mais soulève le problème de l'incertitude des flux estimés. En raison du manque d'information, mais aussi de la variabilité spatiale et temporelle des processus concernés, souvent mal caractérisée par les données disponibles, les estimations des sources et des flux constituant les SFA sont généralement très

incertaines (Benedetti et al., 2006). Une estimation correcte des incertitudes est encore plus difficile que l'estimation des flux eux-mêmes : les informations sur la variabilité et l'incertitude sont moins fréquentes et accessibles que les informations sur l'ampleur des processus. D'autre part, la solidité de l'analyse et son utilité dépendent de la possibilité de fournir des estimations de l'erreur commis. Une difficulté supplémentaire est que, en raison de la variabilité des données disponibles, des informations et des méthodes de calcul utilisées dans l'analyse des sources primaires, il est impossible de définir une seule procédure d'estimation des incertitudes capable de couvrir l'ensemble des situations se présentant au sein d'une SFA. Les procédures habituellement utilisé se basent souvent sur des analyses de sensibilité appliquées à une sélection de facteurs ou de paramètres réputés prioritaires, mais la portée de ces pratiques est limitée, car la variabilité des facteurs est souvent déterminée de manière approximative et peu réaliste (Chèvre et al., 2011; Hansen and Lassen, 2002; Tangsubkul et al., 2005).

Sur la base de ces considérations, dans le cadre d'INOGEV, nous avons élaboré une méthodologie d'analyse des sources primaires de polluants et nous l'avons appliquée aux bassins versants du projet pour l'analyse des émissions de cuivre, plomb, zinc et HAP. La méthodologie proposée ne s'écarte pas des choix classiques pour les SFA dans le principe de la quantification, mais elle fournie un cadre plus complet et flexible pour l'analyse des incertitudes. L'application aux trois bassins, et en particulier à celui de Sucy-en-Brie qui a servi d'exemple principal pour l'élaboration de la procédure, a permis d'élaborer, au delà de la méthode générale, plusieurs méthodes spécifiques visant à quantifier l'étendue ou les facteurs d'émissions propres à différentes sources.

Méthode générale

Les sources primaires diffuses de polluants dans le ruissellement urbain

La première étape d'une analyse des sources primaires consiste dans la détermination des sources potentiellement significatives pour le(s) polluant(s) et le(s) bassin(s) versant(s) étudiés. Les sources diffuses peuvent être regroupées en trois typologies : liées à l'occupation des sols, liées aux activités, liées aux comportements. A ces trois typologies, il est nécessaire d'ajouter le dépôt atmosphérique. Une synthèse est présentée dans la figure 1, et des détails sur les sources et les informations disponibles sont données dans les prochains paragraphes.

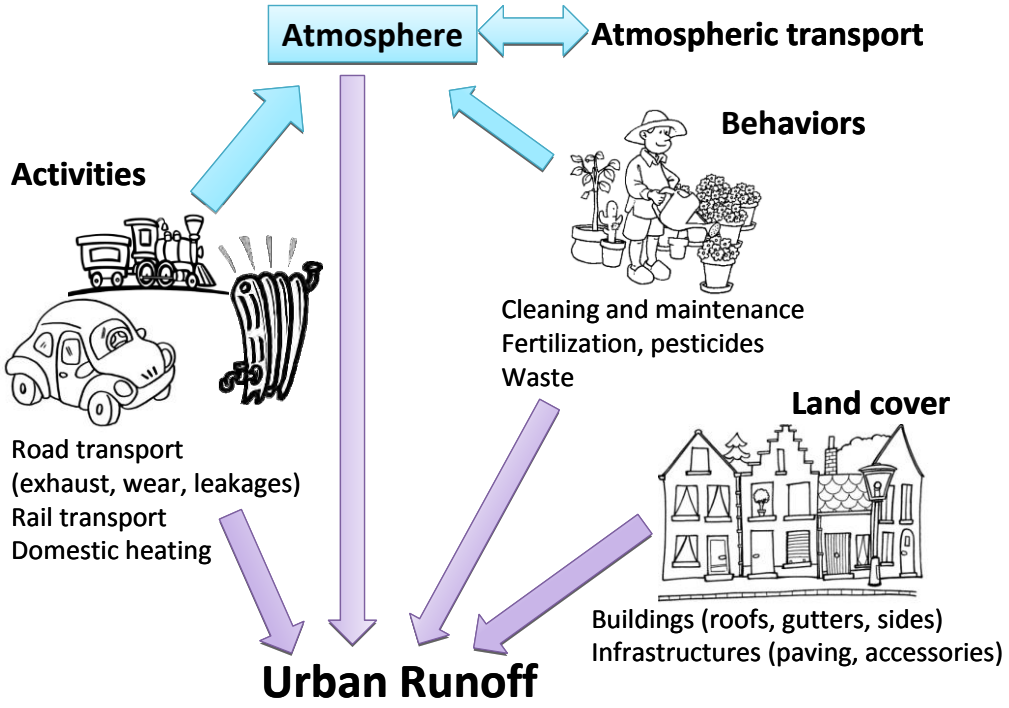


Figure 1 - Sources diffuses de polluants dans les eaux de ruissellement urbaines

Sources liées à l'occupation du sol

Dans cette typologie nous considérons l'ensemble des sources qui dépendent du lessivage opéré par le ruissellement des eaux pluviales entrant en contact avec les matériaux urbains. La quantification de ces sources dépend généralement d'une quantification des surfaces et des matériaux utilisés dans les bâtiments et dans les infrastructures.

Les matériaux les plus étudiés du point de vue de la pollution des eaux sont ceux utilisés pour les rampants des toitures, pour lesquels les principaux facteurs d'émissions sont disponibles (e.g. Robert-Sainte et al., 2009; Van Metre and Mahler, 2003). Cependant, les estimations de ces émissions à l'échelle du bassin versant ou de la ville sont rares. Rares sont aussi les études sur les accessoires des toitures (gouttières et descentes, noues, joints d'étanchéité) qui, constitués souvent par des matériaux autres que ceux des rampants, ont été identifiés comme des sources potentiellement significatives de polluants (Gromaire, 1998). Alors que des éléments potentiellement polluants sont présents aussi dans d'autres parties des bâtiments (façades, grilles), ils ne sont que peu exposés au ruissellement, ce qui les rends dans la plupart des cas des sources négligeables. Cependant, quelque recherche à ce sujet est disponible (Burkhardt et al., 2011 ; Davis et al., 2001).

Les matériaux des infrastructures comprennent les matériaux des chaussées (souvent du béton bitumineux ; Drapper et al., 2000 ; Gilbert and Clausen, 2006) ou des voies ferrées et des accessoires, comme les caténaires des trains, tram ou trolley, les barrières de sécurité, l'éclairage urbain et la signalisation. Caténaires et barrières sont considérées, quand présent, des sources de pollution importante, en particulier pour les émissions de métaux (Legret and Pagotto, 1999; Chèvre et al., 2011). Au contraire, les autres accessoires sont souvent négligeables en raison de leur faible exposition au ruissellement (van Bohemen and Janssen van de Laak, 2003; Westerlund, 2007).

Sources liées aux activités

Cette typologie regroupe l'ensemble des émissions qui ne dépendent pas directement de l'occupation du sol du bassin versant, mais plutôt des activités anthropiques qui y ont lieu. Leur

quantification se base donc sur l'analyse de l'intensité de ces activités, en particulier trafic et chauffage.

Les émissions liées au transport routier sont généralement bien documentées. Cependant, en raison de leur relevance pour la pollution atmosphérique, les études les concernant sont souvent centrées sur les émissions gazeuses et de particules de petite taille (i.e. diamètre <10 µm, PM_{10}), plus dangereuses pour la santé humaine lorsqu'elles se trouvent dans l'atmosphère, et plus sujettes aux phénomènes de transport atmosphérique que les particules plus grossières. Or ces dernières, qui se déposent au sol rapidement, peuvent contribuer significativement à la pollution des eaux pluviales (Legret, 2001; van Bohemen and Janssen van de Laak, 2003). Plus en détail, les émissions à l'échappement, produisant la majorité des particules fines, sont largement traitées dans les études sur le compartiment atmosphérique. Au contraire les études sur les autres émissions sont plus rares (Thorpe and Harrison, 2008). Ces dernières comprennent l'usure des freins (Westerlund, 2001; Hjortenkrans et al., 2007), des pneus (Wik and Dave, 2009) et de la chaussée (Kennedy and Gadd, 2003). Une autre source corrélée au transport routier est la fuite de fluides à partir des véhicules (par exemple, huile moteur et des freins) : la composition de ces fluides est relativement simple à déterminer (informations producteur, mesures sur des échantillons), mais leur potentiel en tant que source de pollution est très peu caractérisé, notamment en ce qui concerne l'ampleur moyenne de ces fuites (Göbel et al., 2007 ; Bjorklund, 2010).

Le transport ferroviaire (au delà des émissions liées à l'infrastructure, discutées plus haut) est aussi une source potentiellement importante de polluants, et notamment de métaux et HAP (Malawska and Wilkomirski, 2001).

Le chauffage domestique, comme les émissions routières à l'échappement, est plus étudié en tant que source de pollution atmosphérique que hydrique (e.g. Fenger, 1999 ; Schauer et al., 2003). Chacun des principaux carburants utilisés pour le chauffage a des émissions spécifiques bien documentées (CITEPA, 2012), mais bien que des évaluations des émissions à l'échelle nationale soient disponibles en France et dans les autres pays d'Europe, des évaluations locales sont rares.

Sources liées aux comportements

Pour certains polluants les émissions dépendent plus des comportements individuels, collectifs ou institutionnels que de l'utilisation des sols ou des activités. C'est le cas, par exemple, des biocides, pesticides, fertilisants et des autres produits chimiques employés pour l'entretien des espaces urbains privés ou publics (Blanchoud et al., 2004 ; Botta et al., 2012 ; Van de Voorde et al., 2011 ; Wittmer et al., 2010). La quantification de ces sources est particulièrement difficile : des facteurs comme les traditions locales, les pratiques et les réglementations, les conditions sociales et économiques, peuvent être déterminantes dans le poids de ces émissions.

Dépôt atmosphérique

Une partie des polluants émis dans le bassin versant passent dans le compartiment atmosphérique. Là, les polluants des différentes sources primaires sont mélangés, une partie peut être transportée à l'extérieur du bassin versant, des substances émises à l'extérieur du bassin peuvent y rentrer. Une partie des polluants présents dans l'atmosphère peut enfin passer dans le ruissellement, soit par dépôt sur les surfaces urbaines et lessivage ultérieur, soit par entrainement par la pluie. L'ensemble de ces processus rend difficile, au niveau du dépôt atmosphérique, de distinguer parmi les sources primaires et locales et les apports externes au bassin. Cependant, le flux atmosphérique total peut être quantifié par des mesures de dépôt (e.g. Azimi et al., 2003 ; 2005 ; Davis and Birch, 2010 ; van der Swaluw, 2011 ; Lamprea et al., 2012) ou par la modélisation. Certaines recherches basées sur la modélisation ont même abordé la distinction entre les différentes sources (e.g. Ying, 2009 ; Fallah Shorshani et al., *submitted*).

Structure de la méthode d'estimation

Après l'identification des sources primaires significatives pour l'application, l'étape suivante est celle de la quantification de chacune. Comme dans la majorité des SFA (Hansen and Lassen, 2002), nous utilisons comme point de départ un bilan de masse. Les émissions totales annuelles pour le polluant p, TE_p (kg/an), peuvent être calculé par la somme des émissions $E_{p,s}$ (kg/an) de chaque source primaire :

$$TE_p = \sum_s E_{p,s} \quad \text{(eq. 1)}$$

De là, les émissions de chaque source peuvent être exprimées comme le produit entre une « assiette », ou extension, e_s, une concentration ou émission spécifique $C_{p,s}$ et une efficacité $\eta_{p,s}$:

$$E_{p,s} = e_s \cdot C_{p,s} \cdot \eta_{p,s} \qquad \text{(eq. 2)}$$

Selon la source et les données disponibles, le sens et les unités des différents facteurs peuvent varier, et l'équation 2 peut éventuellement être réarrangée. Par exemple, pour l'usure des freins, e_s peut représenter le volume total de trafic dans le bassin versant (km*véhicules/an=km*v/an) multiplié par l'usure moyenne des plaquettes (kg/(km*v)), $C_{p,s}$ la concentration moyenne de *p* dans les plaquettes (kg/kg) et $\eta_{p,s}$ la fraction du produit d'usure se déposant au sol (i.e. ne passant dans l'atmosphère ou restant piégé dans la boite des freins). $\eta_{p,s}$ peut aussi inclure des processus de dégradation, selon le polluant. Pour les émissions de Zn à partir des toitures en zinc, e_s peut représenter la surface totale de toitures en zinc (m^2) et $C_{p,s}$ les émissions spécifiques de Zn par mm de pluie ($kg/(m^2*mm_{pluie})$ multipliées par la pluie moyenne annuelle (mm_{pluie}).

La procédure de définition, pour chaque source, des facteurs et de la forme de l'équation 2 est l'opération centrale de la SFA, qui demande de trouver un compromis entre le niveau de détail de l'analyse et les données disponibles. D'autre part, l'estimation séparée de chaque source permet d'appliquer une méthode itérative de raffinement des estimations : il est possible de définir, au départ, des méthodes très approximées de quantification. Ensuite, une fois estimées toutes les sources avec ces méthodes, il est possible de comparer les résultats et d'identifier les sources les plus importantes et celles avec les incertitudes plus significatives (voir plus loin). Celles-ci pourront faire l'objet d'une révision de la quantification par la définition d'une méthode plus détaillée.

En règle générale, les méthodes de quantification de chaque facteur de l'équation 2 consistent à décomposer ultérieurement l'estimation dans des estimations plus simples, jusqu'au moment où on parvient à une série de paramètres élémentaires pouvant être quantifiés facilement sur la base de : i) mesures directes ; ii) données extraites de la littérature ; iii) modélisation ; iv) expérience de l'analyste. A l'exception de iv), devant être considéré une dernière option, aucune des méthodes n'est préférable, dans l'absolu, aux autres, et le choix entre elles doit se faire au cas par cas. Par exemple, l'estimation du volume total de trafic dans un bassin versant peut être décomposée dans l'estimation des volumes de trafic sur chaque

segment routier. Ces derniers peuvent être mesurés, modélisés ou estimés plus facilement que la valeur agrégée à l'échelle du bassin.

Estimation de l'incertitude

Comme anticipé dans l'introduction, l'incertitude dans les estimations des sources primaires peut être extrêmement élevée. Les estimations et les mesures des facteurs décrits plus haut peuvent varier sur plusieurs ordres de grandeur (voir, par exemple, Mansson et al., 2008 ; Morf et al., 2008 ; ou encore l'estimation du contenu en Cu des plaquettes de frein à partir de données de la littérature dans la suite de ce rapport). Cependant, certains auteurs ayant travaillé sur les SFA remarquent comment, lorsque on agrège les estimations de plusieurs facteurs pour l'estimation des sources, et qu'on travaille à des échelles spatiales et temporelles suffisamment grandes, les incertitudes importantes sur chaque facteur et chaque source se compensent partiellement (Benedetti et al., 2006 ; Sommer et al., 2008). Cet effet est dû à la superposition d'une multitude de processus individuels et locaux : si les émissions d'une voiture sur un trajet particulier peuvent être extrêmement variables et dépendre d'une multitude de facteurs (température, conditions de conduite et de la route, type et age du véhicule, etc.), les émissions totales (ou moyennes) de plusieurs milliers de voitures sur une longue période de temps sont beaucoup plus stables.

Dans de nombreuses SFA, les incertitudes sont estimées directement pour les émissions agrégées, qui résultent de la superposition d'un grand nombre de processus. Cette estimation est donc extrêmement difficile à réaliser, et se traduit le plus souvent par des hypothèses « raisonnables » mais sans justification, et d'habitude très simplistes. Par exemple, Tangsubkul et al. (2005) appliquent à tous les paramètres une même variabilité de ±10%, tandis que Chèvre et al. (2011) considèrent que toutes les émissions des sources primaires suivent la même distribution avec la même déviation standard. Cette approche d'estimation des incertitudes *a posteriori*, en travaillant sur les estimations agrégées, en outre que produire des résultats peu solides a le désavantage qu'elle ne tient aucunement compte de la grande incertitude dans l'estimation de chaque facteur, ni de l'effet de stabilisation dû à l'agrégation.

Ce problème peut être partiellement résolu en appliquant à l'estimation de l'incertitude la même approche analytique que l'on applique à la quantification des flux émis par chaque source. En particulier, il est possible de suivre la même décomposition opérée pour réduire les facteurs à

des paramètres élémentaires, facilement mesurables ou estimables, et d'attribuer une valeur d'incertitude à chacun de ces derniers. Ensuite, parallèlement aux opérations qui permettent de remonter à la quantification de chaque source et des flux totaux, il est possible de propager les incertitudes estimées pour les paramètres élémentaires. Cela permet de réduire les difficultés associées à l'attribution d'une incertitude à des valeurs déjà agrégés ; de prendre en compte explicitement le passage vers des échelles supérieures (spatiales et temporelles) ; de disposer, parmi les résultats de la SFA, d'un cadre d'ensemble des incertitudes. Pour appliquer une telle procédure, il est nécessaire de disposer d'une ou plusieurs méthodes pour estimer systématiquement l'incertitude des paramètres élémentaires, ainsi que d'une méthode de propagation.

Estimation de l'incertitude pour les paramètres élémentaires

Pour chaque paramètre, nous considérons que l'estimation correspond à sa valeur moyenne μ, et que l'incertitude dans sa détermination est décrite par la déviation standard σ. Puisque les paramètres représentent différentes grandeurs, ayant des unités différentes, pour une meilleure comparaison nous utilisons en général le coefficient de variation C_v :

$$C_v = \sigma / \mu \qquad \text{(eq. 3)}$$

L'information fournie par μ et σ est la même que celle fournie par μ et C_v, et passer d'une notation à l'autre est immédiat. Pour estimer C_v pour chaque paramètre, trois méthodes peuvent être appliquée sur la base des informations disponibles.

Estimation à partir des données (méthode 1)

Si un échantillon de mesures est disponible pour un paramètre donné, la procédure la plus immédiate pour estimer sa moyenne et sa variance est d'utiliser des estimateurs classiques tels la moyenne et la variance de l'échantillon. Cependant, des estimations plus complexes peuvent aussi être appliquées si les données le suggèrent. Par exemple, si un échantillon montre la présence de plusieurs classes avec des moyennes et variance variables, une décomposition suivant ces classes peut être réalisée : il sera juste nécessaire, à chaque cas, d'identifier une méthode pour estimer moyenne et variance.

Estimation à partir d'intervalles (méthode 2)

Souvent, il n'est pas possible de reconstituer un échantillon de données permettant une analyse statistique formelle, mais il est possible de déterminer des intervalles de variation. C'est souvent le cas pour les analyses à partir de la bibliographie, d'où il est possible de ressortir des valeurs maximales et minimales d'un paramètre, mais l'absence de données sur les mesures, ou les différences méthodologiques entre diverses études, rendent inapplicable une analyse statistique. Cependant, les analyses bibliographiques fournissent souvent, ensemble à l'intervalle, des informations qualitatives sur la fiabilité de l'intervalle construit : si plusieurs études sont disponibles et fournissent des valeurs cohérentes pour un paramètre, l'intervalle qu'on pourra construire aura un haut niveau de confiance ; au contraire, si peu d'études existent et ont une forte variabilité, la valeur réelle du paramètre pourra facilement se trouver en dehors de l'intervalle. Or, cette information est très importante pour les analyses SFA, où de nombreux paramètres sont estimés à partir de la littérature, et elle ne peut pas être négligée. Nous proposons donc une procédure qualitative pour exploiter cette information, qui pourra être appliquée dans tous les cas où il est possible de constituer un intervalle de variation en y associant une estimation de sa confiance.

Nous considérons l'intervalle *[a,b]* comme l'intervalle de confiance pour le paramètre *X*, dont nous supposons une distribution centrée. La valeur moyenne de X est $\mu_X=(a+b)/2$. La relation entre l'intervalle [a,b], le niveau de confiance γ et σ est :

$$\gamma = P(a < X < b) = P(\mu - \alpha(\gamma)\sigma < X < \mu + \alpha(\gamma)\sigma) \quad \text{(eq. 4)}$$

où α(γ) est un coefficient qui dépend de γ et de la distribution. Donc:

$$\mu + \alpha(\gamma)\sigma = b \rightarrow \alpha(\gamma)\sigma = b - \mu = b - (a+b)/2 \rightarrow \sigma = \frac{b-a}{2\alpha(\gamma)} \qquad \text{(eq. 5)}$$

Si nous faisons l'hypothèse d'une distribution normale, nous pouvons choisir un niveau de confiance γ pour l'intervalle et calculer α(γ) à partir des tableaux statistiques (tableau 1), afin d'obtenir une estimation de σ.

Tableau 1 –Quelques valeurs de α(γ) dans l'hypothèse d'une distribution normale.

γ	α(γ)
38%	0.5
68%	1
87%	1.5
95%	2
98.7%	2.5

Dans la plupart des cas, l'hypothèse de normalité de la distribution est réaliste : en particulier, lorsque on estime des paramètres qui représentent des valeur moyennes (e.g. le contenu moyen en Zn des pneus) il est possible de considérer que leur distribution tends à la normalité. Cependant, comme pour la méthode 1, si les données disponibles suggèrent une distribution différente dans un cas spécifique, la même procédure peut être appliquée en moyennant des adaptations. En particulier, si on souhaite utiliser une autre distribution centrée, seulement les valeurs de α(γ) devront être changés par rapport au tableau 1, tandis que pour une distribution non centrée, les équations 4 et 5 devront être adaptées.

Estimation conceptuelle (méthode 3)

Les méthodes 1 et 2 que nous venons de présenter permettent de couvrir, directement ou indirectement, la plupart des situations qui peuvent se présenter pendant une SFA. Par exemple, si pour l'estimation d'un paramètre on utilise un modèle déterministe, fournissant une valeur unique, on peut recourir à une méthode Montecarlo (e.g. Chèvre et al., 2011), fournissant une distribution du paramètre (ce qui permet d'appliquer la méthode 1), ou bien simuler des scénarios minimaliste et maximaliste qui permettent d'appliquer la méthode 2. Cependant, de la même manière que l'expérience de l'analyste peut être utilisée pour l'estimation directe de certains paramètres, elle peut être aussi nécessaire dans l'estimation de leur incertitude (Morf et al., 2007).

Propagation de l'incertitude

En suivant l'exemple de nombreuses SFA (par example, Tangsubkul et al., 2005 ; Kwonpongsagoon, 2007 ; Cencic and Rechberger, 2008), nous adoptons la propagation de l'incertitude par linéarisation (JCGM, 2008) : pour une fonction *f(x,y)*,

$$\sigma_f^2 \approx \left|\frac{\partial f}{\partial x}\right|^2 \sigma_x^2 + \left|\frac{\partial f}{\partial y}\right|^2 \sigma_y^2 + 2\frac{\partial f}{\partial x}\frac{\partial f}{\partial y}\mathrm{cov}_{xy} \qquad \text{(eq. 6)}$$

Si l'incertitude est connue pour tous les paramètres élémentaires, grâce aux méthodes décrits plus haut, l'équation 6 peut être appliquée à tous les calculs jusqu'à l'estimation des sources primaires (eq. 2) et à leur agrégation (eq. 1). Par exemple, en faisant l'hypothèse d'indépendance entre les variables, le calcul de l'incertitude pour les équations 1 et 2 est donné, respectivement, par :

$$\sigma_{TE_p}^2 = \sum_s \sigma_{E_{p,s}}^2 \qquad \text{(eq.7)}$$

$$\sigma_{E_{p,s}}^2 = {C_{p,s}}^2 \cdot {\eta_{p,s}}^2 \cdot \sigma_{e_s}^2 + {e_s}^2 \cdot {\eta_{p,s}}^2 \cdot \sigma_{C_{p,s}}^2 + {e_s}^2 \cdot {C_{p,s}}^2 \cdot \sigma_{\eta_{p,s}}^2 \qquad \text{(eq.8)}$$

Dans la plupart des cas, il est raisonnable et pratique d'assumer l'indépendance entre les paramètres (i.e. négliger les termes de covariance dans l'eq. 6) : pour des paramètres très incertain, ayant donc des variances très importantes en raison de la difficulté de leur estimation, la covariance, ne dépendant que des liens entre les paramètres, peut être considérée négligeable. En outre, l'estimation de la covariance entre deux paramètres peut s'avérer très complexe. Quand, par contre, l'hypothèse d'indépendance apparaît clairement non acceptable, il sera nécessaire soit d'estimer la covariance, soit de recourir à une autre méthode d'estimation, soit de majorer la covariance en recourant à l'inégalité :

$$\mathrm{cov}_{xy} \leq \sqrt{\sigma_x^2 \sigma_y^2} \qquad \text{(eq. 9)}$$

Applications

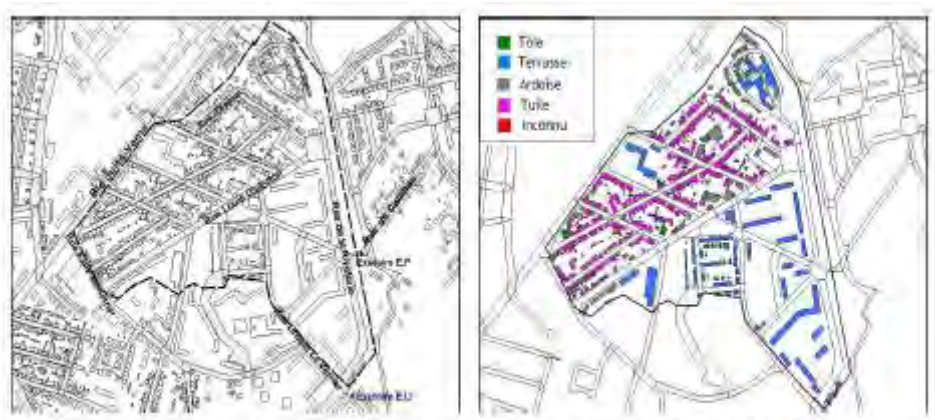
Les trois bassins versants étudiés dans le projet INOGEV sont deux bassins résidentiels (Sucy en région parisienne, Pin Sec à Nantes) et un industriel (Chassieu, proche de Lyon).

Le bassin versant de Sucy (Figure 2) couvre une partie de la commune omonime, 15 km au sud-est de Paris. La surface du bassin versant est d'environ 228 ha, avec une imperméabilisation d'environ 21% (surface imperméable : 48 ha) et une population estimée à environ 5000-6000 habitants. Comme anticipé, l'occupation du sol principale est de type résidentiel, avec 97% des bâtiments constitués par des pavillons. Les transports sont assurés par quelque rue principale et par un réseau de rue de service et de liaison avec les axes principaux. Une station de RER est à la frontière du bassin versant, mais aucune voie de chemin de fer n'est comprise dans le bassin. Les données disponibles incluent des bases cartographiques (BD TOPO de l'IGN ; IGN, 2009), des images aériennes, des données de trafic sur les axes routiers principaux (Val-de-Marne, 2010) et des données météorologiques à l'aéroport d'Orly (10 km à l'ouest du bassin).



Figure 2 - Bassin versant de Sucy-en-Brie. Limites du bassin versant (bleu), rues (BDTOPO, rouge), bâtiments (BDTOPO, blanc)

Le bassin versant du Pin Sec[1] (Figure 3) se trouve à l'est de la ville de Nantes. Sa surface est d'environ 31 ha, avec une imperméabilisation de 49% (15 ha) et une population d'environ 2500 habitants. Dans ce cas aussi l'occupation du sol est principalement résidentielle, avec en revanche une présence significative d'habitats collectifs. Le trafic sur les axes routiers est faible (1200 v/j), à l'exception du boulevard Jules Verne (9400 v/j). Pour ce bassin nous disposons de nombreuses analyses préexistantes, dont les thèses de Lamprea (2009) et Percot (2012).



(a) Avenues principales du bassin et localisation des exutoires (b) Distribution spatiale des toitures

Figure 3 - Bassin versant du Pin Sec (source: Lamprea, 2009)

Le bassin versant de Chassieu (Figure 4), à différence des précédents, est industriel : d'une taille de 185 ha environ, il a une imperméabilisation de 72% (133 ha). Il est traversé par des axes routiers fortement utilisés, même si leur surface est relativement faible (parcelles très grandes par rapport à celles résidentiels). Les données disponibles incluent des relevés de trafic réalisés par le Grand Lyon sur plusieurs rues.

[1] Les données sur le bassin versant du Pin Sec, quand il n'est pas indiqué différemment, proviennent de la thèse de Lamprea (2009).



Figure 4 - Bassin versant de Chassieu, avec occupation du sol. Source: Becouze, 2010.

Sur la base des caractéristiques des trois sites et des données disponibles, l'analyse préliminaire des sources primaires de Cu, Pb, Zn et HAP a porté à identifier les sources suivantes :

- Pour les HAP, les sources potentielles sont le transport routier et le chauffage, via les retombées atmosphériques.

- Pour les trois métaux, les sources potentielles sont le transport routier (emissions autres que l'échappement), les matériaux de toiture (couverture et accessoires linéaires et ponctuels). Les accessoires de la voirie, en raison de l'absence d'autoroutes sur les trois bassins versants, peuvent être négligés.

Le schéma des estimations est présenté en Figure 5 ; même si elles sont indiquées dans la figure, les pertes ne sont pas prises en comptes par l'estimation : les polluants considérés sont, en effet, peu ou pas dégradables, et nous faisons l'hypothèse qu'il n'y a pas d'accumulation de polluants sur les surfaces urbaines. Cette dernière hypothèse, non valable pour des estimations à court terme (il suffit de penser aux cycles temps sec-pluie), peut être considérée raisonnable pour des évaluations annuelles, sur des bassins

d'urbanisation non récente. La partie atmosphérique (encadré rouge en figure) fera l'objet de deux types d'estimations différentes suivant le site considéré, en accord avec les données disponibles.

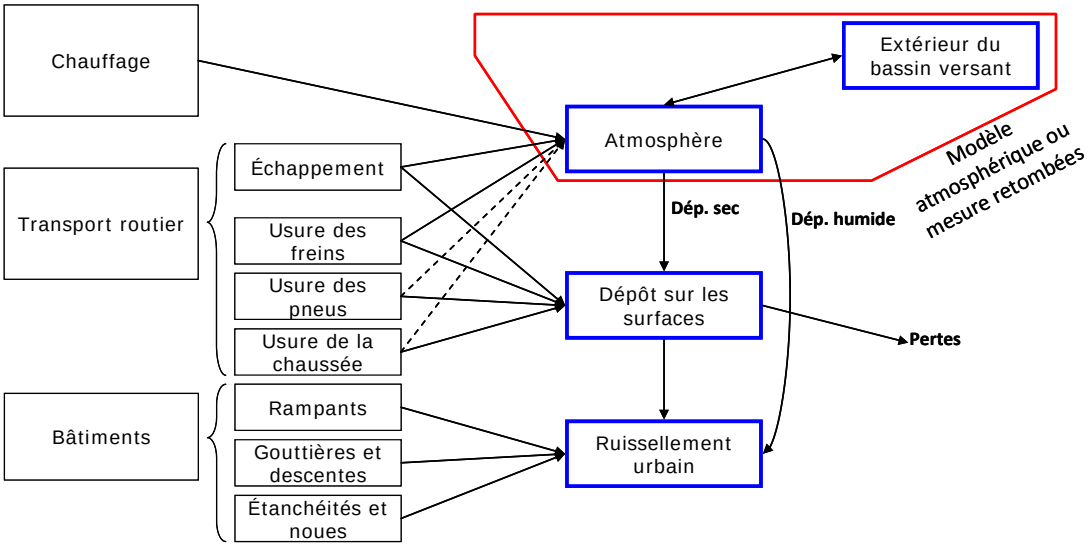


Figure 5 - Schéma des sources considérées. Les lignes en pointillé sont des apports négligeables.

Méthodologies d'estimation des émissions

Dans cette section, nous détaillons les méthodologies d'estimation utilisées pour chaque source.

Trafic routier et chauffage domestique

Une partie des émissions produites par les activités se dépose, par un chemin direct et court, sur les surfaces urbaines, d'où elles peuvent être lessivées par le ruissellement. Une autre partie passe dans l'atmosphère, où ces émissions sont mélangées entre elles et avec les contributions en provenance de l'extérieur du bassin versant. Le partage entre ces deux parties dépend principalement de la taille des particules considérée, et la diversité de ces deux chemins oblige à suivre deux démarches différentes de quantification : pour la partie se déposant directement au sol, il est possible de recourir à une estimation directe, dans la forme proposée par l'équation 2 ; pour la partie passant par l'atmosphère, il sera nécessaire de recourir à un modèle ou en tout cas à une estimation groupée des retombées atmosphériques, en abandonnant pour cette fraction de polluants l'approche par sources distinctes.

Pour estimer les émissions directes liées au trafic routier, nous devons disposer des émissions spécifiques pour chaque polluant et source considérée (facteurs d'émission), des efficacités (la fraction des émissions passant directement au sol) et de l'extension de la source, c'est-à-dire le volume de trafic annuel sur chaque bassin versant. Pour chacune des sources considérées et pour chaque contaminant, nous allons utiliser la formulation générale suivante :

$$E_{sol}\ (\text{kg an}^{-1}) = T\ (\text{v km an}^{-1}) \times U\ (\text{kg (v km)}^{-1}) \times C\ (\text{kg/kg}) \times f_{sol}\ (\%) \quad \text{(eq. 10)}$$

Où : E_{sol} est le flux annuel d'un contaminant produit par une source ; T est le volume annuel de trafic (qui peut être reparti selon des classes de véhicules) ; U est un taux kilométrique d'usure (pour les matériaux) ou de consommation (pour les carburants); C est la concentration d'un contaminant dans le matériel ou le carburant considéré ; f_{sol} est la fraction des émissions qui se dépose directement au sol.

T est une caractéristique du bassin versant ; U et f_{sol} sont des caractéristiques de chaque source ; C est une caractéristique de chaque contaminant pour chaque source. Dans la suite nous allons exposer d'abord la méthode que nous avons appliquée pour l'estimation du volume de trafic annuel. Ensuite, nous présentons les valeurs retenues pour les différents autres facteurs, sur la base d'une analyse bibliographique.

Estimation du volume de trafic annuel

Nous allons présenter la méthodologie suivie dans le cas de Sucy. Ensuite, nous montrerons les résultats de la même méthode appliquée à Chassieu et une méthode simplifiée appliquée à Pin Sec.

Sucy-en-Brie

A Sucy, pour l'estimation du volume de trafic nous disposons de données de contage des véhicules fournies par le Conseil Général 94 (trafic moyen journalier annuel, TMJA, en v/j, Figure 6). Ces données ne concernent, au niveau du bassin versant de Sucy, que les axes principaux (routes départementales).

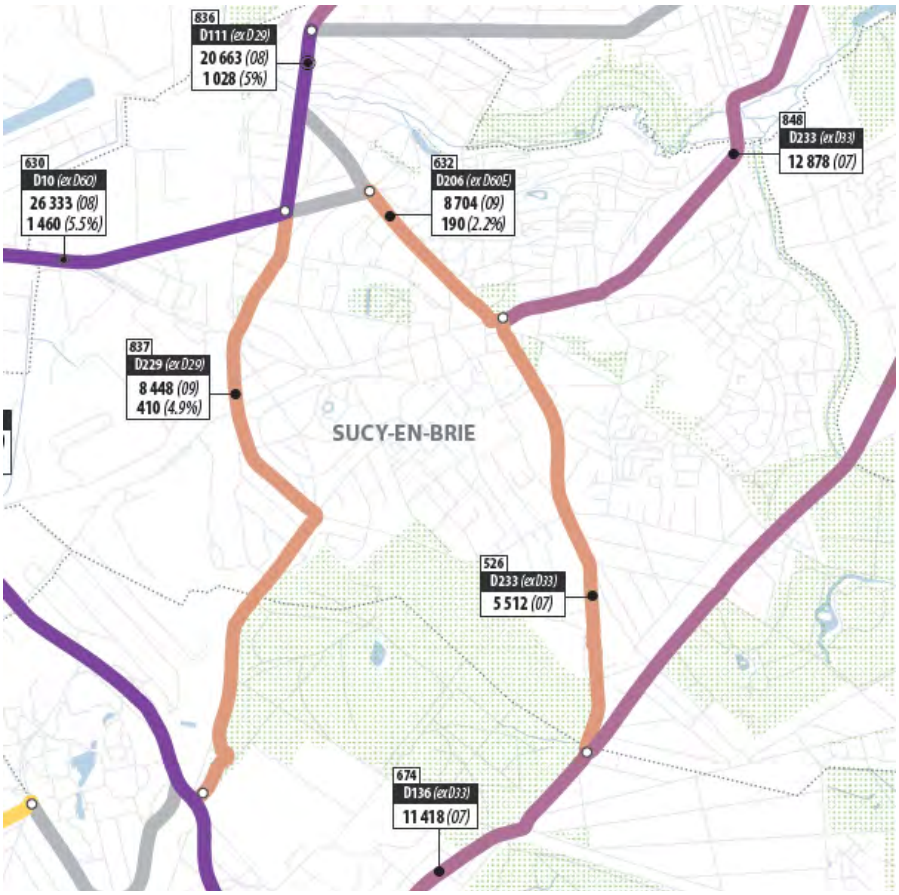


Figure 6 - Trafic moyen journalier annuel mesuré dans la zone de Sucy. Sources: CG94, DIRIF.

Pour les autres rues, nous ne disposons que de données géographiques issues de la BD TOPO de l'IGN. Cette dernière base de données, en plus que le positionnement de chaque tronçon, contient une hiérarchisation des tronçons par « importance » (de 1 à 5), et une catégorisation de la « nature » de chaque tronçon (d'autoroute à sentier). Dans le bassin versant de Sucy, en croisant les indications d'« importance » et de « nature », seulement six typologies de tronçon sont présentes (deux premières colonnes du Tableau 1). En effet, aucune route d'importance 1 (« liaisons entre métropoles ») ou 2 (« liaisons entre départements ») n'est présente sur le territoire considéré.

Grâce à un SIG, il est possible de superposer les routes départementales couvertes par les données du CG94 avec les typologies de tronçons identifiées. Cela montre que pour les trois typologies plus importantes des mesures sont disponibles. Pour les autres, il est nécessaire de recourir à une autre méthode de quantification du trafic. Nous avons adapté pour cela une

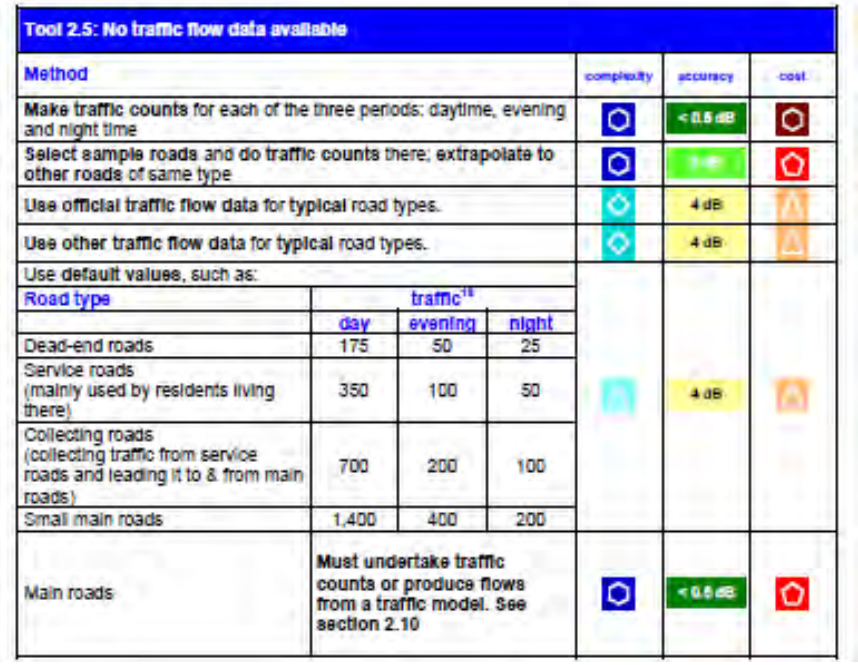
méthode conseillée par le WG-AEN (2006), qui consiste a attribuer des valeurs moyennes par défaut à chaque tronçon de voire, en fonction de sa typologie (

Tableau **2**). Afin d'attribuer à chaque segment de voirie une catégorie dans le tableau, nous avons utilisé la procédure suivante : les rues de classe BD TOPO 4 sans mesures disponibles ont été classées « small main roads », les rues de classe 5 qui connectent deux rues de classe 3 ou 4 sont classées « collecting roads », celles qui connectent au plus une rue 3 ou 4 sont classées « service roads », celle ne connectant pas deux rues sont classées « dead-end roads ». Les résultats sont montrés dans le Tableau 1. Pour les pourcentages de poids lourds, nous avons réalisé des estimations cohérentes avec les données disponibles pour le réseau départemental.

Tableau 1- Typologies des tronçons de route dans le bassin versant de Sucy-en-Brie et attribution d'une charge de trafic

Classe BD TOPO	Données / classe	Trafic journalier (v/d)	Fraction PL	Longueur totale (km)	Trafic total (10^6km*v/y)
3	Données disponibles	8448 - 11418	2.2% - 4.9%	4.425	8.45
4	Données disponibles	5512			4.42
4	Small main roads	2000	1.0%	3.657	2.67
5	Collecting roads	1000	0.5%	10.558	3.85
5	Service roads	500	-	10.922	1.99
5	Dead-end roads	250	-	5.400	0.49

Tableau 2 - Estimation du trafic en l'absence de mesures. Source: WG-AEN, 2006.



Tool 2.5: No traffic flow data available

Method	complexity	accuracy	cost
Make traffic counts for each of the three periods: daytime, evening and night time		< 0.5 dB	
Select sample roads and **do traffic counts** there; extrapolate to **other roads** of same type			
Use official traffic flow data for typical road types.		4 dB	
Use other traffic flow data for typical road types.		4 dB	

Use **default values**, such as:

Road type	traffic[18]		
	day	evening	night
Dead-end roads	175	50	25
Service roads (mainly used by residents living there)	350	100	50
Collecting roads (collecting traffic from service roads and leading it to & from main roads)	700	200	100
Small main roads	1,400	400	200

Main roads	**Must undertake traffic counts or produce flows from a traffic model. See section 2.10**		

A l'issue de cette analyse, nous avons pu tracer une carte du trafic moyen journalier sur le bassin versant, reportée en Figure 7. Nous avons pu aussi, en considérant la longueur et le trafic associés à chaque tronçon, calculer le volume de trafic annuel dans le bassin versant. Le résultat est de T = 21.52 Mv km an^{-1} (dont 58% sur les routes pour lesquelles on dispose de mesures, 42% sur les autres) dont 0.35 Mv km an^{-1} sont constitués par des poids lourds (87% à partir de mesures, 13% à partir de l'estimation des classes de routes).

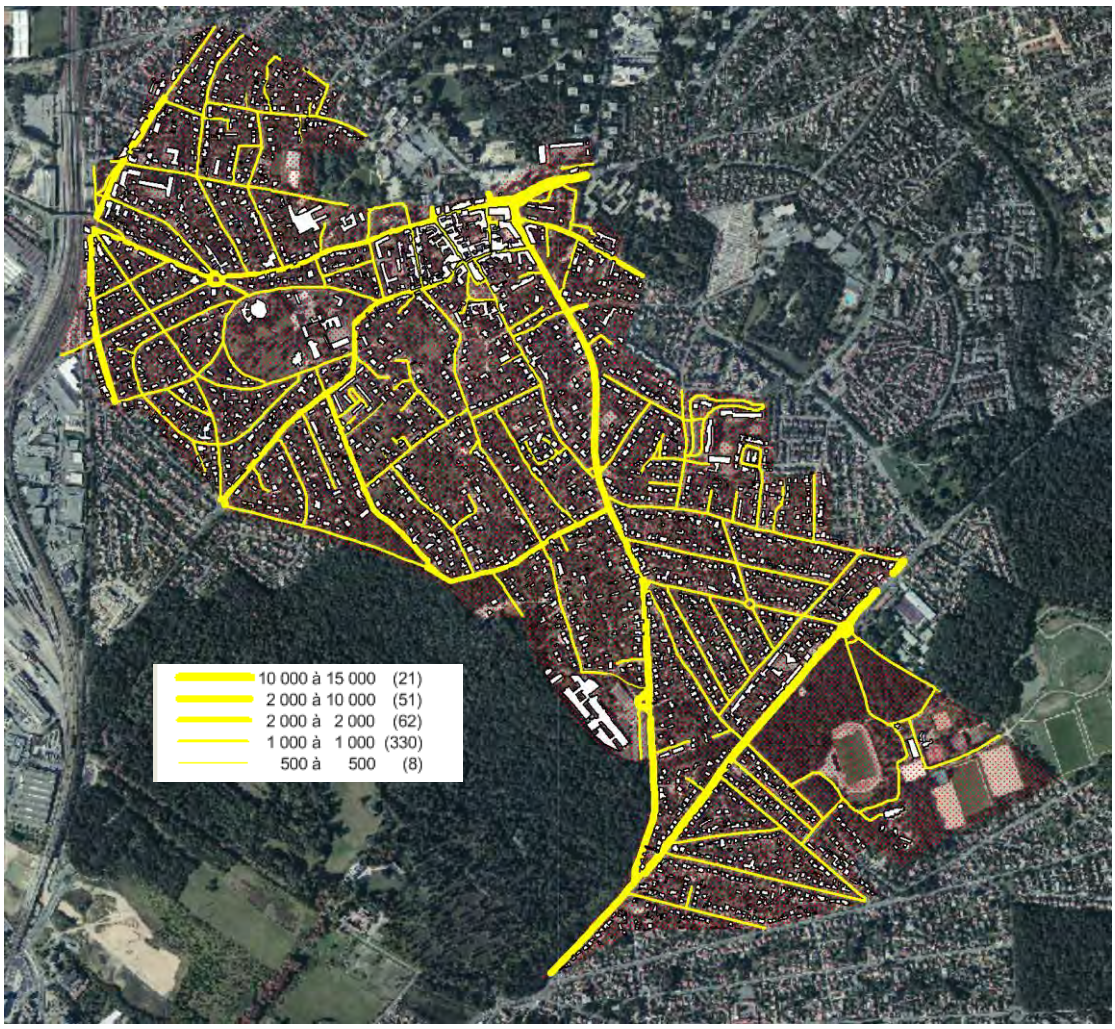


Figure 7 - Carte du trafic moyen journalier annuel sur le bassin versant de Sucy-en-Brie.

Pour vérifier l'ordre de grandeur de nos résultats, nous pouvons comparer ceux-ci à des références régionales ou nationales. Pour comparer entre échelles différentes, nous normalisons la valeur de trafic annuel obtenue par rapport à la population du bassin. Sur le bassin versant, le volume annuel de trafic par habitant est d'environ 4200 v km an^{-1} hab^{-1}. A l'échelle française, en 2009, l'USIRF (Union des Syndicats de l'industrie Routière Française, www.usirf.fr) estimait une circulation totale de 551 Gvéh km an^{-1}, dont 363 Gvéh km an^{-1} en dehors des autoroutes et nationales. Rapporté à 64.6 Mhab (Données INSEE au 1er janvier 2010), ces valeurs donnent environ 5620 v km an^{-1} hab^{-1}. Cette valeur est proche de celle que nous avons déterminé, même si un peu plus élevée (+35%). Cet écart peu être facilement expliqué par la densité et l'importance des services de transport en commun dans la petite couronne parisienne, plus élevées que la moyenne française (rappelons que le bassin versant est à proximité immédiate

d'une station de RER). Ces chiffres semblent donc confirmer les résultats que nous avons obtenus.

Pour le calcul des incertitudes, nous avons initialement attribué une incertitude faible aux données mesurées (5%) et assez élevée aux données estimées (30%). A partir de là, nous pouvons propager l'incertitude vers l'estimation du trafic total *T*, en appliquant l'équation 6 à la somme du trafic t_i estimé sur chaque tronçon. Sous l'hypothèse d'indépendance des t_i :

$$T = \sum_i t_i ; \quad c_{v,T} = \frac{\sqrt{\sigma_T^2}}{\sqrt{T^2}} = \frac{\sqrt{\sum_i \sigma_{t_i}^2}}{\sqrt{\left(\sum_i t_i\right)^2}} = \frac{\sqrt{\sum_i t_i^2 c_{v,t_i}^2}}{\sqrt{\left(\sum_i t_i\right)^2}} \quad \text{(eq. 11)}$$

Si l'incertitude des estimations de trafic peut être importante au niveau de chaque tronçon, l'agrégation à l'échelle du bassin versant donne une incertitude sur le trafic total de 1.5%. Cette valeur très faible est un exemple du processus de compensation des incertitudes lors des montées en échelle décrit plus haut. D'ailleurs, elle est très peu sensible à des variations même importante dans l'incertitude des données (elle ne monte qu'à 2.3% lorsque on considère des incertitudes de 10% pour les mesures et de 100% pour les autres estimations). Cependant, cette valeur représente une estimation minimale, sous l'hypothèse que les estimations au niveau de chaque rue sont non corrélées. Si cela peut être vrai pour les mesures de trafic sur les axes principaux, il ne l'est sûrement pas pour les autres rues, pour lesquelles une seule valeur a été attribuée à plusieurs rues. En raison de la méthode suivie, l'hypothèse d'indépendance est clairement inacceptable. Le terme de covariance ne peut donc être négligé, et la variance de T doit être écrite :

$$\sigma_T^2 = \sum_i \sigma_{t_i}^2 + 2 \sum_{1 \le i < j \le n} \mathrm{cov}_{t_i t_j} \quad \text{(eq. 12)}$$

En utilisant la majoration donnée par l'équation 9, l'équation 11 devient :

$$c_{v,T} \le \frac{\sqrt{\sum_i \sigma_{t_i}^2 + 2 \sum_{1 \le i < j \le n} \sqrt{\sigma_{t_i}^2 \sigma_{t_j}^2}}}{T} \quad \text{(eq. 13)}$$

A partir de cette formulation, nous obtenons une incertitude de *T* de 15.6%. La valeur réelle se situant entre 1.5% et 15.6%, nous choisissons de retenir une valeur de 10% : il est vrai

que la majorité du traffic estimé depend de mesures qui peuvent être considérées indépendantes, ce qui pourrait justifier un choix plus proche de la limite inférieur, mais nous préférons surestimer les incertitudes que les sousestimer.

Chassieu

Pour le bassin versant de Chassieu, nous disposons également de mesures sur plusieurs tronçons de voirie. Ces mesures, réalisées par le Grand Lyon, sont fournies pour deux périodes : lorsque le salon Eurexpo Lyon, situé à proximité du bassin versant, est actif et lorsque il est fermé. Pour combiner ces deux données, nous avons examiné le calendrier du salon pour la période septembre – décembre 2013 pour déterminer la fraction de jours d'ouverture. Cela fournit une estimation de 46% de jour de salon, contre 54% de jours hors salon.

Une fois les mesures agrégées par une moyenne pondérée, nous avons appliqué la même procédure que pour Sucy. Dans le cas de Chassieu, cependant, nous disposons de mesures de trafic effectuées non seulement sur les axes principaux, mais aussi sur des rues relativement peu fréquentées (jusqu'à 518 v/j). Grâce à cette vision plus précise, comprenant aussi des données détaillées pour les poids lourds (rappelons qu'il s'agit d'un site industriel) il est possible de mieux spécifier les classes, notamment en ajoutant une catégorie au dessus de la classe « small main roads ». Les volumes de trafic sont indiqués dans la Figure 8 et dans le Tableau 3.

Tableau 3 - Typologies des tronçons de route dans le bassin versant de Chassieu et attribution d'une charge de trafic

Données / classe	Trafic journalier (v/d)	Fraction PL	Longueur totale (km)	Trafic total (10^6km*v/y)
Données disponibles	518 - 10858	4.6%-18.7%	1.53	5.37
	4000	5%	2.08	3.04
Small main roads	2000	10.0%	3.92	2.86
Collecting roads	1000	18.0%	3.5	1.34
Service roads	500	19.0%	1.05	0.19
Dead-end roads	250	20.0%	3.390	0.31

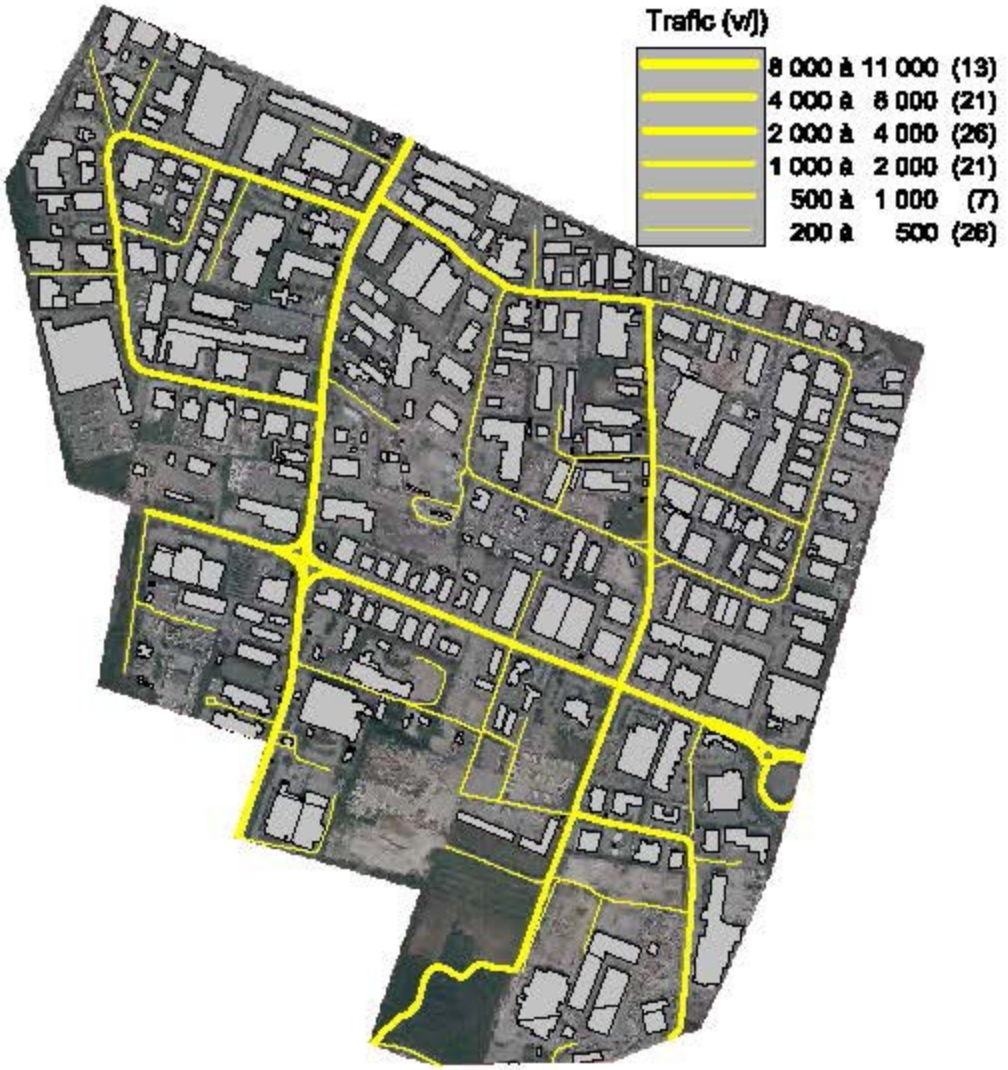


Figure 8 - Carte du trafic moyen journalier annuel sur le bassin versant de Chassieu

L'agrégation des charges de trafic à l'échelle du bassin versant fournit un trafic total annuel de 13.12 Mv km an^{-1} (dont 41% sur les routes pour lesquelles on dispose de mesures, 59% sur les autres) dont 1.04 Mv km an^{-1} sont constitués par des poids lourds (34% à partir de mesures, 66% à partir de l'estimation des classes de routes).

L'incertitude de ces estimations, calculée de la même manière que pour Sucy, est comprise entre 2.8% (hypothèse d'indépendance) et 13.4% (corrélation maximale). Cette fourchette étant similaire à celle obtenue pour Sucy, nous allons retenir encore une fois une incertitude de 10%.

Pin Sec

Dans le cas de Pin Sec, nous ne disposons pas directement de mesures de trafic sur des axes routiers du bassin versant. Cependant, Lamprea (2009) reporte une estimation pour la rue principale (bld. Jules Verne, 9400 v/j) et pour la moyenne des autres axes (1200 v/j). Sur la base de notre analyse du cas de Sucy, où la densité de population est plus faible (résidentiel pavillonnaire *vs* résidentiel principalement collectif), ces valeurs sont tout à fait cohérentes : la moyenne à Sucy, à l'exclusion des grands axes, se situe entre 500 v/j et 1000 v/j.

A partir de ces estimations, nous avons calculé un volume de trafic annuel de 3.72 Mv km an^{-1}. Ne disposant pas d'informations sur le trafic de poids lourds, nous faisons l'hypothèse que, s'agissant d'un quartier résidentiel, le ratio entre trafic de poids lourds et trafic total est le même qu'à Sucy (1.6%). Nous obtenons donc une estimation du trafic de poids lourds de 0.06 MV km an^{-1}. Pour l'incertitude, nous ne disposons pas de l'ensemble des données permettant la même analyse que nous avons réalisée pour les autres bassins. Nous recourrons donc à la méthode 3 : si pour les autres bassins versants une valeur de 10% semble raisonnable, ici nous avons des données plus incertaines, mais surtout un bassin versant plus petit, dans lequel les effets de compensation permettant de réduire les incertitudes vont être moins importants. Pour ces raisons, nous considérons une incertitude de cette estimation de l'ordre de 20%.

Les résultats pour les trois bassins versants sont résumés dans la première partie du Tableau 4. La deuxième partie présente quelques éléments utiles à la comparaison des trois sites ou avec d'autres études. La dernière ligne, en particulier, montre le rapport entre trafic moyen journalier et imperméabilisation. Le bassin de Sucy montre la valeur la plus importante pour cet indicateur, double de celle de Pin Sec, ce qui peut être expliqué par la plus faible densité résidentielle (qui oblige les habitants à des parcours plus longs) et par la présence dans le bassin versant de longs axes assez fréquentés, qui à Pin Sec sont plutôt à l'extérieur du bassin. Chassieu à une valeur extrêmement faible (un quart de Sucy, la moitié de Pin Sec). Cependant, cela n'indique pas une véritable différence dans le volume de trafic (les axes de ce bassin sont au moins autant trafiqués que ceux de Sucy) mais plutôt une différence d'urbanisation due à l'usage industriel du sol : le bassin est caractérisé par de grandes parcelles fortement imperméabilisées, qui donnent un rapport entre extension de la voirie et surfaces imperméables qui est très faible par rapport aux bassins résidentiels.

Tableau 4 - Synthèse des résultats des estimations du volume annuel de trafic sur les trois sites.

	Sucy-en-Brie	Chassieu	Pin Sec
Trafic total (Mv km/an)	21.52	13.12	3.72
Trafic PL (Mv km/an)	0.35	1.04	0.06
Incertitude (Cv)	10%	10%	20%
Trafic journalier (v km/j)	58959	35945	10192
Trafic journalier par m² imperméable (v km/(j ha)	1228	270	679

Calcul des facteurs d'émission

Comme expliqué précédemment, pour chaque source le facteur d'émission est le produit entre le contenu de contaminant dans le matériel ou carburant considéré, le taux kilométrique d'usure ou de consommation du matériel ou du carburant, la fraction passant directement au sol. Dans cette partie, ces trois facteurs sont quantifiés pour chaque source.

Usure des freins

Contenu

Le contenu en métaux des plaquettes de freins est très variable. Thorpe et Harrison (2008) synthétisent 6 études conduites entre 1991 et 2003 et fournissent des fourchettes de concentration dans les plaquettes et dans la poussière produite par abrasion. Ils citent des sources bibliographiques suggérant que la composition des émissions peut être significativement différente de la composition de la plaquette « mère ». Cependant, ils s'intéressent surtout aux émissions vers l'atmosphère. Dans notre cas, en manquant de données spécifiques à ce qui se dépose immédiatement, on peut considérer les compositions des plaquettes.

Une étude approfondie sur le contenu des plaquettes de freins a été réalisée par Hjortenkrans et al., 2007. Ils expliquent que les réglementations européennes ont porté à des modifications dans la composition des plaquettes au cours des années 2000 (en particulier, pour le contenu en plomb, la directive 2000/53/CE). En outre, elles ont modifié le fonctionnement du marché en favorisant l'émergence de producteurs indépendants à coté des grandes marques (i.e. les freins « officiels » des producteurs de voitures), ce qui incrémente la variabilité des compositions. Par conséquent, les auteurs mesurent (en 2005) les compositions de 42 plaquettes

de grands producteurs et de 20 plaquettes de producteurs indépendants (présents sur le marché suédois), en faisant une distinction freins avant/arrière (que nous allons négliger en considérant la moyenne des deux) et en comparant les résultats avec ceux de Westerlund (2001), afin d'évaluer les effets des réglementations. Les résultats sont synthétisés dans le Tableau 5.

Tableau 5 – Moyennes des concentrations en métaux dans les plaquettes de freins. Source : Hjortenkrans et al. (2007).

(ppm = mg/kg)	Moyenne grandes marques (42)	Moyenne indépendants (20)
Cu	130000 (1998 : 105000)	155 (1998 : 61600)
Pb	1510 (1998 : 13850)	195 (1998 : 11400)
Zn	32000 (1998 : 20000)	4700 (1998 : 12400)

Ces résultats montrent que, même si les variations en Cu et Zn pour les grands producteurs sont faibles sur la période 1998-2005, elles sont importantes pour les producteurs indépendants, qui ont un rôle de plus en plus significatif sur les marchés européens (pour le cas français, la part de marché des indépendants sur l'ensemble des réparations automobile était de 55% en 2010 ; Autorité de la concurrence, 2012). Deux conséquences significatives pour notre étude : la première est que les données jusqu'au début des années 2000 (e.g. Pagotto, 1999) doivent être utilisées avec précaution : elles ne doivent pas être utilisées pour le Pb, et considérées comme des valeurs maximales pour Cu et Zn. La seconde est que, si on fait l'hypothèse que les concentrations moyennes par type de producteur établies par Hjortenkrans et al. (2007) sont valables pour le cas français, pour les agréger il est nécessaire de connaître la répartition entre grandes marques et indépendants dans le parc automobile. Pour ce faire, Hjortenkrans et al. (2007) font l'hypothèse (reprise de Westerlund, 2001) que tous les véhicules de moins de 4 ans d'age (40% selon leur estimation pour Stockholm) sont équipés des pièces d'origine (grandes marques) et que tous les autres sont équipés avec des pièces de producteurs indépendants. Cette hypothèse est supportée, dans le cas français, par l'étude sur la concurrence dans le marché des réparations automobiles (Autorité de la concurrence, 2012), qui affirme que la part de marché des réparateurs indépendants augmente avec l'âge des véhicules. Pour estimer la part de véhicules selon la tranche d'age, nous pouvons recourir aux données nationales du SOeS[2]

[2] Service Observations et Statistiques, Ministère de l'écologie, du développement durable et de l'énergie, Commissariat général du développement durable. Fichier central des automobiles

disponibles en ligne : au 1er janvier 2008, 10.7 millions de véhicules avait un âge inférieur à 5 ans sur un total de 32.7 millions de véhicules (Robin, 2010). Cela donne une fraction de plaquettes de grandes marques de 32.7%. Une moyenne pondérée donne les concentrations présentées dans le Tableau 6.

Tableau 6 - Moyenne des concentrations en métaux des plaquettes de freins. Adaptation au cas français des valeurs proposées par Hjortenkrans et al. (2007).

(ppm = mg/kg)	Moyenne pondérée
Cu	42614
Pb	625
Zn	13627

A l'exception des travaux de Hjortenkrans, les principales études à dispositions sur le contenu des plaquettes de frein sont la synthèse de Thorpe and Harrison (2008), les mesures réalisées par Pagotto (1999) et par von Uexkull et al. (2005), et l'analyse du cas Hongrois par Budai and Clement (2011). Les autres études disponibles (Shaheen, 1975 ; Muschack, 1990, Westerlund, 1998, Sörme and Lagerkvist, 2002, utilisant des données de Westerlund, 1998) sont trop anciennes pour être toujours représentatives. Pour le cuivre, on dispose aussi de l'étude de synthèse de Denier van der Gon et al. (2007), qui discutent les scénarios de l'UNECE pour ce métal, et qui donnent des moyennes représentatives du contenu en Cu dans les plaquettes de frein du parc automobile européen.

La synthèse de Thorpe and Harrison (2008) est une compilation des valeurs extrêmes de huit études préalables (allant de 1991 à 2003). Pour cette raison, elle fournit des intervalles extrêmement larges par rapport aux autres études (à l'exception du Cu, pour lequel l'intervalle proposé est proche de celui mesuré par Hjortenkrans et al., 2007), sans donner des repères quant aux valeurs les plus représentatives. Pour cette raison, et pour l'ancienneté de certaines des études utilisées, nous allons utiliser ces valeurs en tant qu'ordres de grandeurs « limites » pour les concentrations, mais nous n'allons pas les utiliser pour établir les valeurs retenues.

www.statistiques.developpement-durable.gouv.fr/fileadmin/documents/Themes/Transports/Vehicules_routiers/Parc/2PF1_cle576751-5.xls

La thèse de Pagotto (1999) fournit les moyennes des mesures effectuées sur des plaquettes de frein de deux marques différentes. Cette étude, qui se situe à la limite de la période que nous considérons acceptable, est importante dans la mesure où elle fourni des données mesurées sur des cas français. von Uexkull et al. (2005) ont mesuré le contenu en Pb et Cu de huit plaquettes de freins en usage en Allemagne. Budai and Clement (2011), à partir des données de Hjortenkrans et al. (2007) et de von Uexkull et al. (2005), calculent une moyenne pondérée représentative du cas hongrois. Denier van der Gon et al. (2007), utilisent plusieurs sources, dont des études et des informations venant des producteurs, pour estimer que 5% de Cu peut être considéré une teneur minimale en termes de moyenne européenne, et 10% une estimation « haute ». Le Tableau 7 présente une synthèse des valeurs proposées par l'ensemble de ces études.

Tableau 7 - Synthèse bibliographique des concentrations en métaux des plaquettes de freins.

		min	max	moyenne	Dernières données
Cu (ppm)	Pagotto, 1999	103900	180375	142138	1999
	Thorpe and Harrison, 2008	11	234000	117006	2003
	von Uexkull et al., 2005			13525	2005
	Van der Got et al., 2007	50000	100000	75000	2006
	Hjortenkrans, 2007	26	220000	110013	2007
	Moyenne pondérée à partir de Hjortenkrans, 2007			42614	2007
	Budai and Clement, 2011			130122	2007
Pb (ppm)	Pagotto, 1999	2145	5600	3873	1999
	Thorpe and Harrison, 2008	1.3	119000	59501	2003
	Hjortenkrans, 2007	5	920	463	2007
	Moyenne pondérée à partir de Hjortenkrans, 2007			625	2007
	Budai and Clement, 2011			129	2007
Zn (ppm)	Pagotto, 1999	6920	36610	21765	1999
	Thorpe and Harrison, 2008	25	188000	94013	2003
	Hjortenkrans, 2007	280	73000	36640	2007
	Moyenne pondérée à partir de Hjortenkrans, 2007			13627	2007
	Budai and Clement, 2011			24984	2007

Pour le Cu, nous allons retenir un intervalle de 13000 à 110000 ppm, comprenant les estimations moyennes de von Uexkull et al. (2005), van der Got et al. (2007), Hjortenkrans et al.

(2007) ainsi que notre estimation à partir des données de Hjortenkrans et al. (2007). Ces valeurs sont, en effet, les plus récentes et les plus pertinentes. Budai and Clement (2011) sont peu en dehors de l'intervalle et adaptent au cas hongrois, on le rappelle, les mesures de von Uexkull et al. (2005) et de Hjortenkrans et al. (2007). Les mesures de Pagotto (1999), en raison de leur âge, sont moins fiables que les autres, et la moyenne des intervalles de Thorpe and Harrison (2008) ne sont pas significatives. Puisque l'intervalle retenu contient les données les plus significatives, on lui attribue une confiance de 87% (α = 1.5).

Pour le Pb, nous allons retenir un intervalle de 130 à 630 ppm, comprenant les estimations moyennes de von Uexkull et al. (2005), Budai and Clement (2011), Hjortenkrans et al. (2007) ainsi que notre estimation à partir des données de Hjortenkrans et al. (2007). Comme expliqué plus haut, ces valeurs sont les plus récentes et les plus pertinentes. En ce cas, en particulier, l'âge des mesures est fondamental en raison des normes européennes régulant le contenu en Pb des plaquettes. En raison de cette limite légale, et puisque cet intervalle contient toutes les données significatives, on lui attribue une confiance de 95% (α = 2).

Pour le Zn, nous allons retenir un intervalle de 13000 à 37000 ppm, comprenant les estimations moyennes de Pagotto (1999), Budai et Clement (2011), Hjortenkrans et al. (2007) ainsi que notre estimation à partir des données de Hjortenkrans et al. (2007). En l'absence d'une norme, puisque cet intervalle contient toutes les données significatives, on lui attribue une confiance de 87% (α = 1.5).

Usure

Legret (2001) considère une usure des plaquettes de frein d'environ 0.020 g (km x véh)$^{-1}$ pour les voitures, 0.029 g (km x véh)$^{-1}$ pour les véhicules utilitaires (VH) et 0.047 g (km x véh)$^{-1}$ pour les poids lourds (PL). Ces valeurs sont des moyennes des valeurs calculées par Pagotto (1999) à partir de données sur la vie moyenne et l'usure totale des plaquettes. *In extenso*, les résultats de Pagotto (1999) sont : voitures 0.017-0.023 g (km x véh)$^{-1}$; VH 0.024-0.033 g (km x véh)$^{-1}$ et PL 0.047 g (km x véh)$^{-1}$.

Davis et al. (2001) utilisent des valeurs très datées (Malmqvist, 1983), de l'ordre de 0.0015 g (km x véh)$^{-1}$, beaucoup plus bas que ceux de Pagotto. Sörme et Lagerkvist (2002), se basant sur une étude de Westerlund (1998) considèrent une valeur très proche : 0.016 g (km x véh)$^{-1}$. Budai et Clement (2011) considèrent des valeurs de 0.020 g (km x véh)$^{-1}$ pour les voitures, 0.030 g (km x véh)$^{-1}$ pour les véhicules utilitaires et 0.080 g (km x véh)$^{-1}$ pour les poids lourds. Ils citent une étude de Luhana et al. (2004) proposant, pour les parcours autoroutiers, des valeurs de 0.008 g (km x véh)$^{-1}$ pour les voitures, 0.015 g (km x véh)$^{-1}$ pour les véhicules utilitaires et 0.040 g (km x véh)$^{-1}$ pour les poids lourds.

Abu-Allaban et al. (2003), avec des mesures sur route, semblent confirmer la gamme de valeurs de Legret, avec une fourchette, selon les différents terrains considérés, de 0 à 0.080 g (km x véh)$^{-1}$.

Ces données, assez cohérentes entre elles, sont synthétisées dans le Tableau 8, avec un regroupement effectué entre voitures et VH, à cause de l'impossibilité de distinguer entre les deux dans les données de trafic. En raison de la plus grande disponibilité de données pour ce groupe que pour les PL, nous attribuons à l'intervalle pour le premier une confiance de 95% (α = 2), et à celui pour les seconds une confiance de 87% (α = 1.5).

Fraction vers le sol ou l'eau de ruissellement

Selon Sanders et al. (2003), cités par Thorpe et Harrison (2008 ; comparant avec d'autres sources), 50-70% du matériel d'abrasion des freins passent dans l'atmosphère, alors que, pour Garg et al. (2000), cité par les mêmes auteurs, il s'agit de 35%. Ces derniers, par contre, utilisaient des instruments causant des pertes plus importantes.

La fraction restante (30-50% selon Sanders et al., 2003 ; 65% selon Garg et al., 2000) passe en partie sur les pneus, sur la chaussée, et en partie reste dans le logement des freins (*brake housing*).

Sörme and Lagerkvist (2002), sur la base de chiffres similaires, considèrent que 20% de ces émissions rejoignent la STEP. Le même est fait par Hulskotte et al. (2006), à partir des données de Sanders et al. (2003) et d'un rapport hollandais (Oonk et al., 2005). Budai and Clement (2011), par un raisonnement sur la taille des émissions (non décrit dans l'article) estiment à 20-60% la fraction passant dans le ruissellement.

Sur la base de ces travaux, il semble cohérent de prendre un intervalle des émissions vers le sol compris entre 20 et 60%, avec une confiance de 87% en raison de la cohérence de l'ensemble des estimations. Cela donne une valeur moyenne retenue de 40%, avec C_v = 33%.

L'ensemble des valeurs des paramètres retenus pour la quantification des émissions à partir de l'usure des plaquettes de freins est synthétisé dans le Tableau 8.

Tableau 8 - Synthèse des valeurs retenus pour le calcul des émissions dues à l'usure des freins.

		Unités	Min	Max	γ	α	μ	σ	Cv
Contenu	Cu	ppm	13000	110000	87%	1.5	**61500**	32333	**53%**
	Pb	ppm	130	630	95%	2	**380**	125	**33%**
	Zn	ppm	13000	37000	87%	1.5	**25000**	8000	**32%**
Usure	Voitures	mg/(km*v)	16	33	95%	2	**25**	4	**17%**
	PL	mg/(km*v)	47	80	87%	1.5	**64**	11	**17%**
Fraction vers le sol		%	20	60	87%	1.5	**40**	13	**33%**

Usure des pneus

Contenu

Les pneus sont principalement composés de matières organiques. Le Zn, cependant, peut représenter 0.5-1% de la composition (Thorpe and Harrison, 2008, citent trois études, dont une seulement – la plus ancienne, de 1991 - donne une valeur sensiblement inférieure, de l'ordre de 400 mg/kg). Pour les autres métaux, les concentrations sont beaucoup plus faibles (3-4 ordres de grandeur). Les données des deux études citées par Thorpe et Harrison sont reportées dans le Tableau 9 : les valeurs sont très proches, même si les estimations de Legret et Pagotto (1999) sont légèrement supérieures à celles de Kennedy et Gadd (2003). Hjortenkrans et al. (2007) ont analysé des échantillons de 52 pneus. Ils obtiennent une valeur moyenne pour le Zn comparable au haut de la gamme de Kennedy and Gadd (2003) et aux résultats de Pagotto, et des valeurs moyennes légèrement supérieures pour Cu et Pb.

Tableau 9 - Synthèse bibliographique des concentrations de métaux dans les pneus.

(mg/kg)	Legret et Pagotto, 1999	Kennedy et Gadd, 2003	Hjortenkrans et al., 2007
Cu	1.8	<1-2	7.4
Pb	6.3	1-5.7	9.5
Zn	10250	5650-9640	9400

Aatmeeyata (2010) mesure les émissions d'HAP par pneu à 378 ng km^{-1}, ce qui donne 1,5 µg (km x véh)$^{-1}$. Il cite aussi des travaux qui quantifient la concentration en HAP par pneu (Rogge et al., 1993 : 200 mg kg^{-1} ; Boonyatumanond et al., 2007 et Kennedy and Gadd, 2003 : 89 mg kg^{-1} ; Takada et al., 1990 : 31–69 mg kg^{-1}). Legret (2001) utilise une valeur proposée par une étude précédente (Hildeman et al., 1991) de 200 mg kg^{-1}.

Sadikstis et al. (2012), en faisant une synthèse de la bibliographie existante (qui correspond largement aux études que nous venons de citer), confirment que la gamme de concentration en HAP dans les pneus va de 16 à 226 mg kg^{-1}. Ensuite, ils mesurent le contenu en 15 HAP de 8 types de pneus de quatre producteurs différents (AGI, Bridgestone, Michelin, Nokian). Ils observent une variabilité assez importante (un facteur 20 entre la plus petite et la plus grande concentration d'HAP totaux mesurées). Leurs résultats (HAP totaux) sont reportés dans la Figure 9. Pour les pneus d'été (plus significatifs pour le cas français, alors que les auteurs s'intéressent au cas suédois) ils observent une médiane de 53 mg/kg (min : 20.7 ; max : 85.2). Cette valeur est inférieure à celles proposées dans les études précédentes. Les auteurs font aussi remarquer que, dans les années à venir, le taux en HAP des pneus va diminuer en raison de la directive européenne 2005/69/EC, qui limite l'usage des « highly aromatic oils » dans la production des pneus. Les effets de la directive sont encore partiels : seulement les pneus produits après le 1er janvier 2010 font l'objet de limitations, et ceux produits précédemment peuvent toujours être vendus (les pneus analysés dans l'étude sont tous produits avant cette date). Une synthèse des concentrations en HAP dans la littérature est présentée en Figure 10. Les intervalles retenus pour métaux et HAP sont reportés dans le Tableau 10.

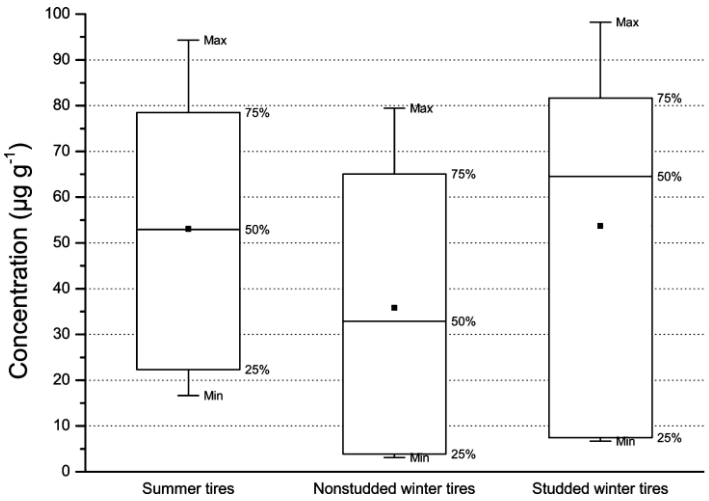


Figure 9 - Contenu en HAP de 8 types de pneus. Source: Sadikstis et al., 2012.

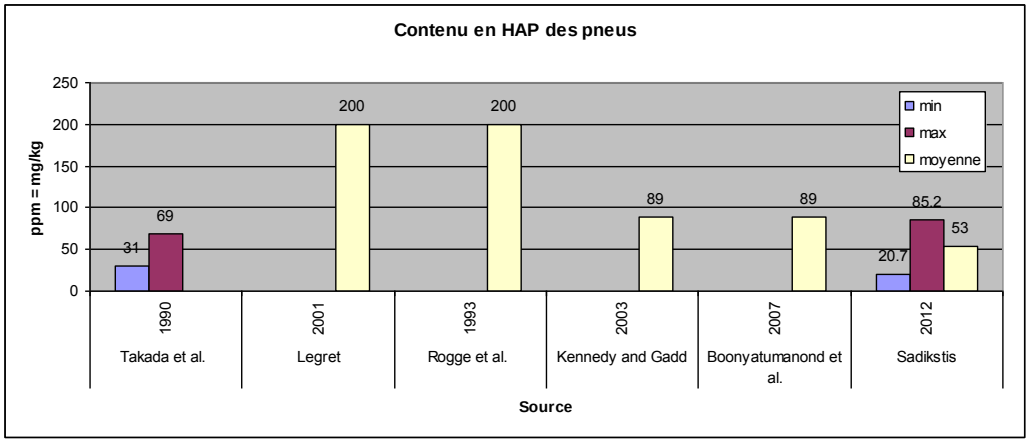


Figure 10 - Synthèse bibliographique du contenu en HAP des pneus.

Tableau 10 - Valeurs retenus pour les concentrations en métaux et HAP des pneus.

	min (ppm)	max (ppm)	Confiance	α	Moyenne (ppm)	σ (ppm)	Cv
Cu	1	8	68%	1	4.5	3.5	78%
Pb	3	10	68%	1	6.5	3.5	54%
Zn	7500	10500	68%	1	9000	1500	17%
HAP	20	100	87%	1.5	60	26.7	44%

Nous avons attribué des valeurs de confiance relativement faibles pour les métaux (68%), car même si les intervalles retenus contiennent toutes (Cu et Pb) ou la plupart (Zn) des données disponibles, le nombre de mesures et de sources différentes est petit. Pour les HAP, nous disposons de plusieurs sources dont une récente et assez complète (Sadikstis et al., 2012) ; nous avons donc retenu un intervalle largement calé sur la variabilité reportée par Sadikstis et al.

(2012), et incluant aussi les autres études récentes. Nous avons donc considéré un niveau de confiance plus élevé (87%).

Usure

Wik and Dave (2009) quantifient l'abrasion par pneu en 0.006 – 0.09 g km^{-1}, mais à partir de vieilles données (1993). Cela veut dire entre 0.024 et 0.36 g (km x véh)$^{-1}$, au moins pour les véhicules à quatre roues. Aatmeeyata (2010), sur la base d'études plus récentes (2005-2009) donne sensiblement les mêmes valeurs (0.007 – 0.09 g km^{-1}pneu^{-1}). Une gamme similaire est proposée par Ladislas (2011), citant Luhana et al. (2004 ; 0.04 – 0.36 g (km x véh)$^{-1}$).

Davis et al. (2001), sans donner de référence, se situent au milieu de cette gamme, avec 0.20 g (km x véh)$^{-1}$. La même valeur est utilisée par Sörme and Lagerkvist (2002), qui citent plusieurs études allant de 1980 à 1994. Pagotto (1999), donne des valeurs de 0.07 g (km x véh)$^{-1}$ pour les voitures, et estime le double pour les poids lourds (0.14 g (km x véh)$^{-1}$), ce qui est en tout cas dans la fourchette de Wik and Dave (2009).

En synthèse (figure), à l'exception de Pagotto (1999), qui propose une fourchette dont la valeur moyenne est de l'ordre de 0.1 g (km x véh)$^{-1}$, tous les autres auteurs donnent des fourchettes dont la moyenne est autour de 0.2 g (km x véh)$^{-1}$. Nous allons donc retenir un intervalle allant de 0.1 g (km x véh)$^{-1}$ à 0.3 g (km x véh)$^{-1}$, avec un niveau de confiance de 95%. Cela donne une valeur moyenne de 200 g (km x véh)$^{-1}$, avec C_v=25%.

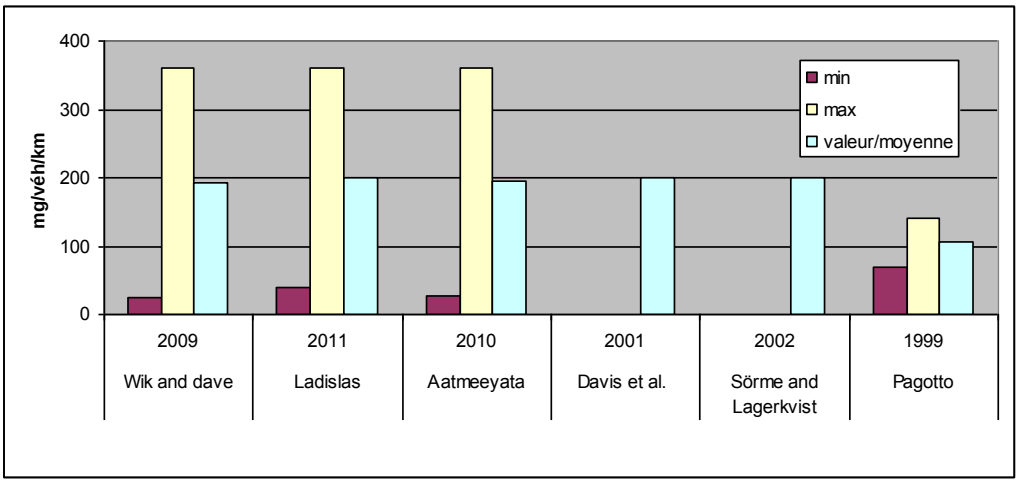


Figure 11 - Synthèse bibliographique des valeurs d'usure des pneus.

Fraction vers le sol ou l'eau de ruissellement

Pour les pneus, Thorpe et Harrison (2008) considèrent que seulement une petite fraction (quelque pourcent) des produits d'abrasion passe dans l'atmosphère. Le reste est principalement déposé sur la chaussée, même si une fraction peut adhérer à la surface du véhicule. Wik et Dave (2009) quantifient en moins de 5% la fraction passant dans l'atmosphère, et en moins de 1% ce qui est émis en forme gazeuse. On peut donc considérer 95% de dépôt direct, proche du 90% utilisé par Budai and Clement, 2011. Sörme and Lagerkvist (2002) assument, sur la base d'une analyse de Legret et Pagotto (1999) que la proportion se retrouvant dans les eaux pluviales est d'environ 40%.

En considérant les extrêmes de ces estimations (40% à 95%), avec un haut niveau de confiance (95%), nous obtenons une valeur de 67.5%, avec C_v=20%.

L'ensemble des valeurs des paramètres retenus pour le calcul des émissions dues à l'usure des pneus est synthétisé dans le Tableau 11.

Tableau 11 - Synthèse des valeurs retenus pour le calcul des émissions dues à l'usure des pneus.

		Unités	Min	Max	γ	α	**μ**	σ	**Cv**
Contenu	Cu	ppm	1	8	68%	1	**4.5**	3.5	**78%**
	Pb	ppm	3	10	68%	1	**6.5**	3.5	**54%**
	Zn	ppm	7500	10500	68%	1	**9000**	1500	**17%**
	PAH	ppm	20	100	87%	1.5	**60**	26.7	**44%**
Usure		mg/(km*v)	100	300	95%	2	**200**	50	**25%**
Fraction vers le sol		%	40	95	95%	2	**67.5**	13.5	**20%**

Usure de la chaussée

Contenu

La composition des enrobés est extrêmement variable (Thorpe et Harrison, 2008). Sörme and Lagerkvist (2002) remarquent en effet que les FE dépendent des matériaux utilisés, et donnent des valeurs indicatives pour une roche acide, typique des chaussées de Stockholm. Legret (2001) sépare le granulat (95% de l'enrobé) du bitume (5% de l'enrobé). En l'absence d'informations spécifiques sur le type d'enrobé utilisé dans les bassins versants objet d'étude,

nous pouvons utiliser les valeurs données par ces auteurs (Tableau 12). Pour les HAP, la thèse de Lindberg (1998) semble suggérer des valeurs de « quelque ppm » (*a very few ppm*). Nous pouvons considérer un intervalle allant de 0 à 10 ppm (ou mg/kg). A partir de ces données nous pouvons construire des intervalles (Tableau 13), auxquels nous attribuons une confiance faible (68%) en raison du nombre limité de sources.

Tableau 12 - Synthèse bibliographique des concentrations de métaux dans les chaussées.

Métal	Sörme and Lagerkvist (2002) (mg/kg)	Legret (2001) granulat / bitume / moy. pondérée (mg/kg)
Cu	13	80 / <17 / 76-77
Pb	24	0.6 / - / 0.57
Zn	52	85 / <17 / 81-82

Tableau 13 - Valeurs retenus pour les concentrations en métaux et HAP des chaussées

	min (ppm)	max (ppm)	Confiance	α	Moyenne (ppm)	σ (ppm)	Cv
Cu	10	80	68%	1	45	35	78%
Pb	0	25	68%	1	12.5	12.5	100%
Zn	50	85	68%	1	67.5	17.5	26%
HAP	0	10	68%	1	5	5	100%

Usure

Sörme and Lagerkvist (2002) considèrent une usure de 4-6 g (km x véh)$^{-1}$, mais remarquent que l'usage de pneus cloutés pour l'hiver (6 mois par an environ à Stockholm) produit une usure de la chaussée largement plus important qu'avec des pneus normaux (100 fois, WEAREM, 2010). En effet, Legret (2001) utilise une usure 3 ordres de grandeur plus petite (3.8 mg (km x véh)$^{-1}$), sur la base d'une étude de 1990. Kupiainen (2007) donne des valeurs pour les pays nordiques du même ordre que Sörme and Lagerkvist (2002) et, pour les autres pays (Royaume-Uni), cite Luhana et al. (2006) qui donne des valeurs moyennes (véhicules particuliers et poids lourds) de 5.9 mg (km x véh)$^{-1}$.

Considérant un intervalle allant de 3 à 6 mg (km x véh)$^{-1}$, avec une confiance de 68% en raison du nombre limité de sources, nous obtenons une valeur moyenne de 4.5 mg (km x véh)$^{-1}$, avec une incertitude de 33%.

Fraction vers le sol

Sörme and Lagerkvist (2002) considèrent que les tailles des particules sont comparables à celles en provenance de l'usure des pneus, et par conséquent les mêmes ratios sont applicables. Suivant cette analogie, nous retiendrons la même valeur de 67.5% (C_v=20%) de dépôt direct sur le sol que nous avons utilisée pour les pneus.

L'ensemble des valeurs des paramètres retenus pour le calcul des émissions dues à l'usure des chaussées est synthétisé dans le Tableau 14.

Tableau 14 - Synthèse des valeurs retenus pour le calcul des émissions dues à l'usure des chaussées.

		Unités	Min	Max	γ	α	μ	σ	Cv
Contenu	Cu	ppm	10	80	68%	1	**45**	35	**78%**
	Pb	ppm	0	25	68%	1	**12.5**	12.5	**100%**
	Zn	ppm	50	85	68%	1	**67.5**	17.5	**26%**
	PAH	ppm	0	10	68%	1	**5**	5	**100%**
Usure		mg/(km*v)	3	6	68%	1	**4.5**	1.5	**33%**
Fraction vers le sol		%	40	95	95%	2	**67.5**	13.5	**20%**

Fuites

Aucun élément de quantification n'a pu être trouvé sur l'entité des fuites de carburants, d'huile de moteur et de liquide de freinage, sinon des considérations sur l'importance de ces sources de contaminants au niveau des parkings plutôt que des routes (Budai et Clement, 2011).

Selon Pagotto (1999), les principaux métaux contenus dans ces liquides sont : le Zn dans les huiles moteur (1060 mg/kg) et le Cu dans l'antigel (76 mg/kg). Pour le reste, il s'agit de traces probablement négligeables.

Boonyatumanond et al. (2007) analysent les différents apports de HAP sur des rues de Bangkok (air, eau, sédiments). Même si le contexte est très différent du cas français (réglementations, parc de véhicules, conditions de circulation, etc.), nous pouvons synthétiser leurs résultats : ils observent que les sources principales d'HAP sont les émissions à l'échappement. Ensuite (1/20 environ) ils trouvent, approximativement au même niveau, l'usure des pneus et les fuites d'huile moteur, suivies (1/100) par l'usure de la chaussée.

Malgré ces quelques éléments, il a été impossible de quantifier ces fuites sur les trois sites d'INOGEV. L'estimation de cette source primaire de polluants reste une question ouverte.

Echappement

Carburants

Selon Sörme and Lagerkvist (2002), le contenu en métaux des carburants est inférieur à 1 ppm (<1 mg/kg, même moins pour l'essence), ce qui rend les fuites de carburant (et leur combustion), une source négligeable. Legret (2001) suggère des valeurs similaires, de l'ordre de 0.063 mg_{Cu}/l, 1 mg_{Pb}/l et 0.09 mg_{Zn}/l (moyenne essence sans plomb / diesel). Sörme and Lagerkvist (2002) donnent une densité de 745 kg/m^3, ce qui permet de transformer les valeurs de Legret (2001) en : 0.085 mg_{Cu}/kg; 1.34 mg_{Pb}/kg et 0.12 mg_{Zn}/kg.

Wang et al. (2003) trouvent, pour du diesel, des concentrations plus importantes : 2.78 mg_{Cu}/l ; 2.04 mg_{Pb}/l et 5.63 mg_{Zn}/l (3.73 mg_{Cu}/kg ; 2.74 mg_{Pb}/kg et 7.56 mg_{Zn}/kg). Cependant ces auteurs travaillent à Taiwan, ce qui peut indiquer des conditions différentes du contexte européen. Pour cette raison nous n'allons pas tenir compte de ces valeurs. Les intervalles construit sont indiqués dans le Tableau 15.

Tableau 15 - Valeurs retenus pour les concentrations en métaux des carburants.

	min (ppm)	max (ppm)	Confiance	α	Moyenne (ppm)	σ (ppm)	Cv
Cu	0	1	87%	1.5	0.5	0.33	67%
Pb	0	2	87%	1.5	0.75	0.5	67%
Zn	0	1	87%	1.5	0.5	0.33	67%

La consommation moyenne de carburant par véhicule en France est donné par le DGEMP (2006) : 7.09 l/100 km avec une baisse de l'ordre de 1% par an. En 2012 : 6.74 l/100 km. On retiendra donc cette valeur moyenne (0.0502 kg(km x véh)$^{-1}$), avec une incertitude associée de 20%.

Pour les HAP, Legret (2001) considère des émissions comprises entre 10.7 et 63.6 µg(véh km)$^{-1}$ pour les voitures et véhicules utilitaires, et de 211 µg(véh km)$^{-1}$ pour les poids lourds. Cependant, les évolutions des réglementations européennes pendant la dernière décennie

(normes EURO) rendent ces valeurs peu représentatives de la situation actuelle. Joumard et al. (2007), au sein d'un projet européen, considèrent des échantillons importants (8 à 47 véhicules) de véhicules pré-EURO 1, EURO 1, 2 et 3. Ils observent que la réduction plus significative dans les émissions d'HAP a eu lieu dans le passage pré-EURO 1 à EURO 1 (2 ordres de grandeur de réduction, contre 40% de EURO 1 à 3). Pour les EURO 3, standard le plus représentatif du parc actuel parmi ceux mesurés, les émissions sont quantifiés en 5 µg(véh km)$^{-1}$ (C_v=140%) pour les véhicules essence, et en 3 µg(véh km)$^{-1}$ (C_v=100%) pour les diesel. Nous retiendrons ces deux valeurs.

Pour obtenir une valeur représentative du parc français, nous allons considérer que le parc de véhicules est alimenté à 64.6% par des moteurs diesel (à partir des données INSEE pour 2011[3]), ce qui nous donne une moyenne pondérée de 3.7 µg(véh km)$^{-1}$. En propageant les incertitudes données par Joumard et al. (2007), on obtient C_v=97%.

Huile moteur

Selon Sörme and Lagerkvist (2002), le contenu en métaux des huiles moteurs est significatif pour le zinc (800-1400 mg/kg, densité 0.88 kg/l), alors que pour les autres métaux il est <1 ppm, ce qui le rend négligeable (consommation estimé, en combustion, à 1l/5000 km, environ 0.0002 kg/(véh km)$^{-1}$). Selon Davis et al. (2001), qui ont fait des mesures sur un échantillon de 13 huiles, la moyenne est de 125 mg_{Zn}/l, et de 1,1 et 2,1 mg/l pour Pb et Cu, respectivement. Ils utilisent, eux aussi, une valeur de consommation de 1l/5000 km. Nous allons retenir cette dernière valeur pour la consommation (20% d'incertitude). Pour le contenu en zinc nous considérons l'intervalle 100-1400 mg/l, avec une confiance de 68% en raison de la différence entre les deux sources ; ce choix nous donne une valeur moyenne de 750 mg/l, avec une incertitude de 87%

Fraction vers le sol

Sörme and Lagerkvist (2002), considèrent que les émissions au niveau de l'échappement ont un comportement similaire à celles dues à l'usure des freins, en raison de la taille des particules (20% vers les eaux de ruissellement). Yang et al. (1999) estiment par contre que seulement 10% (ou moins) des émissions à l'échappement se dépose directement au sol. Nous

[3] http://www.insee.fr/fr/themes/tableau.asp?reg_id=0&ref_id=NATTEF13629

allons donc considérer l'intervalle 5-25%, avec une confiance de 87%. Nous obtenons une moyenne de 15% (C_v=44%).

L'ensemble des valeurs des paramètres retenus pour le calcul des émissions à l'échappement est synthétisé dans le Tableau 16.

Tableau 16 - Synthèse des valeurs retenus pour le calcul des émissions à l'échappement.

		Unités	Min	Max	γ	α	**μ**	σ	**Cv**
Contenu	Cu	ppm	0	1	87%	1.5	**0.5**	0.33	**67%**
	Pb	ppm	0	2	87%	1.5	**0.75**	0.5	**67%**
	Zn	ppm	0	1	87%	1.5	**0.5**	0.33	**67%**
	Zn (oil)	ppm	100	1400	68%	1	**750**	652.5	**87%**
	PAH	µg/(km*v)					**3.7**	3.6	**97%**
Consommation	fuel	g/(km*v)					**50.2**	10.04	**20%**
	oil	g/(km*v)					**0.2**	0.04	**20%**
Fraction vers le sol		%	5	25	87%	1.5	**15**	6.6	**44%**

Dépôt atmosphérique

Comme nous l'avons anticipé, pour le compartiment atmosphérique il est nécessaire d'abandonner l'approche par sources primaires, étant donné les phénomènes de mélange et de transport qui interviennent. L'estimation se fait donc de manière groupée pour l'ensemble des retombées atmosphériques, et elle peut suivre deux méthodologies différentes : la modélisation ou l'estimation à partir de mesures. Nous exemplifions la première approche pour Sucy-en-Brie, site pour lequel nous disposons aussi de mesures permettant de valider le modèle. Pour les deux autres sites, nous nous limiterons à utiliser la deuxième méthode.

Plusieurs modèles existent qui permettent de simuler les concentrations atmosphériques de polluants et les retombées, avec différents niveaux de détail dans les données d'entrée et de sortie, ainsi que dans la description des processus physiques ayant lieu dans l'atmosphère (voir, par exemple, la synthèse bibliographique de Fallahshorshani et al. (2012). Pour notre étude, les besoins en termes de précision sont faibles : ne nécessitant que d'une estimation des retombées moyennes à l'échelle annuelle sur l'ensemble du bassin versant, nous n'avons pas besoin d'un modèle sophistiqué fournissant la distribution spatiale et temporelle fine des processus de déposition. Nous pouvons donc recourir au groupe de modèles le plus simple, de type « box-model ». Ces modèles considèrent que la concentration atmosphérique est spatialement uniforme au dessus de l'aire d'étude. Cette dernière est modélisée comme un espace de base

rectangulaire et s'élevant jusqu'à 1000 m pendant la journée et jusqu'à 50 m pendant la nuit (*atmospheric mixing layer*). A chaque pas de temps (1 h dans notre cas), la concentration C de chaque polluant est calculée comme la somme d'une concentration de fond et des émissions du bassin versant répartie sur le volume d'étude. Les émissions sont multipliée par un coefficient inversement proportionnel à la vitesse du vent, afin de décrire le processus d'advection (de Leeuw et al., 2002). Le flux de dépôt est estimé à partir de l'équation :

$$F_d(x,y) = V_d \cdot C(x,y,z=0) \qquad \text{(eq. 14)}$$

où V_d est la vitesse de dépôt, dépendant principalement de facteurs météorologiques et de la taille des particules. Puisque dans notre étude nous ne nous intéressons pas à la distribution temporelle du dépôt, l'effet de la météorologie sur la vitesse de dépôt n'est pas pris en compte, et des moyennes temporelles sont utilisées. La distribution des particules et les vitesses correspondantes sont reprises de Roustan (2005). La distribution des PM_{10} utilisée est la suivante : 74% avec un diamètre inférieur à 1 µm, 10 % entre 1 et 2.5 µm, 16% entre 2.5 et 10 µm. Les vitesses de dépôt sont respectivement de 0.2, 0.4 et 4 cm/s.

Les entrées du modèle spécifique du bassin versant sont : les concentrations de fond pour chaque polluant, les données météorologiques (vitesse du vent pour chaque pas de temps), les émissions dues au trafic et au chauffage. Les concentrations de fond ont été obtenues à partir de mesures réalisées dans la région parisienne (Ayrault et al., 2010; INERIS, 2000) : les concentrations moyennes retenues sont respectivement de 18.4, 6.3, 45.8 et 1.61 ng/m^3 pour le Cu, le Pb, le Zn et les HAP. Ces concentrations ont été considérees uniformes et constantes dans le volume d'étude. Les données météorologiques étaient disponibles à la station météo de l'aéroport d'Orly, à 10 km de distance du bassin versant de Sucy.

Les émissions dues au trafic routier ont été estimées à partir du volume de trafic annuel estimé plus haut et de facteurs d'émissions. Il est important de remarquer que, en raison des différences de taille des particules considérées, les facteurs d'émission pour les modèles atmosphériques ne sont pas nécessairement les mêmes que ceux estimés plus haut pour le dépôt direct. Il est donc opportun d'utiliser, dans ce cadre, des facteurs d'émission spécifiques. Pour les métaux, nous avons utilisé les résultats expérimentaux de Sternbeck (2002) ; pour les HAP nous avons utilisé le modèle CopCETE, une version du modèle européen COPERT4 (http://www.emisia.com/copert/General.html) adaptée au parc de véhicules français.

Les émissions dues au chauffage résidentiel ont été estimées à partir de données INSEE, fournissant les sources principales d'énergie utilisées dans chaque ville. A Sucy-en-Brie, 47% des maisons et appartements utilisent le gaz, 20% l'huile combustible, 26% l'électricité, 7% d'autres carburants. En considérant des valeurs moyennes de consommation par les ménages à l'échelle française, ainsi que de facteurs d'émissions pour les différentes sources (CITEPA, 2012), il est possible d'estimer les émissions annuelles à l'échelle du bassin versant.

La sortie du modèle est, pour chaque polluant, le dépôt moyen annuel par hectare. Pour évaluer la qualité des résultats, nous avons comparé ces simulations avec d'autres données disponibles : le dépôt atmosphérique moyen mesuré dans le bassin versant, calculé sur la base de huit mesures réalisées entre 2011 et 2013 dans le cadre d'INOGEV (Gasperi et al., *soumis*) ; l'estimation du dépôt annuel à Créteil en 2001/2002 (Azimi et al., 2003 ; 2005). La comparaison est présentée en Figure 12.

Pour les trois métaux, et le plomb en particulier, les mesures à Créteil fournissent des valeurs bien plus élevés que ceux du modèle ou des mesures sur site. Cela est dû, probablement, à la plus grande densité urbaine, de trafic et industrielle de la zone de Créteil par rapport à Sucy, ainsi que à la réduction des émissions pendant la dernière décennie, suite aux réglementations. Puisque les facteurs d'émission utilisés dans le modèle sont de 2002, la dernière considération peu expliquer aussi la surestimation faite pour le Pb par le modèle par rapport aux mesures sur site. Pour les autres métaux, il y a une bonne correspondance entre estimations du modèle et mesures. Pour les HAP, cependant, l'estimation du modèle est environ cinq fois plus grande que celle à partir des mesures : dans ce cas, le bon accord entre les mesures sur place et à Créteil suggère que le modèle surestime le dépôt annuel. Une explication alternative est que les mesures de dépôt, typiquement réalisées dans des endroits placés en hauteur (e.g. sur le toit de bâtiment haut), sous-estiment les polluants émit localement dans les endroits bas, comme les HAP émis par le trafic. En conclusion de cette analyse, nous allons utiliser par la suite les résultats du modèle pour Cu et Zn, avec une incertitude estimée de 20% (méthode 3). Pour le Pb, nous utilisons les mesures sur site avec une incertitude de 40% (méthode 1). Enfin, pour les HAP, nous construisons un interval de confiance entre les mesures et le modèle, en lui attribuant une confiance de 68%. Nous obtenons une valeur moyenne de 2.6 g/ha/an, avec C_v=66%. Pour estimer le flux vers les eaux de ruissellement, nous considérons que le dépôt sur les surfaces perméables reste piégé dans le sol, et que seulement les surfaces imperméables contribuent au ruissellement.

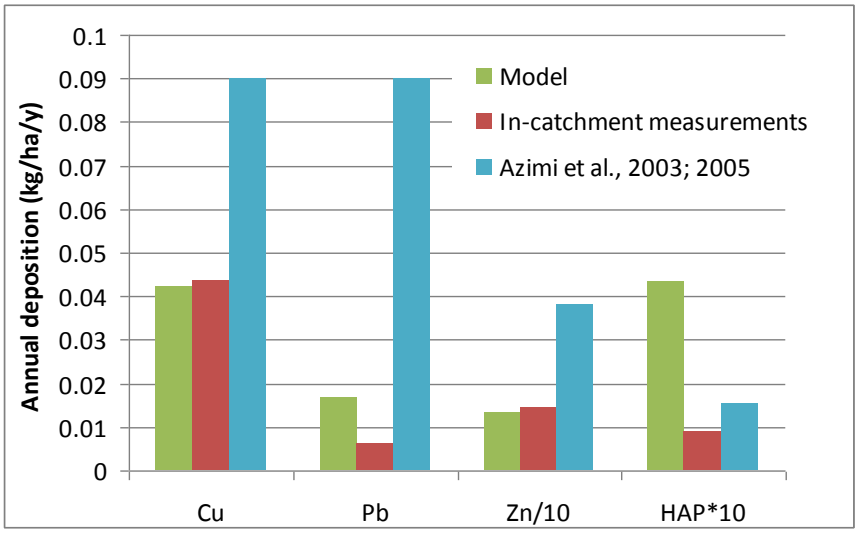


Figure 12 - Estimations du dépôt atmosphérique annuel à Sucy.

Pour les sites de Chassieu et Pin Sec, nous utilisons les mesures reportées par, respectivement, Becouze (2010) et Lamprea (2009). Les deux auteurs mesurent les retombées des trois métaux et en fournissent la moyenne sur plusieurs mesures ainsi que les extrêmes (min/max pour Becouze, quantiles 10% et 90% pour Lamprea). Nous allons retenir les valeurs moyennes fournies et, à partir des intervalles, nous allons estimer l'incertitude associée (nous associons un niveau de confiance de 68% à l'intervalle de Lamprea, de 95% à celui de Becouze, dont nous avons les extrêmes). Les résultats de cette opération sont donnés dans le Tableau 17. Cette estimation n'a pas été possible pour les HAP : Becouze (2010) n'a réalisé de mesure que sur 4 HAP, et Lamprea a rencontré des problèmes de quantification (2009). Pour fournir une estimation indicative, nous allons utiliser pour référence la valeur obtenue sur Sucy, avec une incertitude de 133% (le double qu'à Sucy).

Tableau 17 - Estimations du dépôt atmosphérique annuel à Pin Sec.

	Chassieu		Pin sec	
	μ (kg/ha/an)	C_v	μ (kg/ha/an)	C_v
Cu	0.063	44%	0.033	8%
Pb	0.011	46%	0.009	8%
Zn	0.231	47%	0.291	16%

Matériaux de toiture

Les matériaux de couverture et les autres éléments de toitures (gouttières et descentes, noues, étanchéités) entrant en contact avec l'eau de ruissellement peuvent être une source significative de métaux. Des panneaux de zinc ou d'acier galvanisé peuvent être utilisé pour la couverture ; le zinc est aussi un des matériaux les plus courants pour la réalisation de gouttières, descentes, noues et étanchéités. Le cuivre est utilisé pour gouttières et descentes. Le plomb est couramment présent dans les noues et les étanchéités (bavettes de velux, etc.), même si son usage se réduit progressivement. Pour estimer les émissions spécifiques (facteurs d'émission) nous avons utilisé les mesures réalisées sur des bancs d'essai par Robert-Sainte et al. (2009). Pour quantifier l'extension des sources (rampant métalliques, gouttières et descentes, étanchéités) nous avons expérimenté une procédure d'analyse fine sur Sucy-en-Brie. En raison du temps demandé par une telle analyse, il n'a pas été possible de procéder de la même manière sur les deux autres bassins.

La procédure appliquée à Sucy est constituée par deux méthodes différentes : pour les rampants, visibles sur les images aériennes, nous avons procédé à une identification et classification systématiques des toitures métalliques sur ces images ; pour les éléments linéaires (gouttières, descentes) et ponctuels (étanchéités), nous avons constitué un échantillon de bâtiments pour lesquels nous avons réalisé une reconnaissance visuelle des matériaux. Nous avons restreint cette dernière analyse aux pavillons, la typologie d'habitat largement plus répandue sur le bassin versant. L'échantillon est constitué de 88 pavillons (4% de la population, comme conseillé par Sellami et al., 2013) et la classification des matériaux a été validée par deux identifications indépendantes réalisés par deux chercheurs experts en matériaux de toiture.

Facteurs d'émission

Robert-Sainte et al. (2009) ont constitué une base de données significative sur les émissions par les matériaux métalliques employés dans les toitures. Cette base inclut plus d'un an de mesures sur deux sites équipés avec plusieurs matériaux de toiture d'ages différents. A partir de ces données, nous avons d'abord agrégé les différents matériaux en des classes compatibles avec l'identification *in situ* et les émissions pertinentes pour cette étude : couvertures en zinc et acier galvanisé (émissions importantes de zinc) ou en d'autres métaux

(aluminium, acier laqué ou peint, etc., caractérisés par de faibles émissions de zinc) ; étanchéités en plomb ; gouttières en zinc ou en cuivre. Pour chaque classe nous avons calculé, à partir de toutes les mesures disponibles (par exemple, les mesures pour le zinc neuf et ancien sur les deux sites ont été groupées dans la classe couvertures en zinc et acier galvanisé), la distribution des émissions spécifiques par mm de pluie, et l'incertitude associée (méthode 1, Tableau 18). En suite, pour passer aux émissions annuelles, nous avons multiplié ces valeurs par la pluie moyenne annuelle à Sucy (693 mm). Cette normalisation par la pluie a l'objectif de pouvoir appliquer les mêmes facteurs aux autres sites.

Tableau 18 - Emissions spécifiques par les matériaux de toiture.

		Emissions spécifiques (µg/m²/mm)			Cv		
	Material	Zn	Pb	Cu	Zn	Pb	Cu
Couverture	Zinc et acier galvanisé	5410	1.4	2.2	41%	155%	112%
	Autres métaux	34	15.0	2.2	90%	139%	145%
El. Ponctuels	Plomb	150	14993	19	203%	42%	264%
		Emissions spécifiques (µg/m/y)			Cv (%)		
		Zn	Pb	Cu	Zn	Pb	Cu
El. Lineaires	Zinc	1050	2.7	4.0	45%	92%	128%
	Cuivre	47	2.0	718	81%	158%	42%

Matériaux de couverture

A Sucy-en-Brie, la plupart des toitures sont en tuiles. Considérant cette prédominance, il a été envisageable de procéder à une identification systématique des toits métalliques. Ce travail sur les images aériennes a permis de distinguer 8 catégories : tuiles (78.2% de la surface totale de toiture) ; toits terrasses (9.3%) ; fibrociment (1.2%) ; acier (non galvanisé, 1.4%) ; zinc (0.8%) ; métaux non identifiés (2.2%) ; matériaux mixtes avec métal (3.3%) ; mixtes sans métal (3.6%). A partir de cette analyse, on peut donc constituer deux catégories : celle des matériaux à fortes émissions de zinc, comprise entre 0.8% de la surface totale de toiture (zinc) et 6.3% (zinc + métaux non identifiés + mixtes avec métal) et celle des matériaux à faibles émissions de zinc, comprise entre 1.4% (acier non galvanisé) et 6.9% (+ métaux non identifiés + mixtes avec métal). En attribuant à ces intervalles une confiance de 95%, en raison de la systématicité de l'identification, nous obtenons les valeurs reportées dans le Tableau 19.

Tableau 19 – Matériaux de couverture.

	Min %	Max %	Min surf. (m²)	Max Surf. (m²)	**µ (m²)**	σ (m²)	**cv**
Surfaces à faibles émissions	1.4%	6.9%	4734	23421	**14077**	4672	**33%**
Surfaces à hautes émissions	0.8%	6.3%	2723	21409	**12066**	4672	**39%**

Pour Pin Sec, nous disposons d'une analyse des matériaux de toiture à partir de Lamprea (2009). Parmi les classes identifiées, la seule significative de notre point de vue est celle de la tôle galvanisée (hautes émissions), couvrant 0.1 ha. Nous attribuons à cette estimation une incertitude de 30%.

Pour Chassieu nous ne disposons d'aucune observation sur site et, étant donné que la plupart des bâtiments industriels présents sur le BV sont métalliques, l'identification est complexe. Ne disposant pas du temps nécessaire à un échantillonnage des bâtiments avec observation directe des matériaux nous recourons, en première approximation, à une méthode très simple basée sur la répartition du marché des couvertures de toit (MSI, 2005). L'étude de marché à disposition fournit les parts de marché des différents matériaux de couverture, notamment pour le secteur non résidentiel. A partir de ces statistiques et de la connaissance de la surface totale de toiture sur le bassin versant (à partir de la BD TOPO, 3.150 ha), il est possible d'estimer les surfaces des différents matériaux. Les statistiques disponibles montrent que les toits en acier sont les plus répandus en France pour ce type de bâtiments (45% du total), suivis par les toits en zinc (4.5%) et en aluminium (3.6%). Des petites surfaces (<1%) sont couvertes en cuivre ou en plomb, mais cela concerne plus les bâtiments historiques et peut être négligé pour notre analyse d'un quartier industriel ; le restant des toitures est couvert par des matériaux non métalliques (plaques en fibres ciment, plaques bitumineuses, etc.). A partir de ces données, nous pouvons estimer la surface de toits en acier dans le bassin versant à 13250 m², en zinc à 1331 m², en aluminium à 1065 m². Alors que le classement des toits en zinc et en aluminium dans les classes discutées précédemment ne pose pas de difficultés, pour l'acier nous allons considérer la moitié de la surface étant à faibles émissions (acier inox, peint ou laqué) et l'autre moitié à hautes émissions (acier zingué, galvanisé). Etant donnée l'absence d'une vérification de terrain des hypothèses faites, nous allons considérer une incertitude très élevée pour ces estimations, de 60%.

Eléments linéaires (gouttières et descentes)

Pour chaque bâtiment de l'échantillon considéré, nous avons mesuré la longueur des gouttières à partir des images aériennes. Puisque les gouttières sont généralement invisibles sur ce type d'images, les estimations ont été basées sur la structure des toits (nombre et largeur des

pans). Cette procédure est relativement précise pour des toitures simples (la définition des images disponibles est de l'ordre de 30 à 50 cm) mais peut être difficile à appliquer à des toits ayant des structures complexes.

Le nombre et la hauteur des descentes ont été estimés à partir d'une reconnaissance visuelle et d'une mesure des parties visibles à partir de la rue. Ces estimations ont été extrapolées à la partie invisible des pavillons à partir de la structure du toit (images aériennes). L'estimation d'hauteur est raisonnablement précise, car elle a pu se baser sur la comparaison avec des éléments architecturaux plus ou moins standard (étages, portes, fenêtres). Par exemple, l'hauteur d'un étage peut varier entre 2.5 m et 3.5 m (3 m ±16%), et l'usage de portes et fenêtres comme repères permet de réduire cette incertitude. L'estimation la plus imprécise est l'extrapolation aux parties cachées du bâtiment, dans laquelle on peut sur- ou sous-estimer le nombre de descentes. Pour un petit bâtiment rectangulaire avec un toit à deux pans, ayant une descente sur la façade (visible), une ou deux descentes peuvent se trouver à l'arrière. Si nous supposons qu'il y en a une, l'erreur maximale est de 33% (l'estimation est un tiers plus petite que la réalité). Donc, on considère une incertitude de ces estimations d'environ 30%.

L'extrapolation a l'ensemble de la population a été basé sur une régression (R^2=0.58) entre la longueur totale des éléments linéaires (gouttières et descentes) et la surface des bâtiments obtenue par la BD TOPO. La régression a été ensuite appliqué pour determiner la longueur de ces éléments pour chaque pavillon de la population. La somme de ces longueurs, pour l'ensemble du bassin versant, est de 93.5 km. De la même manière que pour l'estimation du trafic, cette agrégation de valeurs individuelles extrêmement incertaines donne, pour la somme, une incertitude très faible (0.7% pour une incertitude de 30% sur chaque bâtiment). Cette incertitude est faiblement sensible à l'estimation des incertitudes individuelles : en augmentant l'incertitude sur chaque bâtiment à 100%, l'incertitude globale passe à 2.3%. Même en considérant une corrélation maximale entre les estimations, l'incertitude monte à 3.5%. Cette faible sensitivité, même en prenant en compte la corrélation, suggère que l'erreur commise avec la régression pour les bâtiments individuels est acceptable. En outre, ce cas est différent de celui du trafic dans la mesure où ici les estimations sont basées sur un échantillon local et consistant, et pas sur des moyennes à partir de la littérature. Par conséquent, au lieu que retenir une valeur proche du maximum, nous choisissons ici une valeur intermédiaire de 1.4%.

La classification des matériaux a été faite à partir de deux classifications visuelles indépendantes opérées par des chercheurs experts. Nous avons comparé les deux distributions

obtenues par un test statistique de comparaison des proportions (Saporta, 1990). L'hypothèse que les proportions sont différentes est toujours rejetée, mais en raison de la taille de l'échantillon, le test n'est significatif que pour le zinc et le PVC. La distribution moyenne résultante est fournie dans le Tableau 20. L'incertitude de chaque proportion *f* a été calculée à partir de l'estimateur de variance :

$$\mathrm{var}(\hat{f}) = (1 - \frac{n}{N}) \frac{\hat{f}(1-\hat{f})}{n-1} \qquad \text{(eq. 15)}$$

Où n est le nombre de cas observés, N la taille de la population, $\hat{f}$ la proportion observée sur l'échantillon. La longueur totale pour chaque matériau est le produit de f et de la longueur totale des éléments linéaires estimée plus haut.

Tableau 20 - Distribution des matériaux pour gouttières et descentes.

	f	σ	**Longueur totale (m)**	**Cv**
Zinc	58.7%	5.6%	**54882**	**10%**
PVC	26.1%	5.0%	**24426**	**19%**
Cuivre	3.2%	2.0%	**3016**	**63%**
Zinc et PVC	8.7%	3.2%	**8142**	**37%**
non identifié	1.9%	1.6%	**1809**	**81%**
Aluminium	1.0%	1.1%	**905**	**116%**
Fonte	0.3%	0.6%	**302**	**201%**

Eléments ponctuels

Sur le même échantillon utilisé pour les éléments linéaires, nous avons estimé la surface et identifié les matériaux des étanchéités et des noues. La procédure de classification et d'estimation de la surface est la même. L'extrapolation aux parties invisibles des toitures a été faite avec le support des images aériennes : par exemple, si des bavette en plomb de 0.2 m² sont présentes sur chaque velux visible d'un bâtiment, et deux velux (invisibles) apparaissent sur les images aériennes, nous considérons une surface de plomb supplémentaire de 0.4 m² pour ce bâtiment.

Lors du traitement des résultats de cette analyse, il a été impossible de trouver une régression satisfaisante ou une seule distribution permettant de décrire la surface de plomb sur les bâtiments. Nous avons donc adopté une classification supplémentaire, en distinguant trois classes : les bâtiments sans éléments en Pb (49%), ceux avec une surface de Pb < 1 m² (39%, C_v =14% à partir de l'équation 15), ceux avec une surface de Pb > 1 m² (12%, C_v =31%). Pour les deux

dernières classes, nous avons estimé la surface moyenne de Pb par bâtiment (0.33 m² et 2.81 m² respectivement, C_v = 72% et 59%). Nous avons extrapolées ces proportions et moyennes à l'ensemble de la population, en obtenant une surface totale de Pb de 1026 m² (C_v = 52%). Une analyse similaire pour les étanchéités et les noues en Zn a donné un résultat de 904 m² (C_v = 57%).

Résultats

Les résultats des estimations sont synthétisés dans le Tableau 21, dans la Figure 13, Figure 14, Figure 15 et Figure 16. Dans le tableau, les résultats sont donnés en termes de flux spécifiques par hectare imperméabilisé, dans les graphiques sont reportées les contributions relatives de chaque source.

Tableau 21 - Emissions spécifiques sur les trois bassins versants. Les flux sont normalisés par la surface imperméable de chaque bassin. Le format est μ ± σ (C_v).

SUCY			Cu (g/ha/y)	Pb (g/ha/y)	Zn (g/ha/y)	PAH (mg/ha/y)
Activités	Dépôt atmosphérique		4,2 ±0,8 (20%)	0,6 ±0,2 (40%)	13,1 ±2,6 (20%)	2600 ±1716 (66%)
	Transport routier	Usure freins	28,8 ±18,8 (65%)	0,2 ±0,1 (50%)	11,7 ±5,8 (50%)	0
		Usure pneus	0,0 ±0,0 (85%)	0,0 ±0,0 (64%)	55,8 ±21,0 (38%)	3720 ±2058 (55%)
		Usure chaussée	0,0 ±0,0 (88%)	0,0 ±0,0 (108%)	0,0 ±0,0 (48%)	7 ±8 (108%)
		Echappement	0,2 ±0,1 (83%)	0,3 ±0,2 (83%)	1,2 ±1,1 (89%)	2690 ±2878 (107%)
Utilisation des sols	Bâtiment	Surfaces	0,0 ±0,0 (119%)	0,0 ±0,0 (160%)	94,2 ±52,8 (56%)	0
		El. Linéaires	3,5 ±2,4 (69%)	0,2 ±0,2 (83%)	89,6 ±38,5 (43%)	0
		El. Ponctuels	0,0 ±0,1 (244%)	22,2 ±14,9 (67%)	7,3 ±5,0 (68%)	0
	TOTAL		36,7 ±18,9 (52%)	23,6 ±14,9 (63%)	272,9 ±70,8 (26%)	6606 ±2810 (43%)

CHASSIEU			Cu (g/ha/y)	Pb (g/ha/y)	Zn (g/ha/y)	PAH (mg/ha/y)
Activités	Dépôt atmosphérique		6,3 ±2,8 (44%)	1,1 ±0,5 (46%)	23,1 ±10,9 (47%)	2600 ±3458 (133%)
	Transport routier	Usure freins	6,8 ±4,4 (65%)	0,0 ±0,0 (50%)	2,8 ±1,4 (49%)	0
		Usure pneus	0,0 ±0,0 (83%)	0,0 ±0,0 (61%)	12,0 ±3,9 (33%)	799 ±417 (52%)
		Usure chaussée	0,0 ±0,0 (88%)	0,0 ±0,0 (108%)	0,0 ±0,0 (48%)	1 ±2 (108%)
		Echappement	0,0 ±0,0 (83%)	0,0 ±0,0 (83%)	0,0 ±0,0 (83%)	74 ±79 (107%)
Utilisation des sols	Bâtiment	Surfaces	0,0 ±0,0 (101%)	0,1 ±0,1 (139%)	27,2 ±19,6 (72%)	0
		El. Linéaires	0,0 ±0,0 (%)	0,0 ±0,0 (%)	0,0 ±0,0 (%)	0
		El. Ponctuels	0,0 ±0,0 (%)	0,0 ±0,0 (%)	0,0 ±0,0 (%)	0
	TOTAL		13,1 ±5,2 (40%)	1,2 ±0,5 (42%)	65,0 ±22,8 (35%)	3475 ±3484 (100%)

PIN SEC			Cu (g/ha/y)	Pb (g/ha/y)	Zn (g/ha/y)	PAH (mg/ha/y)
Activités	Dépôt atmosphérique		3,3 ±0,3 (8%)	0,9 ±0,1 (8%)	29,1 ±4,7 (16%)	2600 ±3458 (133%)
	Transport routier	Usure freins	15,6 ±10,5 (67%)	0,1 ±0,1 (53%)	6,4 ±3,3 (52%)	0
		Usure pneus	0,0 ±0,0 (85%)	0,0 ±0,0 (63%)	30,1 ±11,2 (37%)	2007 ±1104 (55%)
		Usure	0,0 ±0,0 (89%)	0,0 ±0,0 (109%)	0,0 ±0,0 (51%)	4 ±4 (109%)
		Echappement	0,0 ±0,0 (85%)	0,0 ±0,0 (85%)	0,0 ±0,0 (85%)	186 ±202 (108%)
Utilisation des sols	Bâtiment	Surfaces	0,0 ±0,0 (116%)	0,0 ±0,0 (158%)	28,4 ±14,4 (51%)	0
		El. Linéaires	0,0 ±0,0 (%)	0,0 ±0,0 (%)	0,0 ±0,0 (%)	0
		El. Ponctuels	0,0 ±0,0 (%)	0,0 ±0,0 (%)	0,0 ±0,0 (%)	0
	TOTAL		19,0 ±10,5 (56%)	1,0 ±0,1 (9%)	94,0 ±19,1 (20%)	4796 ±3635 (76%)

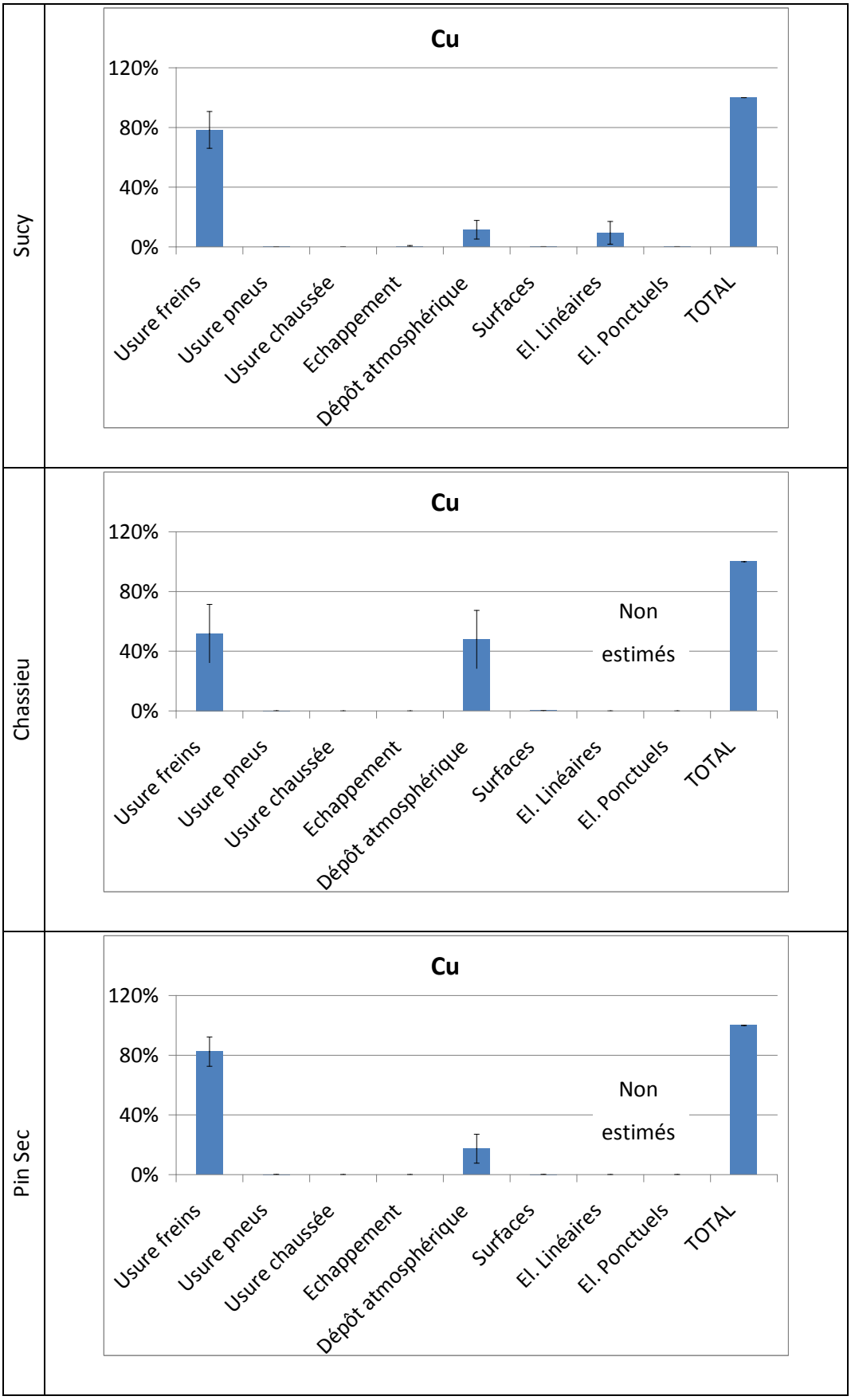


Figure 13 - Répartition des émissions de Cu sur les trois sites.

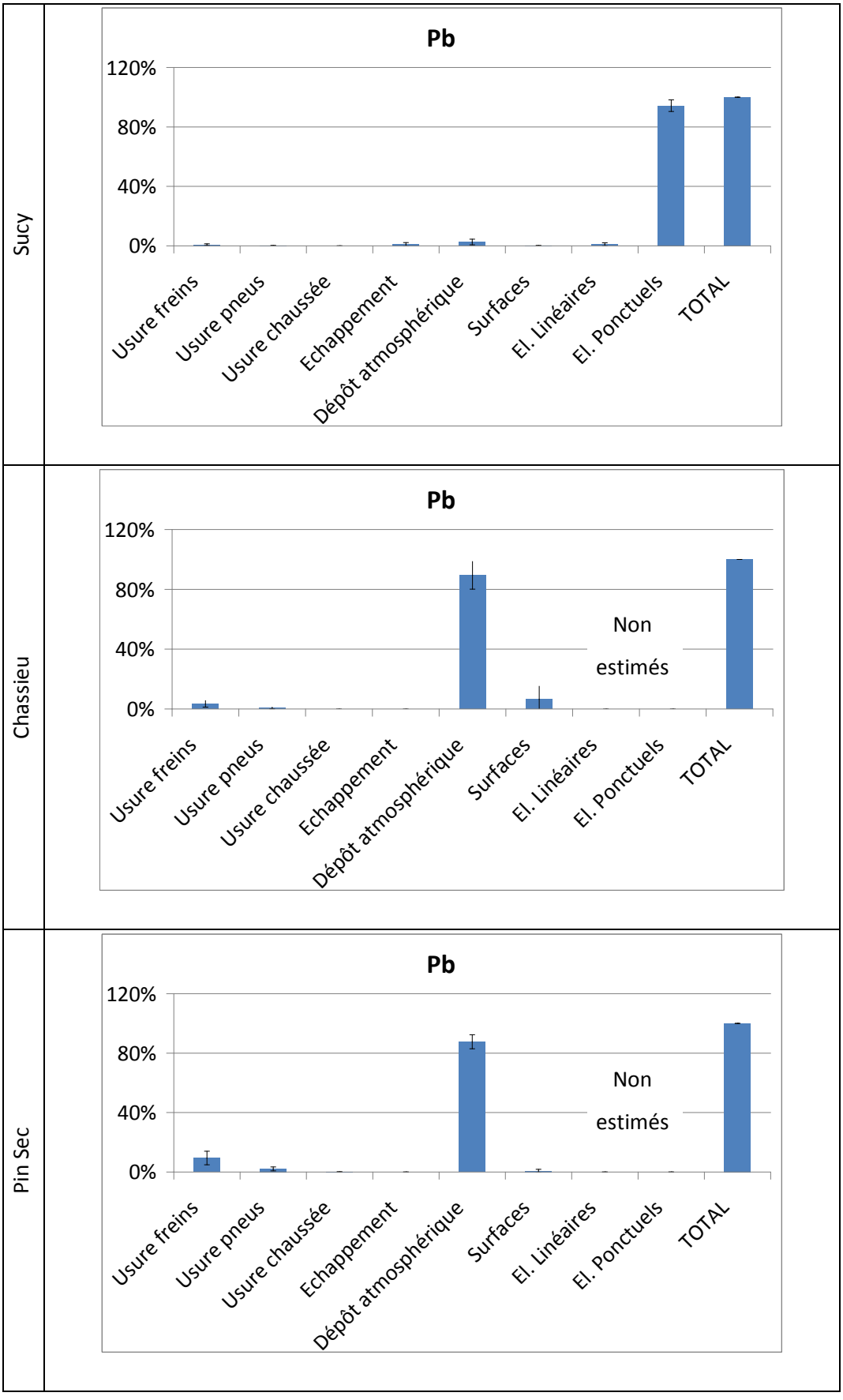


Figure 14 - Répartition des émissions de Pb sur les trois sites.

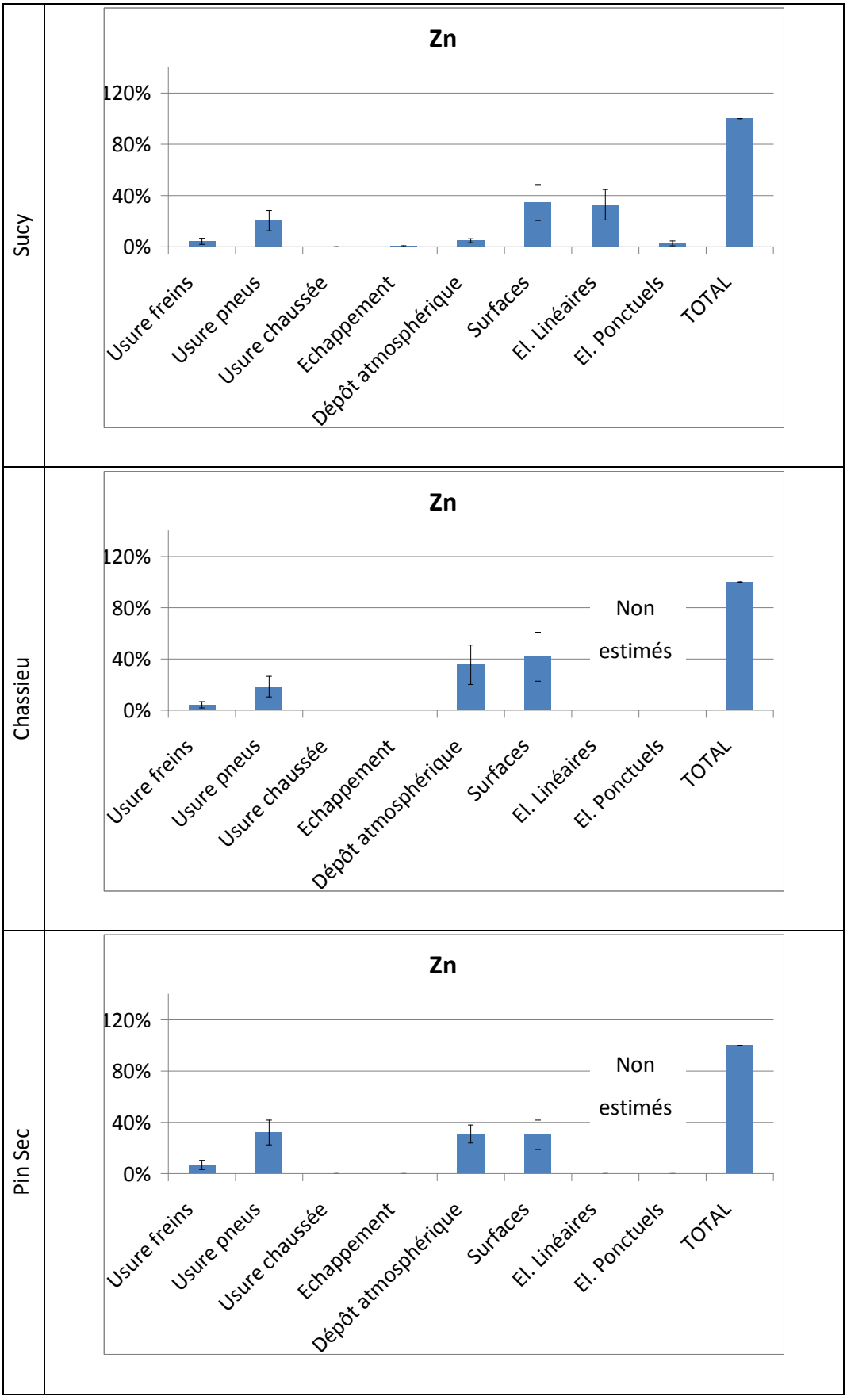


Figure 15 - Répartition des émissions de Zn sur les trois sites.

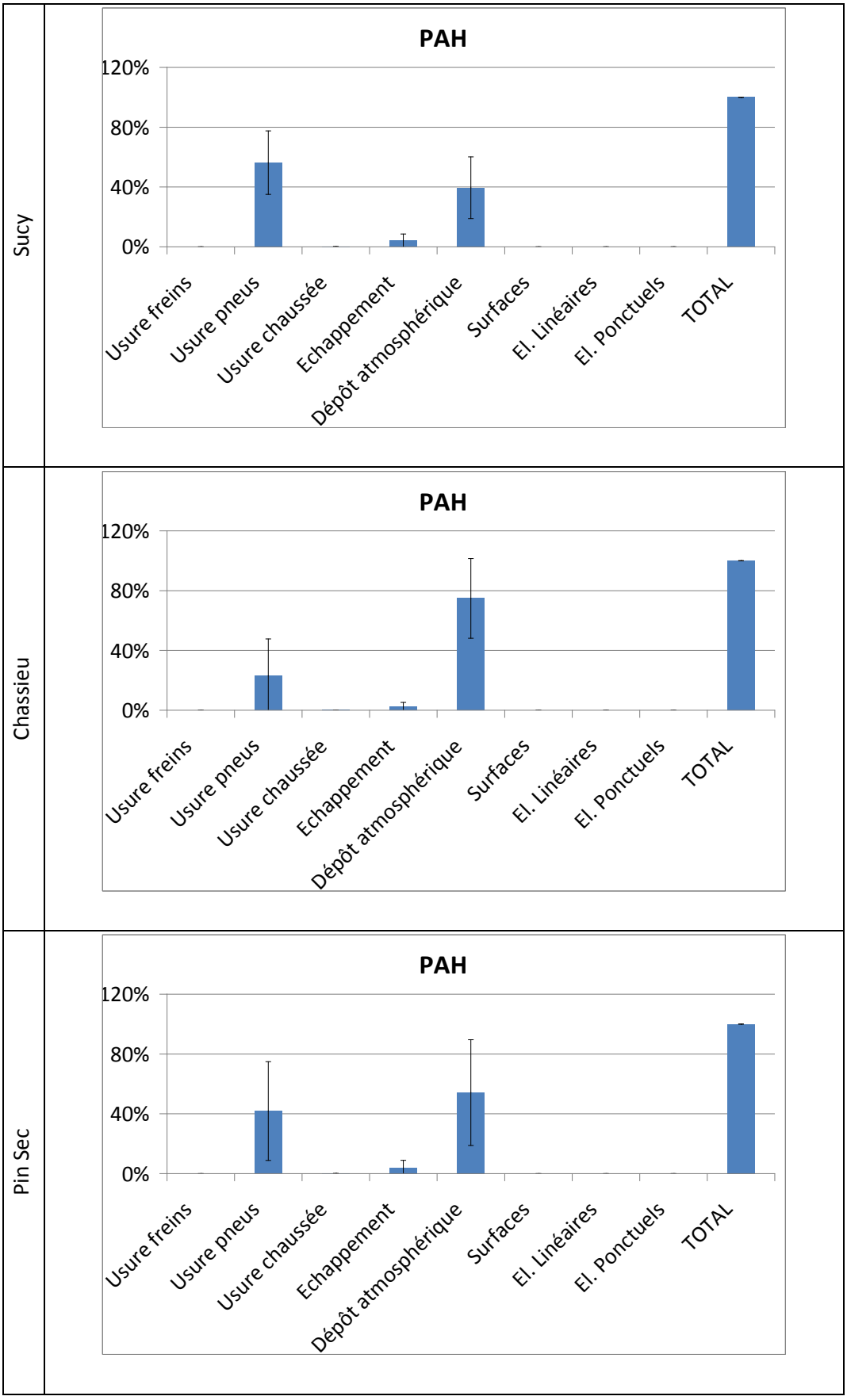


Figure 16 - Répartition des émissions de HAP sur les trois sites.

Pour les émissions de cuivre nous observons une différence dans la répartition des sources entre les deux bassins versants résidentiels (dont les distributions sont presque identiques) et celui industriel. Dans les deux bassins résidentiels, 80% environ des émissions dérive de l'usure des plaquettes de freins, alors que dans le bassin industriel cette contribution ne constitue que 50% environ, le reste étant représenté par le dépôt atmosphérique. Cette diversité découle de la très haute imperméabilisation du bassin versant de Chassieu, qui augmente sensiblement le poids du dépôt atmosphérique par rapport aux autres sources. Une deuxième remarque concerne les éléments linéaires des toitures (gouttières, descentes). Ces éléments, qui n'ont été quantifié que dans le cas de Sucy, ont dans ce bassin versant une présence faible : seulement 3% environ des gouttières et descentes sont en cuivre. Cependant, cette faible présence est suffisante à produire un apport en Cu à l'exutoire non négligeable (10% environ). Dans d'autres bassins versants, les éléments linéaires en cuivre peuvent constituer la norme, et dans des conditions d'activité similaires ils peuvent devenir la source principale de Cu. C'est le cas, par exemple, de la ville de Lausanne où, à l'exception des caténaires de tram (absents sur notre site), Chèvre et al. (2011) montrent une prédominance des émissions de toiture par rapport au trafic. Davis et al. (2001) sur une zone urbaine américaine « virtuelle » concluent que l'usure des plaquettes de freins est la source dominante (47%), suivie par les bâtiments (31%) et le dépôt atmosphérique (21%). Une comparaison plus approfondie entre nos résultats et ces études n'est pas possible car nous ne disposons pas d'information sur les surfaces imperméables considérées par leurs auteurs. Cependant, les observations faites permettent de conclure que, à l'opposé de l'usure des plaquettes de freins qui est toujours une source significative, le poids des autres sources dépend des spécificités de chaque bassin versant (présence de voies de tram, fréquence des éléments en cuivre dans les bâtiments, imperméabilisation du bassin).

Pour le Pb, les résultats obtenus pour le bassin versant de Sucy sont particulièrement significatifs : les émissions estimées sur ce bassin sont dues à 94% aux étanchéités et aux autres éléments en plomb dans les toitures. Pour les autres bassins, ou ces éléments n'ont pu être quantifiés, les flux totaux sont extrêmement plus faibles (environ 1 g/ha/an contre 24 g/ha/an). Thévenot et al. (2007) ont dressé, à partir de mesures de 1997, un bilan des sources de plomb dans le bassin versant du Marais (très dense, situé au centre de Paris). Même si à l'époque des mesures les émissions de plomb par le trafic étaient beaucoup plus fortes que maintenant, ils trouvaient que 73% du plomb émis était en provenance du ruissellement des toitures, ce qui, actualisé, semble cohérent avec nos résultats. Cette dominance des bâtiments montre d'une part l'efficacité des stratégies appliquées pendant les dernières décennies pour réduire les émissions

de Pb, d'autre part que cette efficacité très forte pour le domaine atmosphérique a été moins remarquable pour le compartiment hydrique. Malgré les réglementations sur le plomb réglementant aussi les matériaux de construction, le remplacement des éléments de plomb pourra demander des décennies, et pendant cette période les émissions de ce métal vers les eaux pluviales se poursuivront. Ces remarques montrent aussi la limite des estimations que nous avons réalisée pour les deux autres bassins versants. Dans l'impossibilité d'évaluer les éléments ponctuels des toitures avec le même niveau de détail que pour Sucy, les résultats fournis sont clairement sous-estimés. Même si la présence de pavillons est moindre (Pin Sec) ou nulle (Chassieu) sur les autres bassins versants, des éléments en plombs sont susceptibles d'être présent (et même abondant) sur les toitures d'autres typologies de bâtiment. Lamprea (2009) a mesuré les concentrations de différents métaux à l'aval des toitures de quatre bâtiments du bassin de Pin Sec. Elle trouve des concentrations élevées en Pb aussi bien à l'aval d'un toit en tuiles, comme ceux que nous avons analysés à Sucy, que d'un toit terrasse avec une couverture en bitume. Les concentrations sont même plus élevées dans ce dernier cas (minimum et maximum, la médiane des concentrations étant à peu prés égale dans les deux cas). D'ailleurs, la méthode d'échantillonnage et reconnaissance visuelle que nous avons appliquée à Sucy ne peut être transposée directement sur les deux autres bassins : si elle est adaptée à un contexte urbain principalement pavillonnaire (où une partie des toits est observable depuis la rue) elle ne peut s'appliquer à un habitat collectif ou à des bâtiments industriels, où les détails des toits sont invisibles. Vu l'importance que ces petits éléments peu caractérisés ont pour les émissions de Pb, ces observations montrent la nécessité de réaliser des analyses fines de la présence de plomb dans les différentes typologies de toitures.

Pour le zinc, le problème observé pour le plomb (i.e. l'impossibilité d'estimer la contribution des éléments linéaires et ponctuels des toitures à Chassieu et Pin Sec) se représente. Cependant, dans ce cas le problème est moins significatif, en raison de l'existence d'autres sources importantes de ce métal. A Sucy, les éléments linéaires et ponctuels des toitures contribuent pour 36% environ aux émissions totales de Zn. Les autres sources significatives, présentes sur les trois bassins sont les rampants en zinc (35% à Sucy, 42% à Chassieu, 30% à Pin Sec), l'usure des pneus (20%, 18%, 32% respectivement sur les trois bassins) et les retombées atmosphériques, particulièrement significatives à Chassieu (36%) en raison de l'imperméabilisation. En valeur absolue, les émissions à Sucy sont plus importantes que dans les autres bassins, même en faisant abstraction des éléments ponctuels et linéaires des toitures. Cela

dépend de la forte contribution du trafic face à une imperméabilisation faible. Cela est évident en comparant avec Chassieu, ou le trafic par hectare imperméabilisé est le plus faible.

Pour les HAP, les deux sources principales pour les trois bassins sont l'usure des pneus et le dépôt atmosphérique. L'ordre d'importance des deux varie selon les bassins, mais l'incertitude des estimations empêche d'établir des priorités claires. On peut tout de même observer des dépendances des sources similaires à celles déjà remarquées : à Sucy, où le trafic par rapport à l'imperméabilisation est très fort, l'usure des pneus semble plus importante que les retombées, tandis qu'à Chassieu, où le rapport est inversé, le dépôt atmosphérique semble plus important. Pin Sec représente un cas intermédiaire. Une évaluation des flux d'HAP dans un bassin versant urbain/commercial au Havre, réalisée par Motelay-Massei et al. (2006), fait l'état d'un flux atmosphérique proche de celui que nous avons estimé (2090±830 mg/ha/y). Cependant, les auteurs suggèrent que cela ne représente que 4% du flux annuel vers les eaux pluviales – estimé à 51450±3220 mg/ha/y – beaucoup plus élevé que nos estimations totales (3500 à 6600 mg/ha/y). Ils affirment que la plupart des HAP dans les eaux pluviales provient des dépôts sur les chaussées. La valeur très élevée trouvée par Motelay-Massei et al. Peut dépendre des spécificités de leur terrain ou de la présence de sources ponctuelles, mais incite à vérifier la présence de sources diffuses non répertoriées dans cette étude.

Conclusions et perspectives

Dans cette recherche, nous avons élaboré et appliqué une méthodologie de quantification des sources primaires diffuses de la pollution des eaux pluviales urbaines. La procédure, une décomposition itérative des estimations complexes dans des estimations plus simples, n'est pas structurellement différente de celle qui est appliquée dans la plupart des SFA traitant des sources primaires de polluants. Cependant, la formulation explicite de cette procédure permet un traitement en parallèle des incertitudes, ce qui représente une amélioration significative par rapport aux études précédentes. En particulier, même si les incertitudes restent significatives au bout de l'analyse, elles sont estimées d'une manière transparente et vérifiable.

L'application a été faite sur les trois bassins versants d'INOGEV pour quatre polluants : Cu, Pb, Zn et HAP. La diversité des bassins et des données à disposition nous a portés à appliquer des procédures spécifiques de quantification à chaque bassin. En outre, en reconnaissant l'importance des accessoires métalliques présents dans les toitures, peu étudiés dans la littérature scientifique, nous les avons analysés par une méthode d'échantillonnage sur un nombre significatif de bâtiments. La difficulté et le temps demandé par cette analyse nous ont obligé à appliquer cette méthode à un seul des trois bassins, celui de Sucy-en-Brie. Les résultats de cette méthode sont quand même significatifs : particulièrement pour le plomb, dont les autres sources potentielles ont été réduites au cours des dernières années à la suite d'une réglementation stricte, ces petits éléments de toiture constituent la source principale. Même pour le cuivre, dont la présence peut être significative dans certains bassins versants, en fonction des traditions architecturales, l'apport de ces éléments peu étudiés peut devenir importante. Pour le Zn aussi les accessoires de toiture peuvent constituer une source prioritaire, même si pour ce métal des nombreuses autres sources existent. Ces observations soulignent l'importance de réaliser des recherches ultérieures sur les accessoires de toiture, en prenant en compte les différentes typologies de bâtiments et de toits.

La comparaison des trois bassins versants a montré le rôle fondamental, dans les proportions des différentes sources de polluants, du ratio trafic/surface imperméable. Cet indicateur, en effet, semble pouvoir expliquer assez bien les différences entre les différents bassins. Il nous semble qu'une étude approfondie sur la corrélation entre cet indicateur et les émissions pourrait constituer une perspective intéressante. En particulier, elle pourrait explorer l'utilité opérationnelle d'un tel indicateur pour établir des priorités d'action sur des bassins

versants pour lesquels une étude approfondie des sources n'est pas envisagée, ou bien pour définir les priorités dans la quantification des différentes sources.

Sur l'estimation des différentes sources l'ensemble des analyses réalisées a montré que, en général, l'estimation des sources relatives aux activités pourrait être améliorée par une analyse plus fine des facteurs d'émission. Pour ces sources, en effet, le calcul des « assiettes » est relativement aisé, et de nombreuses données et méthodes sont disponibles ; au contraire, les facteurs d'émissions, et particulièrement ceux concernant la pollution des eaux de ruissellement, sont peu caractérisés. Au contraire, comme nous l'avons vu, pour les sources liées à l'occupation des sols, et notamment pour les sources liées à des éléments non visibles sur les images aériennes, la quantification de l' « assiette » constitue la partie la plus complexe et incertaine. Même les facteurs d'émission nécessiteraient des analyses plus précises, mais cela passe en second plan par rapport à la quantification de ces éléments, parfois très émetteurs de polluants, qui peuvent se trouver dans les bâtiments ou dans les infrastructures. La difficulté ultérieure qui est posée par la quantification des matériaux liés à l'usage des sols est que, souvent, ils dépendent des traditions locales, et sont pour cela peu généralisables.

Bibliographie

Aatmeeyata and Sharma, M., 2010. Contribution of Traffic-Generated Nonexhaust PAHs, Elemental Carbon, and Organic Carbon Emission to Air and Urban Runoff Pollution. *J. Environ. Eng.*, 136(12), 1447–1450.

Abu-Allaban M., Gillies J.A., Gertler A.W., Clayton R., Proffitt D., 2003. Tailpipe, resuspended road dust, and brake-wear emission factors from on-road vehicles. *Atmos Environ*, 37 (2003), pp. 5283–5293

Autorité de la concurrence, 2012. Avis n° 12-A-21 du 8 octobre 2012 relatif au fonctionnement concurrentiel des secteurs de la réparation et de l'entretien de véhicules et de la fabrication et de la distribution de pièces de rechange. http://www.autoritedelaconcurrence.fr/pdf/avis/12a21.pdf

Ayrault S, Senhou A., Moskura M., Gaudry A. (2010) Atmospheric trace element concentrations in total suspended particles near Paris, France. *Atmospheric Environment* 44, 3700-3707.

Azimi S., Ludwig A., Thévenot D.R., Colin J.-L. (2003) Trace metal determination in total atmospheric deposition in rural and urban areas. *Science of the Total Environment* 308, 247– 256.

Azimi S., Rocher V., Muller M., Moilleron R., Thevenot D.R. (2005) Sources, distribution and variability of hydrocarbons and metals in atmospheric deposition in an urban area (Paris, France). *Science of the Total Environment* 337, 223– 239.

Benedetti L., Dirckx G., Bixio D., Thoeye C., Vanrolleghem P., (2006) Substance flow analysis of the wastewater collection and treatment system. *Urban water journal* 3(1), 33-42.

Becouze C., (2010) Caractérisation et estimation des flux de substances prioritaires dans les rejets urbains par temps de pluie sur deux bassins versants expérimentaux. Thèse, INSA Lyon, 308 p.

Bjorklund K. (2010) Substance flow analyses of phthalates and nonylphenols in stormwater. *Water Science & Technology* 62.5 1154-1160.

Blanchoud H., Farrugia F., Mouchel J.M. (2004). Pesticide uses and transfers in urbanised catchments. *Chemosphere*, 55, pp. 905–913.

Boonyatumanond, R. , Murakami, M. , Wattayakorn, G. , Togo, A., Takada, H., 2007. Sources of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in street dust in a tropical Asian mega-city, Bangkok, Thailand. *Sci. Total Environ.* , 384 (1–3), 420–432.

Botta F., Fauchon N., Blanchoud H., Chevreuil M., Guery B. (2012). Phyt'Eaux Cités: Application and validation of a programme to reduce surface water contamination with urban pesticides. *Chemosphere*, Volume 86, Issue 2, Pages 166-176.

Brunner, P. H. and H. Rechberger (2004) Practical hand-book of material flow analysis. CRC Press.

Budai, P. and Clement, A.: Refinement of national-scale heavy metal load estimations in road runoff based on field measurements, Transport. Res. D-Tr. E., 16, 244–250, 2011.

Burkhardt M., Zuleeg S., Vonbank R., Schmid P., Hean S., Lamani X., Bester K., Boller M. (2011). Leaching of additives from construction materials to urban storm water runoff. *Water Science and Technology*, 63, pp. 1974–1982

Cencic O. and Rechberger H. (2008). Material flow analysis wit software STAN. Journal of *Environmental Engineering and Management*, 18(1), 3-7.

Chèvre N., Guignard C., Rossi L., Pfeifer H.-R., Bader H.-P., Scheidegger R. (2011). Substance flow analysis as a tool for urban water management, *Water Science and Technology* 63.7, 1341-1348.

CITEPA (2012). National inventories of air emissions in France : organisation and methodology. 9th edition. Centre Interprofessionnel Technique d'Etudes de la Pollution Atmosphérique (CITEPA), February 2012.

Cui Q., Brandt N., Sinha R., Malmström M.E. (2010). Copper content in lake sediments as a tracer of urban emissions: Evaluation through a source–transport–storage model. *Science of The Total Environment*, 408(13), 2714-2725.

Davis, A. P.; Shokouhian, M.; Ni, S. B., 2001. Loading estimates of lead, copper, cadmium, and zinc in urban runoff from specific sources. *Chemosphere*, 44, 997.

Davis B., Birch G. (2010) Comparison of heavy metal loads in stormwater runoff from major and minor urban roads using pollutant yield rating curves. *Environmental Pollution*, *158*(8), 2541-2545.

de Leeuw F. A., van Zantvoort E. D., Sluyter R. J., & van Pul W. A. J. (2002) Urban Air Quality Assessment Model: UAQAM. Environmental Modeling and Assessment, 7(4), 243-258.

DGEMP (2006) Consommations de carburant des voitures particulières en France 1988-2005. Ministère de l'économie des finances et de l'industrie. Direction Générale de l'Énergie et des Matières Premières. Available online: www.statistiques.developpement-durable.gouv.fr/fileadmin/documents/Themes/Energies_et_climat/Consommations_par_secteur/Transport/consom_carbu_05.pdf

Denier van der Gon H.A.C., Hulskotte J.H.J., Visschedijk A.J.H., Schaap M., 2007. A revised estimate of copper emissions from road transport in UNECE-Europe and its impact on predicted copper concentrations. Atmospheric Environment, 41 (38), pp. 8697–8710

Deutsch, J.-C., Desbordes, M., 1981. Study of runoff pollution for urban planning. In : 2nd International Conference on Urban Storm Drainage, Urbana, Illinois USA, 14-19 June 1981.

Drapper D., Tomlinson R., and Williams P. (2000) Pollutant Concentrations in Road Runoff: Southeast Queensland Case Study. *Journal of Environmental Engineering*, 126(4), 313–320.

Eriksson E., Baun A., Scholes L., Ledin A., Ahlman S., Revitt M., Noutsopoulos C., Mikkelsen P.S. (2007) Selected stormwater priority pollutants — a European perspective, *Science of The Total Environment* 383(1–3), pages 41-51.

Fallahshorshani M., André M., Bonhomme C., Seigneur C. (2012) Coupling traffic, pollutant emission, air and water quality models: Technical review and perspectives. *Procedia - Social and Behavioral Sciences* 48, 1794 – 1804.

Fallah Shorshani M., Bonhomme C., Petrucci G., André M. Seigneur C. (submitted) Road traffic impact on water quality in an urban catchment (Grigny, France): a step toward integrated traffic, air and stormwater modeling. *Environmental Science and Pollution Research*.

Fenger J. (1999) Urban air quality. *Atmospheric environment*, Volume 33, Issue 29, Pages 4877–4900

Garg B.D., Cadle S.H., Mulawa P.A., Groblicki P.J., Laroo C., Parr G.A., 2000. Brake wear particulate matter emissions. *Environ Sci Technol*, 34 (21) (2000), pp. 4463–4469

Gasperi J., Sebastian C., Ruban V., Delamain M., Percot S., Wiest L., Mirande C., Caupos E., Demare D., Diallo Kessoo M., Saad M., Schwartz JJ., Dubois P., Fratta C., Wolff H., Moilleron R., Chebbo G., Cren C., Millet M., Barraud S., Gromaire MC. (*submitted*) Micropollutant contamination of urban stormwater: new insights based on an extended French dataset. *Environmental Science and Pollution Research*.

Gilbert J.K., Clausen J.C. (2006) Stormwater runoff quality and quantity from asphalt, paver, and crushed stone driveways in Connecticut. *Water Research*, Volume 40, Issue 4, Pages 826–832.

Göbel, P., Dierkes, C., & Coldewey, W. G. (2007) Storm water runoff concentration matrix for urban areas. *Journal of contaminant hydrology*, *91*(1), 26-42.

Gromaire-Mertz M. C., Garnaud S., Gonzalez A., Chebbo G. (1999) Characterisation of urban runoff pollution in Paris. *Water Science and Technology*, 39(2), 1-8.

Hansen E. and Lassen C. (2002) Experience with the Use of Substance Flow Analysis in Denmark. *Journal of industrial ecology* 6 (3-4).

Hildemann L.M., Markowski G.R., Cass G.R., 1991. Chemical-composition of emissions from urban sources of fine organic aerosol. *Environ Sci Technol*, 25 (1991), pp. 744–759.

Hjortenkrans, D. S., Bergbäck, B. G., Häggerud, A. V. (2007) Metal emissions from brake linings and tires: case studies of Stockholm, Sweden 1995/1998 and 2005. *Environmental science & technology*, *41*(15), 5224-5230.

Hulskotte J.H.J, Schaap M., Visschedijk A.J.H, 2006. Brake wear from vehicles as an important source of diffuse copper pollution. 10th International Specialised Conference on Diffuse Pollution and Sustainable Basin Management, Sep. 18-22, 2006 Istanbul, Turkey.

IGN (2009) BD TOPO. Descriptif de contenu. (BD TOPO. Content description). Version 2, Institut Géographique National (IGN), France.

INERIS (2000) Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques dans l'air ambient (HAP). Report. Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques (INERIS), Laboratoire central de surveillance de la qualité de l'air.

JCGM (2008) Evaluation of measurement data — Guide to the expression of uncertainty in measurement. Joint Committee for Guides in Metrology, Working group 1, First edition 2008, corrected version 2010, 134 p. Available online: www.bipm.org/utils/common/documents/jcgm/JCGM_100_2008_E.pdf

Joumard, André J.-M., Rapone, Zallinger, Kljun, André M., Samaras, Roujol, Laurikko, Weilenmann, Markewitz, Geivanidis, Ajtay, Paturel, 2007. Emission factor modelling and database for light vehicles (Artemis deliverable 3). Report n° LTE 0523. INRETS. June 2007

Karavalakis Georgios, Bakeas Evangelos, Fontaras Georgios, Stournas Stamos, 2011. Effect of biodiesel origin on regulated and particle-bound PAH (polycyclic aromatic hydrocarbon) emissions from a Euro 4 passenger car, Energy, Volume 36, Issue 8, August 2011, Pages 5328-5337.

Kennedy P., Gadd J., 2003. Preliminary examination of trace elements in tyres, brake pads, and road bitumen in New Zealand., Prepared for Ministry of Transport, New Zealand, Infrastructure Auckland

Kupiainen K. 2007. Road dust from pavement wear and traction sanding. Monographs of the Boreal Environment Research No. 26. Finnish environment institute, Helsinki, Finland.

Kwonpongsagoon S., Bader H.-P., Scheidegger R. (2007) Modelling cadmium flows in Australia on the basis of a substance flow analysis. *Clean Technologies and Environmental Policy*, Volume 9, Issue 4, pp 313-323.

Lamprea K., Percot S., Ruban V., Maro D., Roupsard P., Millet M. (2012) Characterization of atmospheric deposition in a small suburban catchment. *Urban Environment*, Alliance for Global Sustainability Bookseries, Vol. 19, pp. 131-140.

Lamprea D. K. (2009) Caractérisation et origine des métaux traces, hydrocarbures aromatiques polycycliques et pesticides transportés par les retombées atmosphériques et les eaux de ruissellement dans les bassins versants séparatifs périurbains. Thèse de doctorat de l'Ecole Centrale de Nantes, 295 p.

Legret M., 2001. Pollution et impact d'eaux de ruissellement de chaussées. Etudes et recherches des Laboratoires des Ponts et Chaussées. LCPC, 109 pp.

Legret M., Pagotto C., 1999. Evaluation of pollutant loadings in the runoff waters from a major rural highway. *Sci Total Environ*, 235 (1999), pp. 143–150

Lindgren, Å. 1998. Road construction materials as a source of pollutants. PhD Thesis, Division of Traffic Engineering, Luleå University of Technology, Luleå.

Luhana L., Sokhi R., Warner L., Mao H, Boulter P., McCrae I., Wright J and Osborn D., 2004. PARTICULATES - Characterisation of Exhaust Particulate Emissions from Road Vehicles, Deliverable 8, Measurement of non-exhaust particulate matter, University of Hertfordshire, College Lane, Hatfield, Herts AL10 9AB, UK, Version 2.0 – October 2004.

Luhana L., Mao H., Sokhi R., Boulter P., McRae I., Osborn D., Wright J., and Wienburg C., 2006. Source Apportionment of Traffi c-Derived PM10 and Derivation of PM10 Emission Factors for Exhaust and Non-Exhaust Road Transport Sources Based on Measurements in the Hatfi eld Road Tunnel. Geophysical Research Abstracts, Vol 8, 08128, 2006.

Malawska M. and Wilkomirski B. (2001) An Analysis of Soil and Plant (Taraxacum Officinale) Contamination with Heavy Metals and Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) In the Area of the Railway Junction Iława Główna, Poland. *Water, Air, and Soil Pollution*, Volume 127, Issue 1-4, pp 339-349.

Malmqvist, P.A., 1983. Urban Storm Water Pollutant Sources, Chalmers University, Gothenberg, as referenced by Hewitt, C.N., and Rashed, M.B. (1990) Sci. Total Environ. 93 (1) 375–384

Månsson N., Sörme L., Wahlberg C., Bergbäck B. (2008) Sources of Alkylphenols and Alkylphenol Ethoxylates in Wastewater - A Substance Flow Analysis in Stockholm, Sweden. *Water air soil pollution* 8, 445-456.

Morf, L., Buser, A., Taverna, R. (2007) Dynamic Substance Flow Analysis Model for Selected Brominated Flame Retardants as a Base for Decision Making on Risk Reduction Measures (FABRO). NRP50. Final report. 165 p. Available online at: www.geopartner.ch/upload/FABRO_2007.pdf

Morf L.S., Buser A.M., Taverna R., Bader H.-P., Scheidegger R. (2008) Dynamic Substance Flow Analysis as a Valuable Risk Evaluation Tool - A Case Study for Brominated Flame Retardants as an Example of Potential Endocrine Disrupters. *CHIMIA*, Volume 62, Number 5, pp. 424-431.

Motelay-Massei A., Garban B., larcher K. T., Chevreuil M., Ollivon, D. (2006) Mass balance for polycyclic aromatic hydrocarbons in the urban watershed of Le Havre (France): Transport and fate of PAHs from the atmosphere to the outlet. *Water Research*, 40, 1995 – 2006.

Msi Marketing Research for Industry Ltd (2006). MSI Etude : le marché des matériaux de couverture des toits en France.

Muschak W. 1990. Pollution of street runoff by traffic and local conditions. *Sci. Total Environ.* 93:419–31

Oonk H., Hulskotte J., Roovaart J., Duynhoven N van, 2005. Emissions of brake pads, emission estimations of diffuse sources (in Dutch), version March 2005.

Pagotto, C., 1999. Etude sur l'émission et le transfert dans les eaux et les sols des éléments traces métalliques et des hydrocarbures dans le domaine routier. Thèse de doctorat de l'Université de Poitiers, Discipline: chimie et microbiologie de l'eau, 316p.

Percot S. 2012. Contribution des retombées atmosphériques aux flux de polluants issus d'un petit bassin versant urbain: Cas du Pin Sec à Nantes. Thèse de doctorat de l'Ecole Centrale de Nantes, 252 p.

Robin M., 2010. La motorisation des ménages continue de s'accroître au prix d'un vieillissement du parc automobile. La Revue, décembre 2010. Ministère de l'écologie, du développement durable et de l'énergie, Commissariat général du développement durable, Service Observations et Statistiques.

Robert-Sainte P., Gromaire M. C., De Gouvello B., Saad M., Chebbo G. (2009) Annual metallic flows in roof runoff from different materials: test-bed scale in Paris conurbation. *Environmental science & technology*, *43*(15), 5612-5618.

Rogge, W. F.; Hildemann, L. M.; Mazurek, M. A.; Cass, G. R.; Simoneit, B. R. T., 1993. Sources of fine organic aerosol 0.3. Road dust, tire debris, and organometallic brake lining dust − roads as sources and sinks. *Environ. Sci. Technol.*, *27*, 1892.

Roustan Y. (2005) Modélisation de la dispersion atmosphérique du mercure, du plomb et du cadmium à l'échelle européenne. PhD thesis, École Nationale des Ponts et Chaussées, Paris, France.

Rule K. L., Comber S. D. W., Ross D., Thornton A., Makropoulos C. K., & Rautiu R. (2006) Diffuse sources of heavy metals entering an urban wastewater catchment. *Chemosphere*, 63(1), 64-72.

Sadiktsis I., Bergvall C., Johansson C., Westerholm R. (2012) Automobile Tires – A Potential Source of Highly Carcinogenic Dibenzopyrenes to the Environment. *Environmental science & technology*, *46*(6), 3326-3334.

Sanders P.G., Xu N., Dalka T.M., Maricq M.M., 2003. Airborne brake wear debris: size distributions, composition, and a comparison of dynamometer and vehicle tests. *Environ Sci Technol*, 37 (2003), pp. 4060–4069

Saporta G. (1990) Probabilités, analyse des données et statistiques. Paris, Editions technip.

Schauer C., Niessner R., and Pöschl U. (2003) Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Urban Air Particulate Matter: Decadal and Seasonal Trends, Chemical Degradation, and Sampling Artifacts. *Environmental Science and Technology*, 2003, 37 (13), pp 2861–2868.

Sellami E., de Gouvello B., Gromaire M.C., Chebbo G. (2013) Evaluation of roofing materials emissions at the city scale: Statistical approach for computing roofing area distribution. In: Novatech 2013, Lyon, 23-27/6/2013.

Shaheen D. G. (1975) Contributions of urban roadway usage to water pollution. Environmental Protection Agency Report, EPA 600/2-75-004

Sommer H., Sieker H., Jin Z., Ahlman S. (2008) Source and Flux Modelling with STORM-SEWSYS. In: 11th International Conference on Urban Drainage, Edinburgh.

Sörme L, Lagerkvist R, 2002. Sources of heavy metals in urban wastewater in Stockholm. Science of The Total Environment, Volume 298, Issues 1–3, 131-145

Sternbeck J., Sjodin A., Andréasson K. (2002) Metal emission from road traffic and the influence of resuspension-results from two tunnel studies. *Atmospheric Environment* 36, 4735-4744.

Takada H., Onda T., Ogura N., 1990. Determination of polycyclic aromatic hydrocarbons in urban street dusts and their source materials by capillary gas chromatography. *Environmental Science and Technology*, 24 (1990), pp. 1179–1186

Tangsubkul N., Moore S., Waite T.D. (2005) Incorporating phosphorus management considerations into wastewater management practice. *Environmental Science & Policy* 8, 1–15.

Terekhanova, T. A., Helm, B., Tränckner, J., & Krebs, P. (2012) IWRM decision support with material flow analysis: consideration of urban system input. *Water Science & Technology*, 66(11), 2432-2438.

Thévenot D.R., Moilleron R., Lestel L., Gromaire M.-C., Rocher V., Cambier P., Bonté P., Colin J.-L., de Pontevès C., Meybeck M. (2007) Critical budget of metal sources and pathways in the Seine River basin (1994–2003) for Cd, Cr, Cu, Hg, Ni, Pb and Zn. *Science of the total environment*, 375(1), 180-203.

Thorpe A., Harrison R. M., 2008. Sources and properties of non-exhaust particulate matter from road traffic : a review. Sci. Tot. Env. 400, 270-282

Val-de-Marne (2010) Trafic routier en Val-de-Marne, édition juin 2010. Conseil général du Val-de-Marne, observatoire des déplacements.

van Bohemen H.D. and W.H. Janssen van de Laak (2003) The Influence of Road Infrastructure and Traffic on Soil, Water, and Air Quality. *Environmental Management* Vol. 31, No. 1, pp. 50 – 68.

van der Swaluw E., Asman W.A.H., van Jaarsveld H., Hoogerbrugge R. (2011) Wet deposition of ammonium, nitrate and sulfate in the Netherlands over the period 1992–2008. *Atmospheric Environment*, Volume 45, Issue 23, Pages 3819-3826.

Van De Voorde A., Lorgeoux C., Chebbo G., Gromaire M. C. (2011) Roof maintenance impacts on roof runoff quality in France. In: Proceedings of the 12th International conference on Urban Drainage, Porto Alegre, Brazil, 10-15 September 2011.

van Metre P. C., Mahler B. J. (2003) The contribution of particles washed from rooftops to contaminant loading to urban streams. *Chemosphere*, 52(10), 1727-1741.von Uexküll O., Skerfving S., Doyle R., Braungart M., 2005. Antimony in brake pads-a carcinogenic component?, Journal of Cleaner Production, Volume 13, Issue 1, January 2005, Pages 19-31.

Wang Ya-Fen, Huang Kuo-Lin, Li Chun-Teh, Mi Hsiao-Hsuan, Luo Jih-Haur, Tsai Perng-Jy, Emissions of fuel metals content from a diesel vehicle engine, Atmospheric Environment, Volume 37, Issue 33, October 2003, Pages 4637-4643.

WEAREM, 2010. Wear particles from road traffic - a field, laboratory and modelling study. Final report. IVL Swedish Environmental Research Institute Ltd. http://www20.vv.se/fud-resultat/Publikationer_000801_000900/Publikation_000871/WEAREM%20Final%20Report%20June%202010.pdf

Westerlund K-G., 2001. Metal emissions from Stockholm traffic- wear of brake linings. Report 3:2001. www.slb.mf.stockholm.se/slb/rapporter/pdf/metal_emissions2001.pdf

Westerlund C. (2007) Road runoff quality in cold climates. PhD thesis. Lulea University of Technology.

WG-AEN, 2006. Good Practice Guide for Strategic Noise Mapping and the Production of Associated Data on Noise Exposure, Final draft, version 2. European Commission Working Group Assessment of Exposure to Noise (WG-AEN), 13th January 2006.

Wik A., Dave G., 2009. Occurrence and effects of tire wear particles in the environment – A critical review and an initial risk assessment. *Env. Poll*. 157, 1-11.

Wittmer I.K., Bader H.P., Scheidegger R., Singer H., Lück A., Hanke I., Carlsson C., Stamm C. (2010) Significance of urban and agricultural land use for biocide and pesticide dynamics in surface waters. *Water Research*, 44 (9), pp. 2850–2862.

Yang H.H., Chiang C.F., Lee W.J., Hwang K.P., Wu E.M.Y. (1999) Size distribution and dry deposition of road dust PAHs. *Environment International*, *25*(5), 585-597.

Ying Q., Lu J., Kleeman M. (2009) Modeling air quality during the California Regional PM10/PM2.5 Air Quality Study (CPRAQS) using the UCD/CIT source-oriented air quality model – Part III. Regional source apportionment of secondary and total airborne particulate matter. *Atmospheric Environment*, Volume 43, Issue 2, Pages 419-430.