



# Thèse de doctorat de l'École Nationale des Ponts et Chaussées

Présentée et soutenue publiquement le 3 février 2017

**Nicolas Cherin**

pour l'obtention du titre de docteur

de l'Université Paris-Est

Spécialité : Sciences et techniques de l'environnement

---

## Caractérisation des sources de polluants atmosphériques et de leurs dépôts sur les bassins versants urbains

---

Jury composé de

|                                   |                       |                       |
|-----------------------------------|-----------------------|-----------------------|
| D <sup>r</sup> Denis Maro         | IRSN, LRC             | rapporteur            |
| D <sup>r</sup> Valéry Masson      | CNRM-GAME, GMMETURBAU | rapporteur            |
| D <sup>r</sup> Véronique Ruban    | IFSTTAR, GERS - EE    | examinatrice          |
| P <sup>r</sup> Isabelle Coll      | UPEC, LISA            | examinatrice          |
| Olivier Perrussel                 | Airparif              | invité                |
| P <sup>r</sup> Christian Seigneur | ENPC, CEREА           | directeur de thèse    |
| D <sup>r</sup> Yelva Roustan      | ENPC, CEREА           | co-encadrant de thèse |

## Résumé

”[L]a pollution de l’air [fait] peser une menace importante sur le plan sanitaire partout dans le monde.” L’OMS estime ainsi que, pour l’année 2012 (OMS, 2014), plus de 3,7 millions de décès prématurés dans le monde seraient imputables à la seule pollution de l’air, dont près de 70% surviendraient en ville.

Pourtant la connaissance du dépôt sec, particulièrement en milieu urbain, reste très parcel-laire.

L’objet de ce travail de thèse vise à améliorer la compréhension des mécanismes de dépôts atmosphériques en milieu urbain. Historiquement, les dépôts atmosphériques ont été étudiés et modélisés sur des couverts végétaux, plan d’eau ou surface nue, et ce afin d’évaluer, notamment, l’impact sur les écosystèmes des dépôts acides, ou encore de l’eutrophisation. Or, le milieu urbain est caractérisé par une géométrie complexe, et des surfaces variées. Par conséquent, ces modèles de dépôts atmosphériques peuvent ne pas convenir pour simuler les flux de dépôts dans les zones urbaines.

Le modèle développé dans cette thèse est un modèle à longueur de mélange. Ces travaux se sont attelés à prendre en compte les principaux processus qui prennent place au sein de la canopée urbaine en modifiant la longueur de mélange et en la rendant dépendante des caractéristiques morphologiques de la ville. Aussi, le profil des vitesses de vent moyen est directement impacté par ce changement de longueur de mélange. Par conséquent, ce nouveau modèle offre la possibilité de calculer les dépôts secs en milieu urbain en fonction de quelques paramètres représentant les principales caractéristiques de la canopée urbaine (hauteur moyenne des bâtiments, largeur moyenne des rues, densité du bâti).

## Mots-clés

pollution de l’air, dépôt sec, modèle canopée urbaine

# Modelling atmospheric deposition flux of Cadmium and Lead in urban areas

## Abstract

According to WHO, air pollution is responsible for more than 3.7 million premature deaths each year (OMS, 2014). Moreover, among these deaths, more than 70% within urban areas.

Consequently, the health and environmental impacts of pollutants within these urban areas are of great concern in air quality studies. The deposition fluxes of air pollutants, which can be significant near sources of pollution, have rarely been modeled within urban areas.

Historically, atmospheric deposition studies have focused mostly on remote areas to assess the potential impacts on ecosystems of acid deposition and nitrogen loading. Therefore, current atmospheric deposition models may not be suitable to simulate deposition fluxes in urban areas, which include complex surface geometries and diverse land use types.

Atmospheric dry deposition is typically modeled using an average roughness length, which depends on land use. This classical roughness-length approach cannot account for the spatial variability of dry deposition in complex settings such as urban areas. Urban canopy models have been developed to parametrise momentum and heat transfer. We extend this approach here to mass transfer, and a new dry deposition model based on the urban canyon concept is presented. It uses a local mixing-length parametrisation of turbulence within the canopy, and a description of the urban canopy via key parameters to provide spatially distributed dry deposition fluxes. This approach provides spatially distributed dry deposition fluxes depending on surfaces (streets, walls, roofs) and flow regimes (recirculation and ventilation) within the urban area.

## Keywords

urban environment, air pollution, dry deposition, urban canopy model

## Remerciements

Je tiens à remercier en premier lieu mon directeur de thèse, M. Christian Seigneur, ainsi que mon encadrant M. Yelva Roustan sans qui cette thèse n'aurait pu aboutir. Merci encore à M. Luc Musson-Genon pour ses avis scientifiques particulièrement pertinents et pour m'avoir pointé des articles scientifiques qui ont considérablement enrichi ma réflexion.

Je remercie par ailleurs Mme Véronique Ruban, Mme Isabelle Coll, M. Denis Maro, M. Valéry Masson et M. Olivier Perrussel, pour avoir accepté de participer à mon jury et d'avoir évalué ce travail de thèse.

Je tenais aussi à remercier tous les participants du projet INOGEV, tout particulièrement MM. Denis Maro et Pierre Rouspard pour les discussions modèle-mesure enrichissantes qui m'ont permis de voir certaines thématiques sous un jour nouveau.

Je voulais aussi remercier mes collègues du CEREА pour leur contribution scientifique, mais aussi, pour être tout à fait honnête, pour les parties endiablées de Laser Game et de tarot.

Enfin je voulais remercier ma famille. Tout particulièrement mon père et ma mère pour m'avoir encouragé dans les moments où la motivation pouvait faiblir. Et finalement, je ne pouvais pas ne pas remercier celle qui partage ma vie depuis tant de temps. Merci Noémie pour ton soutien sans faille, pour toutes tes petites attentions qui m'ont permis d'aller au bout malgré les moments difficiles.

# Table des matières

|  |           |
|--|-----------|
| <b>Introduction</b>  | <b>1</b>  |
| <b>Émissions atmosphériques du plomb et du cadmium</b>               | <b>5</b>  |
| <b>1 Notions générales</b>   | <b>5</b>  |
| 1.1 Inventaire et cadastre d'émissions atmosphériques . . . . .      | 5         |
| 1.2 Origines du plomb et du cadmium . . . . .                        | 7         |
| 1.2.1 Sources anthropiques du plomb . . . . .                        | 7         |
| 1.2.2 Sources anthropiques du cadmium . . . . .                      | 9         |
| 1.2.3 Sources naturelles de plomb et de cadmium . . . . .            | 11        |
| <b>2 Réalisation d'un cadastre des émissions atmosphériques</b>      | <b>12</b> |
| 2.1 Spatialisation . . . . .   | 12        |
| 2.1.1 Choix du cadastre original . . . . .                           | 12        |
| 2.1.2 Émissions des Grandes Sources Ponctuelles (GSP) . . . . .      | 14        |
| 2.1.3 Méthodologie générale de désagrégation . . . . .               | 15        |
| 2.1.4 Clés de répartition utilisées pour les secteurs GNFR . . . . . | 16        |
| 2.1.5 Émissions naturelles . . . . .                                 | 24        |
| 2.2 Distribution temporelle . . . . .                                | 24        |
| 2.2.1 Émissions anthropiques . . . . .                               | 25        |
| 2.2.2 Émissions naturelles . . . . .                                 | 25        |
| 2.3 Comparaison aux cadastres d'Airparif . . . . .                   | 27        |
| 2.3.1 Description des données Airparif . . . . .                     | 27        |
| 2.3.2 Résultats pour le cadmium . . . . .                            | 29        |
| 2.3.3 Résultats pour le plomb . . . . .                              | 33        |
| 2.3.4 Conclusion . . . . .   | 34        |
| <b>Modélisation du dépôt sec</b>                                     | <b>37</b> |
| <b>3 Cadre général de la modélisation du dépôt sec</b>               | <b>37</b> |
| 3.1 Cadre théorique de l'écoulement réactif . . . . .                | 37        |
| 3.2 Modélisation du dépôt sec . . . . .                              | 39        |
| 3.2.1 Revue historique et phénoménologie . . . . .                   | 39        |
| 3.2.2 Sédimentation . . . . .  | 40        |
| 3.2.3 Résistance de surface . . . . .                                | 41        |
| 3.2.4 Adaptation de la résistance de surface . . . . .               | 44        |

|          |   |           |
|----------|---|-----------|
| 3.2.5    | Expression classique de la résistance aérodynamique . . . . .             | 46        |
| <b>4</b> | <b>Modélisation de la résistance aérodynamique au sein de la canopée</b>  | <b>54</b> |
| 4.1      | Model description . . . . .   | 55        |
| 4.1.1    | Urban canopy model . . . . .  | 55        |
| 4.1.2    | Parametrisation of turbulence within the urban canopy . . . . .           | 56        |
| 4.1.2.1  | Urban mixing length . . . . .   | 58        |
| 4.1.2.2  | Wind profile . . . . .  | 59        |
| 4.2      | Dry deposition flux . . . . .   | 61        |
| 4.2.1    | Fluxes between the bulk atmosphere and the canyon . . . . .               | 63        |
| 4.2.2    | Fluxes between the canyon and urban surfaces . . . . .                    | 64        |
| 4.2.3    | Flux between the bulk atmosphere and the building roofs . . . . .         | 65        |
| 4.2.4    | Closure on the pollutant concentration within the canyon . . . . .        | 65        |
| 4.2.5    | Overall dry deposition . . . . .  | 65        |
| 4.3      | Results . . . . .   | 66        |
| 4.3.1    | Evaluation by comparison with observations . . . . .                      | 66        |
| 4.3.2    | Base simulation . . . . .   | 67        |
| 4.3.3    | Total flux over urban surfaces . . . . .                                  | 68        |
| 4.3.4    | Influence of building density . . . . .                                   | 69        |
| 4.3.5    | Other sensitivity tests . . . . .   | 70        |
| 4.3.5.1  | Coefficient $\alpha$ of the displacement height . . . . .                 | 73        |
| 4.3.5.2  | Characteristic recirculation length $W_r$ . . . . .                       | 73        |
| 4.3.5.3  | Threshold $z_{\text{limit}}$ . . . . .                                    | 74        |
| 4.3.5.4  | Attenuation coefficient $\beta$ of the exponential wind profile . . . . . | 74        |
| 4.4      | Conclusion . . . . .  | 75        |
|          | <b>Mise en place des simulations et comparaison aux observations</b>      | <b>77</b> |
| <b>5</b> | <b>Modélisation et comparaison aux mesures</b>                            | <b>77</b> |
| 5.1      | Définitions des domaines étudiés . . . . .                                | 78        |
| 5.2      | Données d'entrée du modèle . . . . .                                      | 79        |
| 5.2.1    | Occupation des sols . . . . .   | 80        |
| 5.2.2    | Conditions aux limites et initiales . . . . .                             | 80        |
| 5.2.3    | Données météorologiques . . . . .   | 81        |
| 5.2.4    | Données urbaines . . . . .  | 82        |
| 5.3      | Configuration du modèle POLAIR3D . . . . .                                | 84        |
| 5.3.1    | Représentation des particules métalliques dans POLAIR3D . . . . .         | 84        |
| 5.3.2    | Distribution des émissions par classe de taille . . . . .                 | 84        |
| 5.3.3    | Représentation des processus de dépôt . . . . .                           | 84        |
| 5.4      | Comparaison aux mesures . . . . .   | 85        |
| 5.4.1    | Indicateurs statistiques utilisés . . . . .                               | 87        |
| 5.4.2    | Mesures du NILU . . . . .   | 88        |
| 5.4.2.1  | Concentrations atmosphériques . . . . .                                   | 88        |
| 5.4.2.2  | Dépôt humide . . . . .  | 90        |
| 5.4.2.3  | Conclusion . . . . .  | 91        |
| 5.4.3    | Mesures du projet INOGEV . . . . .  | 93        |
| 5.4.3.1  | Concentrations atmosphériques . . . . .                                   | 93        |
| 5.4.3.2  | Dépôt sec . . . . .   | 94        |

|          |  |            |
|----------|--|------------|
| 5.4.3.3  | Dépôt humide . . . . .   | 96         |
| 5.4.3.4  | Conclusion . . . . .   | 97         |
| 5.5      | Contributions locale/régionale . . . . .   | 97         |
| 5.5.1    | Dépôt humide . . . . .   | 101        |
| 5.5.2    | Dépôt sec . . . . .  | 102        |
| 5.5.3    | Conclusion . . . . .   | 103        |
| 5.6      | Conclusion . . . . .   | 104        |
| <b>6</b> | <b>Conclusion</b>  | <b>105</b> |
| 6.1      | Inventaire d'émissions . . . . .   | 105        |
| 6.2      | Modélisation de la résistance aérodynamique au sein de la canopée urbaine . . .    | 106        |
| 6.3      | Comparaison aux mesures . . . . .  | 107        |
| 6.3.1    | Mesures du NILU . . . . .  | 107        |
| 6.3.2    | Mesures du projet INOGEV . . . . .   | 107        |
| 6.3.3    | Conclusion . . . . .   | 108        |
| <b>A</b> | <b>Grille EMEP</b>   | <b>109</b> |
| <b>B</b> | <b>Liste des émissions suspectes</b>   | <b>111</b> |
| <b>C</b> | <b>Paramètres du modèle de Zhang et al. (2001)</b>                                 | <b>112</b> |
| <b>D</b> | <b>Comparaisons des résultats du modèle aux données d'observations</b>             | <b>113</b> |
| D.1      | Comparaison aux données NILU pour les concentrations dans l'air . . . . .          | 113        |
| D.1.1    | Statistiques pour le cadmium . . . . .   | 113        |
| D.1.2    | Statistiques pour le plomb . . . . .   | 119        |
| D.2      | Comparaison aux données NILU pour les flux de dépôt humides . . . . .              | 125        |
| D.2.1    | Statistiques pour le cadmium . . . . .   | 125        |
| D.2.2    | Statistiques pour le plomb . . . . .   | 131        |
| <b>E</b> | <b>Géomatique</b>  | <b>137</b> |
| E.1      | Géoïde . . . . .   | 137        |
| E.2      | Les systèmes de coordonnées . . . . .  | 138        |
| E.2.1    | Coordonnées cartésiennes . . . . .   | 138        |
| E.2.2    | Coordonnées géographiques . . . . .  | 138        |
| E.2.3    | Coordonnées cartographiques ou planes . . . . .                                    | 138        |
| E.3      | La projection cartographique . . . . .   | 138        |
| <b>F</b> | <b>Catégories de la base de données CLC 2006 correspondant aux terres arables.</b> | <b>140</b> |
| <b>G</b> | <b>Dry deposition flux for particles</b>   | <b>142</b> |
|          | <b>Bibliographie</b>   | <b>143</b> |

# Introduction

Comme le rappelle l'Organisation Mondiale de la Santé (OMS) dans son rapport (OMS, 2005), un grand nombre d'espèces chimiques sont émises dans l'air, qu'elles soient d'origine naturelle (émissions par la végétation, les volcans, les océans...), ou bien d'origine anthropique (émissions d'activités industrielles, trafic automobile, chauffage...). Même si les débuts de la pollution d'origine humaine peuvent être datés à la domestication du feu dès la préhistoire, les premières traces concrètes remontent à l'Antiquité, période où la métallurgie du cuivre, puis du plomb (dont l'intoxication aiguë ou chronique est une maladie connue sous le nom de saturnisme, en référence au dieu Saturne) se sont développées. Mais c'est au XIX<sup>ème</sup> siècle que la pollution atmosphérique s'est intensifiée de façon massive. De prime abord conjointement à l'utilisation de combustible fossile dans le secteur industriel, puis à l'intensification de l'usage des combustibles tant fossile que d'origine végétale menant à de sinistres épisodes tel le *Big Smoke* de Londres en 1952, responsable de plus de 12 000 morts (Bell et Davis, 2001).

L'OMS a ainsi déclaré que, "le fait de respirer de l'air pur est considéré comme une condition essentielle de la santé et du bien-être de l'homme. Cependant la pollution de l'air continue de faire peser une menace importante sur le plan sanitaire partout dans le monde." Elle estime que, pour l'année 2012 (OMS, 2014), plus de 3,7 millions de décès prématurés auraient été causés dans le monde par la seule pollution ambiante de l'air dans les zones urbaines et rurales. Selon ces estimations, près de 70% des décès liés à la pollution aux particules respirables (dites PM<sub>10</sub> pour Particulate Matter, dont le diamètre aérodynamique n'excède pas 10 µm) surviendraient en ville, pour l'année 2008 (OMS, 2011).

De nombreux pays se sont dotés de lois sur l'air (Clean Air Acts de 1956 et 1968 en Angleterre, Loi sur l'air et l'utilisation rationnelle de l'énergie en France en 1996, etc...), ce à quoi se rajoute un certain nombre de textes au niveau européen comme la Directive n° 2008/50/CE (JO de l'Union Européenne, 2008) concernant la qualité de l'air ambiant et un air pur pour l'Europe, dite directive cadre sur l'air. En droit français, le Décret n° 2010-1250 du 21/10/2010 relatif à la qualité de l'air transpose cette dernière directive européenne. L'article R. 221-1, I, 3° du Code de l'environnement définit le "niveau de polluant atmosphérique, [comme] la concentration d'un polluant dans l'air ambiant ou la masse de son dépôt sur les surfaces en un temps donné". Les polluants atmosphériques peuvent en effet se déposer sur les surfaces qu'elles soient naturelles ou artificielles. Il est important de caractériser les flux de dépôt non seulement pour leur impact sur les concentrations atmosphériques mais également pour leur impact sur la contamination des surfaces. Les flux de dépôt sont couramment considérés de deux sortes : ils sont dits "humides" lorsqu'ils font intervenir l'eau atmosphérique (précipitations, brouillard, etc...) et "secs" en son absence.

À l'heure où près de 80% de la population en Europe, en Amérique du Nord et au Japon (Oleson *et al.*, 2008) vit dans des zones urbaines la connaissance du dépôt sec en milieu urbain reste très parcellaire. En effet, il s'avère que le dépôt sec a jusqu'à présent été très peu étudié dans le milieu urbain. Les données existantes sont peu, voire non documentées, sans mise en parallèle



avec les caractéristiques des surfaces, ou les données météorologiques (Fowler *et al.*, 2009; Maro, 2012).

Cette thèse s’inscrit dans le cadre du projet Innovations pour une gestion durable de l’eau en ville (INOGEV) qui a été piloté par l’Institut Français des Sciences et Technologies des Transports, de l’Aménagement et des Réseaux (IFSTTAR) et financé en partie par l’Agence nationale de la recherche (ANR) dans le cadre du programme “Villes durables”. Le projet INOGEV traite de la gestion des flux de polluants dans l’environnement urbain et notamment dans l’eau. Il se propose de quantifier les flux de micro-polluants dans les différents compartiments (atmosphère, dépôts sur les surfaces urbaines, exutoire des bassins versants) ainsi que préciser leur origine, de manière à mieux les modéliser, sur trois bassins versants urbains :

- à Sucy-en-Brie (94370, Val-de-Marne, Île-de-France)
- au Pin Sec (Nantes, 44100, Loire-Atlantique, Pays de la Loire)
- à Chassieu (69680, Rhône, Rhône-Alpes)

En visant à améliorer les connaissances sur les flux atmosphériques des polluants en milieu urbain, les travaux de cette thèse contribuent donc à parvenir à l’objectif visé par le projet INOGEV. Ils s’attachent tout particulièrement à la modélisation du dépôt sec qui est l’un des principaux points d’entrée des polluants atmosphériques particuliers dans les bassins versants urbanisés, via les surfaces (toitures, murs et sols) avant leur lessivage par les pluies, leur transfert dans les eaux de ruissellement et à l’exutoire des bassins versants.

## Polluants considérés

Soixante-dix-sept polluants (métaux, hydrocarbures aromatiques polycycliques, pesticides, alkylphénols, polybromodiphényléthers...) ont été initialement sélectionnés dans le spectre d’étude du projet INOGEV. Parmi ceux-ci, seuls deux métaux lourds, le cadmium (Cd) et le plomb (Pb) ont été retenus dans la présente étude du fait de leur nature particulière et de la disponibilité des données sur le large domaine étudié. La réduction des émissions atmosphériques de ces deux composés est visée par le protocole d’Aarhus (CEE - NU, 1998), signé en juin 1998 dans le cadre de la Convention sur la Pollution Atmosphérique Transfrontalière à Longue Distance (CPATLD). En effet, leur temps de séjour dans l’atmosphère peut aller jusqu’à plusieurs semaines, rendant ces polluants capables d’impacter les écosystèmes distants de plusieurs milliers de kilomètres de la source d’émissions. Par ailleurs, la non-dégradation de ces polluants engendre leur bioaccumulation, qui peut être nocive au vu de leur toxicité avérée. Même si les politiques de lutte contre la pollution ont limité drastiquement les rejets de métaux lourds, cette accumulation à long terme peut engendrer des effets nocifs sur la santé (Mench et Baize, 2004). Des directives européennes plus spécifiques, concernant le plomb et le cadmium, ont été rédigées :

- pour le plomb, la directive n° 1999/30/CE du 22 avril 1999 fixe une valeur limite annuelle de  $500 \text{ ng.m}^{-3}$ ,
- pour le cadmium, la directive n° 2004/107/CE du 15 décembre 2004 fixe une valeur limite annuelle de  $5 \text{ ng.m}^{-3}$ .

Le plomb rejeté dans l’atmosphère se retrouve principalement sous forme inorganique adsorbé sur les particules atmosphériques (INERIS, 2010). Le temps de séjour dans l’atmosphère du plomb dépend d’ailleurs de ces particules porteuses (temps typiquement compris entre une journée et une semaine). L’intoxication causée à long terme par le plomb est communément

appelée “saturnisme”. Elle peut avoir des effets sur les systèmes nerveux, hématopoïétique<sup>1</sup> et cardio-vasculaire. À forte dose, le plomb provoque des troubles neurologiques, hématologiques et rénaux. Il peut notamment entraîner chez l’enfant, plus vulnérable que l’adulte, des troubles du développement cérébral, avec des perturbations psychologiques et des difficultés d’apprentissage scolaire. Le Centre International de Recherche sur le Cancer (CIRC) a par ailleurs classé le plomb et ses dérivés inorganiques comme potentiellement cancérigène pour l’homme.

Tout comme le plomb, le cadmium est généralement associé aux particules fines (PM<sub>2.5</sub>), entraînant un temps de séjour de l’ordre de la journée ou de la semaine, et pouvant ainsi être transporté sur de longues distances. Chez l’homme, le cadmium provoque essentiellement des problèmes rénaux. De plus, il a été classé par le CIRC parmi les matériaux cancérigènes pour l’homme.

## Plan de thèse

Afin de répondre à cette problématique, ce manuscrit est divisé en trois parties.

La première se concentre sur la quantification des émissions atmosphériques des polluants considérés :

- Le chapitre 1 permet d’introduire les principales origines de ces émissions.
- Le chapitre 2 décrit la construction d’un cadastre d’émissions (spatialisation et temporalisation) compatible avec les échelles étudiées, et son évaluation à l’aide d’une comparaison à l’inventaire aimablement mis à disposition par Airparif.

La seconde partie de ces travaux s’intéresse à la modélisation du dépôt sec en milieu urbain :

- Le chapitre 3 s’attelle à la mise en place du cadre théorique de la modélisation d’un écoulement atmosphérique, et plus particulièrement à la modélisation du dépôt sec.
- Dans le chapitre 4, une modélisation de la résistance aérodynamique en milieu urbain est développée. Cette partie a fait l’objet d’une publication (Cherin *et al.*, 2015) dans la revue à comité de lecture *Geoscientific Model Development*.

Enfin la troisième et dernière partie se focalise sur la mise en oeuvre d’un modèle de chimie-transport pour la réalisation de simulations de la dispersion atmosphérique du plomb et du cadmium. Elle se compose du chapitre 5 qui traite des comparaisons modèle/mesure réalisées, ainsi que des intercomparaisons entre le modèle classique de dépôt sec par rugosité et le modèle de dépôt en milieu urbain introduit dans la partie précédente.

---

1. responsable de la production des éléments cellulaires du sang, comme la moelle osseuse

# Émissions atmosphériques du plomb et du cadmium

# Chapitre 1

## Notions générales

### 1.1 Inventaire et cadastre d'émissions atmosphériques

La qualité de l'air, interprétée ici comme la résultante des concentrations atmosphériques en polluant, découle du croisement de processus souvent couplés : facteurs météorologiques, géographiques, émissions et transport de polluants, etc... La quantifier implique de disposer, avec une connaissance la plus précise possible, des émissions atmosphériques des polluants que l'on souhaite suivre qu'elles soient d'origines anthropique ou naturelle.

Pour ce qui nous concerne ici, un inventaire d'émission d'une substance polluante (ou précurseur) est une évaluation d'une quantité émise dans l'atmosphère (typiquement exprimée en unité de masse) pour une zone géographique et une période de temps. On utilise le terme de cadastre d'émissions pour parler d'un inventaire d'émissions distribué spatialement et temporellement. En plus de l'inventaire d'émissions, il est donc nécessaire de définir un référentiel spatial et éventuellement une résolution spatiale du cadastre. L'utilisation d'un cadastre est indispensable pour obtenir, par le biais d'un modèle de chimie-transport, une évaluation spatialisée des concentrations atmosphériques résultantes.

La réalisation d'un inventaire d'émissions, et a fortiori d'un cadastre, passe avant tout par le recensement des sources d'émissions atmosphériques. Celles-ci peuvent être d'origines très diverses et leur intensité peut dépendre de facteurs aussi variés que les conditions météorologiques, la densité de population, les conditions de trafic des axes routiers, le type d'équipement de dépollution mis en place, etc... Cette diversité rend l'évaluation des émissions atmosphériques et donc l'élaboration d'inventaire extrêmement complexe. Pour traiter cette complexité les sources d'émissions atmosphériques sont généralement classées selon des nomenclatures établies sur la base de critères de natures différentes selon l'objectif auquel doit répondre l'inventaire. Un exemple classique est l'utilisation d'un critère morphologique :

- sources ponctuelles : ce sont généralement de gros émetteurs stationnaires (un incinérateur par exemple). Ces émissions sont concentrées en un seul "point" dont on connaît précisément la position.
- sources linéiques : c'est le mode de représentation des sources mobiles sur un réseau (de routes, de voie ferrées, etc...). L'ensemble du trafic émet des polluants le long des axes de circulation dont on connaît la localisation. Pour un élément constituant le réseau (e.g. un tronçon de route pour un réseau routier) les émissions afférentes y sont réparties uniformément.

- sources surfaciques : c'est la catégorie employée pour les sources effectivement de nature surfacique diffuse (massif forestier, champs agricole...). Ce choix de morphologie peut aussi résulter d'un manque d'informations pertinentes sur la spatialisation (comme par exemple pour le trafic automobile sur le réseau routier secondaire).

Des nomenclatures reposant sur des secteurs d'activité économique sont également largement utilisées. Dans le contexte de ce travail, plusieurs de ces nomenclatures ont été manipulées :

1. La nomenclature SNAP ("Selected Nomenclature for Air Pollution") est la nomenclature utilisée dans l'inventaire CORE INventory AIR emissions (CORINAIR), qui désigne aussi le programme développé depuis 1989 par l'Agence Européenne pour l'Environnement (AEE).
2. La nomenclature NFR ("Nomenclature For Reporting") de la Commission Économique des Nations Unies pour l'Europe (CEE-NU ou encore UNECE pour United Nations Economic Commission for Europe) qui était encore il y a peu le format de restitution des inventaires d'émissions au niveau des instances européennes.
3. Depuis 2009 le Programme concerté de surveillance continue et d'évaluation du transport à longue distance des polluants atmosphériques en Europe (EMEP pour European Monitoring and Evaluation Programme) utilise la nomenclature Gridding NFR (GNFR, ou NND pour Nomenclature de Notification des Données).

Les informations relatives aux facteurs influençant les émissions individuelles de la multitude de sources intégrées dans un inventaire ne sont pas disponibles en tout lieu et à tout moment. La réalisation d'un inventaire d'émissions fait donc appel à des traitements de données géostatistiques permettant l'évaluation la plus réaliste possible des émissions. La réalisation d'un inventaire s'appuie généralement sur un ensemble de méthodes soit ascendantes (dites "bottom-up"), soit descendantes (dites "top-down").

Dans le cadre d'une approche ascendante on part d'une description détaillée pour aboutir à une image finale globale. Pour un cadastre d'émissions elle repose sur une revue exhaustive, à un niveau de classification fin, des différentes sources d'émissions et permet un traitement différencié et potentiellement mieux adapté à chaque classe de source. Ce type d'approche se heurte cependant à plusieurs difficultés : elle requiert par nature la manipulation d'un grand nombre d'informations ; l'accès aux informations élémentaires nécessaires peut s'avérer difficile ; l'incertitude sur chaque donnée, cumulée, peut amener à des erreurs importantes, sans toujours la possibilité de les évaluer.

Une approche descendante vise, partant d'une information agrégée représentant la résultante d'un ensemble, à le décomposer en éléments plus détaillés. Pour un cadastre d'émissions la décomposition se fait en utilisant des clés de répartition ou de désagrégation afin d'obtenir des informations à des échelles spatiales ou temporelles plus fines. La difficulté est ici de trouver des clés de répartition qui soient pertinentes pour les classes de source que l'on considère et cohérentes avec les échelles que l'on souhaite représenter.

L'évaluation des incertitudes associées aux émissions de polluants est extrêmement difficile à mener. Elle dépend avant tout de la nature de la source, du polluant et de la représentation des phénomènes physiques et/ou chimiques à l'origine des émissions. Selon le rapport OMINEA du Centre Interprofessionnel Technique d'Études de la Pollution Atmosphérique (CITEPA, 2012), l'incertitude des émissions de métaux lourds liées à l'utilisation de combustibles est faible, de l'ordre de 5%, car il est aisé de recouper les calculs des émissions par des bilans matières. Pour les autres secteurs anthropiques, les incertitudes peuvent atteindre plus de 100%. Le groupe de travail de l'EMEP sur les incertitudes des inventaires d'émissions (EMEP/TFMM/TFEIP Workshop, Dublin, Octobre 2007) rapporte des incertitudes estimées par des experts nationaux

concernant les métaux lourds variant entre 25% (Finlande) et 260% (Danemark). Ce à quoi on peut rajouter les incertitudes générées par la manipulation de données d'origines très diverses ce qui peut être source d'erreur lors du croisement des différentes bases de données géolocalisées.

## 1.2 Origines du plomb et du cadmium

Dans ce qui suit la nomenclature SNAP est utilisée pour décrire l'origine des émissions de plomb et de cadmium. Au premier niveau de détail cette nomenclature comporte 11 secteurs d'activité définis tel que :

| code    | secteur d'activité émetteur  |
|---------|--|
| SNAP 1  | combustion dans les industries de l'énergie et de la transformation de l'énergie |
| SNAP 2  | combustion hors industrie  |
| SNAP 3  | combustion dans l'industrie manufacturière                                       |
| SNAP 4  | procédés de production   |
| SNAP 5  | extraction et distribution de combustibles fossiles et énergie géothermique      |
| SNAP 6  | utilisation de solvants et autres produits                                       |
| SNAP 7  | transport routier  |
| SNAP 8  | autres sources mobiles et machines   |
| SNAP 9  | traitement et élimination des déchets  |
| SNAP 10 | agriculture et sylviculture  |
| SNAP 11 | autres sources et puits (origines naturelle)                                     |

### 1.2.1 Sources anthropiques du plomb

Les émissions anthropiques de plomb ont subi un profond changement durant ces dernières décennies, notamment depuis l'utilisation de l'essence sans plomb. Les rejets atmosphériques ont drastiquement diminué de 93% dans la région EMEP<sup>1</sup> passant de 19 800 à 1 180 tonnes émises entre 1990 et 2010.

En France, selon le CITEPA, le secteur du transport routier, responsable de 91% des rejets atmosphériques en 1990 avec 4 200 tonnes émises, a vu sa contribution fortement réduite jusqu'à 22% en 2000 avec 65 tonnes émises. Cette contribution relative ré-augmente depuis du fait de la stagnation des émissions de ce secteur et de la décroissance de celles des autres secteurs. Le transport routier représente près de 49% des émissions totales de plomb selon les estimations du CITEPA pour l'année 2013. C'est l'industrie manufacturière qui était le second secteur émetteur de plomb avec plus de 35% des émissions totales.

Pour comparaison, nous avons extrait des données d'émissions de l'EMEP (voir Section 2.1) pour le plomb concernant la France et l'Union Européenne (voir Figure 1.1) pour l'année 2010. Pour la France, les résultats sont sensiblement les mêmes que ceux du CITEPA pour l'année 2013 (42% des émissions totales pour le secteur du transport routier, tandis que le secteur industriel est responsable de près de 39% du total des émissions). Quant aux émissions dans l'Union Européenne, le paysage est assez différent, notamment au niveau des émissions du transport routier (SNAP 7), qui ne représentent que 15% des émissions totales. L'industrie manufacturière (SNAP 3 et 4), quant à elle, émet plus de 51% des émissions totales de plomb.

Les émissions anthropiques totales de plomb rapportées par l'EMEP sont représentées dans la Figure 1.2. On peut voir que le spectre des sources des émissions diffèrent selon les pays.

1. Autriche, Belgique, Biélorussie, Bulgarie, Chypre, Danemark, Espagne, Estonie, Finlande, France, Hongrie, Italie, Lituanie, Lettonie, Monaco, Norvège, Pays-bas, République de Moldavie, République Tchèque, Royaume-Uni, Slovaquie, Slovénie, Suède, Suisse

Cependant, le secteur du transport routier reste une source importante de plomb dans la plupart des pays de l'EMEP. Plus encore, le secteur industriel est la source majeure de plomb dans l'ensemble des pays de la zone EMEP.

Autre information intéressante, la France est l'un des pays les plus émetteurs de la zone mais derrière la Pologne, l'Italie, le Portugal, l'Allemagne, l'Espagne et l'Ukraine. Elle est donc entourée de pays particulièrement émetteurs de plomb à ses frontières, qui peuvent avoir un impact non négligeable sur les concentrations de certaines régions françaises proches de ces frontières.

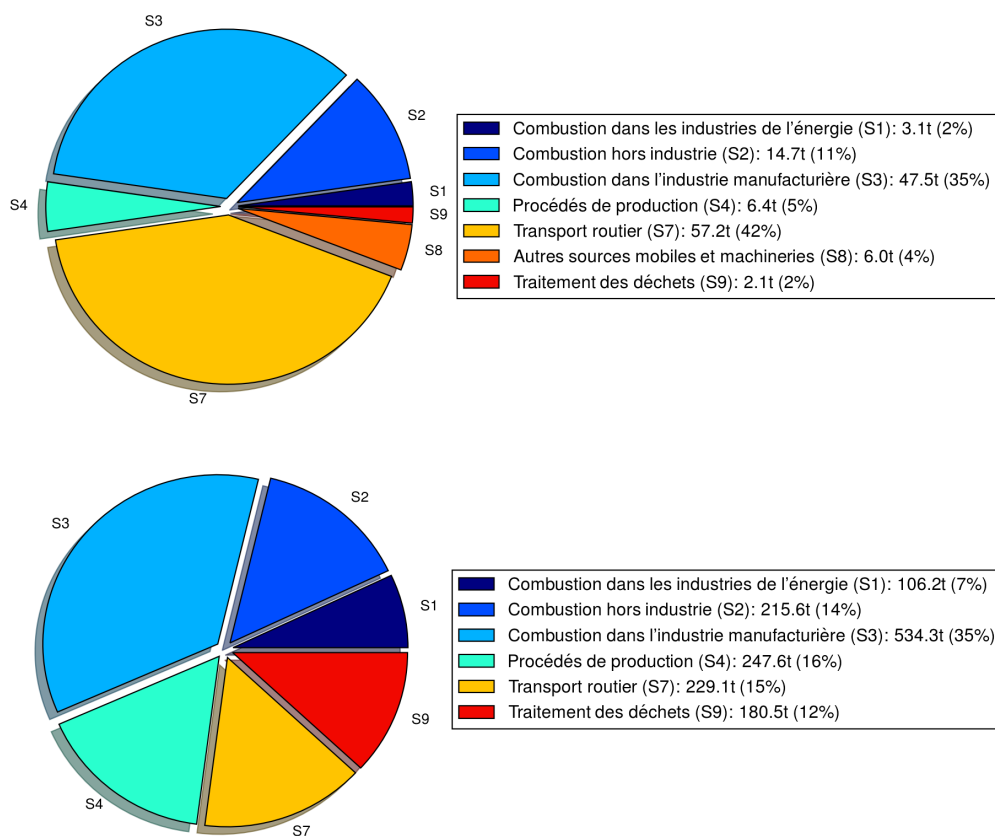


FIGURE 1.1 – Répartition des émissions totales de plomb par secteur SNAP en 2010 pour la France (en haut) et pour l'Union Européenne (en bas).

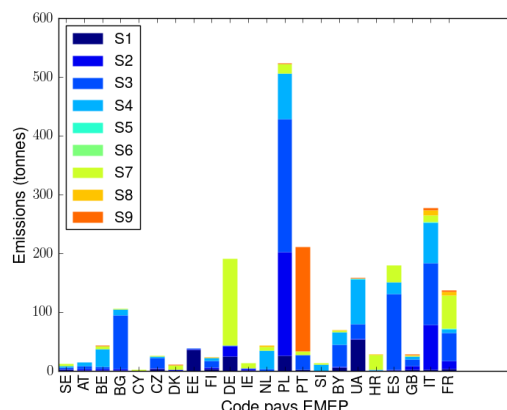


FIGURE 1.2 – Émissions totales de plomb par secteur SNAP en 2010 pour les pays contributeurs à l'EMEP.

### 1.2.2 Sources anthropiques du cadmium

Les émissions anthropiques de cadmium sont dues à l'utilisation de combustibles minéraux solides, à la combustion du fioul lourd et de la biomasse, ainsi qu'à l'incinération des déchets. La métallurgie du cadmium est directement associée à celle du zinc, ce qui explique que l'industrie du zinc est aussi émettrice de cadmium. Le CITEPA rapporte ainsi pour l'année 2010 que 59% des émissions totales en France sont dues à l'industrie manufacturière. Ce chiffre est similaire à celui rapporté par l'EMEP la même année (58%). Le transport routier représente quant à lui 17% des émissions totales (à comparer aux 18% rapportés par le CITEPA).

Les données rapportées par l'EMEP pour le cadmium sont représentées pour la France et pour l'Union Européenne (voir Figure 1.3) pour l'année 2010. De la même manière que pour le plomb, on peut s'apercevoir que la part du transport routier au sein de l'Union Européenne est considérablement moindre dans les émissions totales par rapport à la France, avec une part de moins de 3% des émissions totales de cadmium attribuées au trafic routier. La part du secteur industriel est légèrement inférieure, à un peu plus de 40% des émissions totales dans l'Union Européenne.

D'après les données rapportées par l'ensemble des pays de la zone EMEP (voir Figure 1.4), les résultats sont sensiblement similaires à ceux du plomb. La France est le 8ème pays émetteur de cadmium dans la zone EMEP derrière la Pologne, l'Espagne, l'Italie, l'Allemagne, le Portugal, la Biélorussie et l'Ukraine. On peut donc faire le même constat, avec un impact certainement non négligeable des pays limitrophes, qui se trouvent être de gros émetteurs de cadmium, sur les régions frontalières en France.



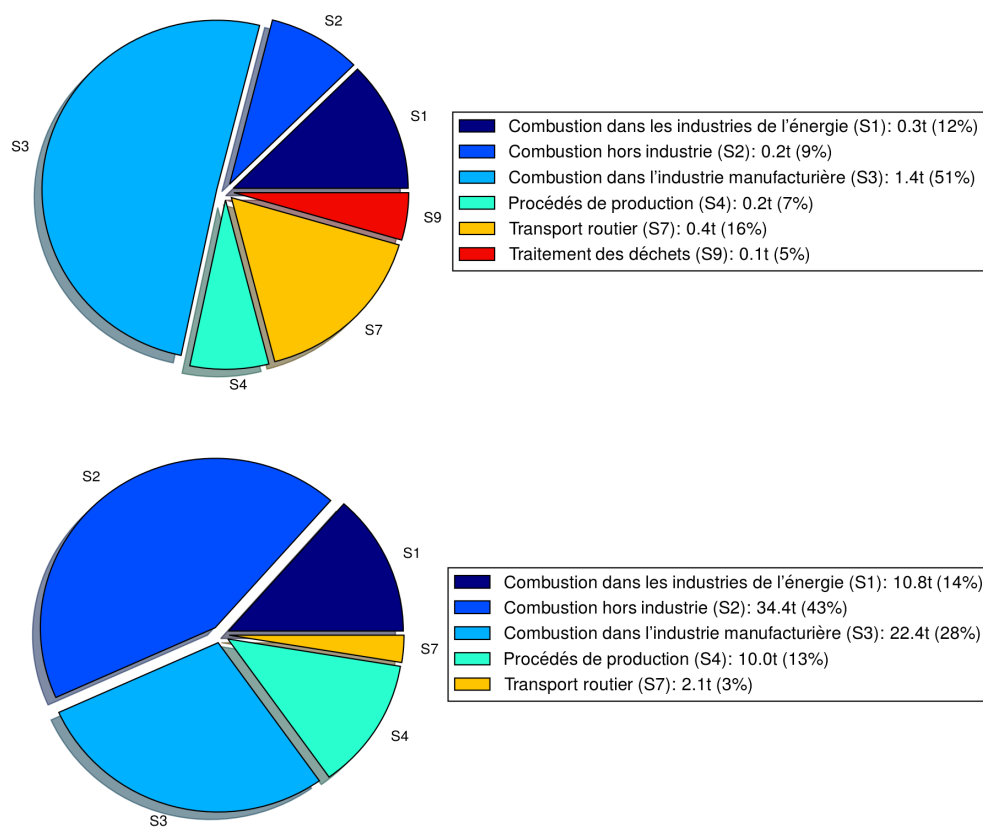


FIGURE 1.3 – Répartition des émissions totales de cadmium par secteur SNAP en 2010 pour la France (en haut) et pour l’Union Européenne (en bas).

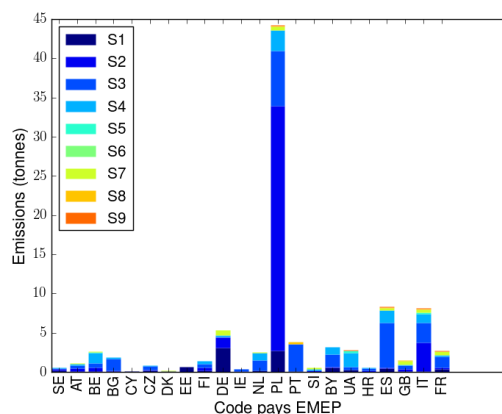


FIGURE 1.4 – Émissions totales de cadmium par secteur SNAP en 2010 pour les pays contributeurs à l’EMEP.

### 1.2.3 Sources naturelles de plomb et de cadmium

Les émissions atmosphériques d'origines naturelles sont peu documentées par rapport aux émissions anthropiques. Sur la base des travaux de Nriagu (1989) on peut citer comme principales sources à l'échelle globale la mise en suspension des poussières de surface par érosion éolienne, la mise en suspension d'embruns au-dessus des étendues d'eau, les éruptions volcaniques, les feux de forêts et les émissions liées à l'activité biogénique.

D'après ces travaux les éruptions volcaniques et l'érosion éolienne sont les principales sources naturelles pour le plomb à l'échelle mondiale à la fin du siècle passé. Le cadmium serait surtout émis lors d'éruptions volcaniques, en second lieu par l'érosion éolienne et les émissions biogéniques. À cette époque ces émissions représentaient 4% des émissions totales de plomb et 15% de celles de cadmium. Ces estimations des émissions naturelles sont cependant très incertaines (Rasmussen, 1998) et leur part relative dans les émissions totales reste de plus liée à l'évolution des émissions anthropiques qui a été importante ces dernières décennies (Pacyna *et al.*, 2009).

## Chapitre 2

# Réalisation d'un cadastre des émissions atmosphériques

Afin de différencier l'origine, continentale, nationale ou régionale, des polluants se déposant dans les bassins versants étudiés, des cadastres des émissions atmosphériques de plomb et de cadmium à différentes échelles ont été considérés.

Pour les échelles régionale et nationale, le recours à l'Inventaire National Spatialisé initialement envisagé n'a pu avoir lieu. Parmi les trois Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA) en charge des régions françaises d'intérêt pour le projet INOGEV, seule celle de l'Île-de-France, Airparif, a bien voulu mettre à disposition du projet sans contrainte rédhibitoire un cadastre d'émissions atmosphériques de métaux lourds à l'échelle kilométrique permettant de traiter l'échelle régionale.

Il a donc été nécessaire de construire des cadastres d'émissions atmosphériques à fine résolution pour pouvoir alimenter le modèle de dispersion à l'échelle régionale. Pour ce faire une méthodologie de désagrégation des inventaires européens a été développée et mise en oeuvre pour l'année 2010. La réalisation de l'inventaire a donc nécessité la collecte de données géolocalisées (clés de répartition) généralement manipulées sous Système d'Information Géographique (SIG).

## 2.1 Spatialisation

### 2.1.1 Choix du cadastre original

L'EMEP met à disposition du public une vaste base de données concernant la qualité de l'air. En particulier, le Centre des Inventaires et des Projections des Émissions (CEIP pour Center for Emission Inventories and Projections) collecte chaque année les données d'émissions auprès des membres signataires de la CPATLD. Ces inventaires sont disponibles sur la grille dite EMEP (décrite dans l'annexe A).

Malheureusement, les données proposées par le CEIP pour les modèles de qualité de l'air ("as used in EMEP models") ne sont pas sectorisées en ce qui concerne les métaux lourds qui nous intéressent (cadmium et plomb). Cette absence de sectorisation a été rédhibitoire pour envisager une stratégie de désagrégation spatiale et temporelle. Nous avons donc été contraints d'utiliser les données estimées par les pays membres et soumises au CEIP ("officially reported emission data"). Ces données sont réparties en 20 secteurs d'activité organisés selon la nomenclature GNFR.

Elles doivent satisfaire certains critères de qualité et de fiabilité prônés par le guide EMEP/AEE des inventaires des émissions atmosphériques (EMEP, 2013). Néanmoins entre l’inventaire “as used in EMEP models” et les données “officially reported emission data”, un examen par des experts désignés par l’AEE et le CEIP est réalisé. Cet examen pouvant conduire à des modifications il est nécessaire d’étudier la validité et la cohérence de l’inventaire issu des données “officially reported emission data”.

De fait, si on compare les deux versions de l’inventaire, sur l’ensemble du domaine EMEP (pour le cadmium par exemple) :

- 2527 cellules (sur les 2552 référencées) ne correspondent pas strictement.
- 724 cellules sont au moins différentes d’un facteur 2.
- 53 cellules différent au moins d’un facteur 10.

L’inventaire “officially reported emission data” atteint une somme astronomique de plus de  $57e^6$  tonnes de cadmium émises. Des erreurs manifestes d’unité se sont glissées dans la restitution des données. Par exemple :

```
HR;2010;H_Shipping;Cd;81;42;Mg;1931676.28811364
HR;2010;J_AviLTO;Cd;81;42;Mg;4714190.30444868
[... ]
HR;2010;H_Shipping;Cd;85;49;Mg;23998240.6803157
HR;2010;I_OffRoadMob;Cd;85;49;Mg;2804604.10271368
HR;2010;J_AviLTO;Cd;85;49;Mg;52888012.520944
```

La recherche des secteurs dans lesquels les émissions dépassent le seuil choisi arbitrairement élevé de 10 kilotonnes de cadmium par an a été rapportée dans l’annexe B. Ces erreurs se sont principalement glissées dans la restitution des secteurs I, J et H ainsi que plus rarement dans les secteurs G, A et D. En tout, la restitution de plus de 94 secteurs répartis dans 48 cellules est clairement erronée.

En nettoyant ces données (application d’un facteur  $1.e-12$  à ces valeurs singulières), les émissions totales sur une partie de la grille EMEP sont assez proches : 174,2 tonnes pour les données “officially reported emission data” contre 102,8 tonnes pour l’inventaire “as used in EMEP models” soit un écart d’environ 69% qui reste dans la fourchette des incertitudes rapportées par les experts de l’EMEP.

Après cet ajustement, il reste :

- 2549 cellules (sur les 2579 référencées) qui ne correspondent toujours pas strictement.
- 156 cellules qui sont différentes d’au moins un facteur 2.
- 29 cellules qui différent d’au moins un facteur 10.

Les valeurs erronées peuvent provenir de diverses origines :

- Une source importante d’erreurs se situe par exemple à la frontière entre la Norvège et la Suède. En effet, la Norvège n’a pas rapporté ses données d’émissions. Les valeurs des émissions à la frontière sont donc clairement sous-estimées ;
- Une autre source d’erreurs importantes sont à imputer aux émissions rapportées par la Croatie qui sont clairement erronées avec des valeurs qui dépassent les 100 tonnes de cadmium sur l’ensemble des cellules de la grille du pays ;

- Par ailleurs, les données rapportées pour la mer du Nord apparaissent clairement parcel- laires, comme cela est visible sur la Figure 2.1.
- Enfin, la dernière source d’erreurs est à porter au crédit du report des émissions du trafic aérien et maritime. Concernant ces émissions toutes les nomenclatures ne s’accordent pas sur le périmètre à prendre en compte, ce qui peut expliquer certaines erreurs de report.

Si on exclut les données encore erronées au nord de la mer du Nord (avec des différences qui oscillent entre 1800 et 120000% entre les deux inventaires), la différence maximale, après correction des données, se situe dans une cellule en mer Méditerranée. Cette différence atteint un pourcentage de 23600%. Ensuite le ratio de différence chute à 10000% dans une cellule en France. Trois autres cellules dépassent les 1000% en France. Ailleurs, la différence ne dépasse pas le facteur 10. Au final, si on écarte les cellules de la mer du Nord, dont les émissions rapportées semblent clairement erronées, on se retrouve avec près de 97% des cellules dont les différences entre les deux inventaires sont inférieures aux incertitudes rapportées par les experts de l’EMEP.

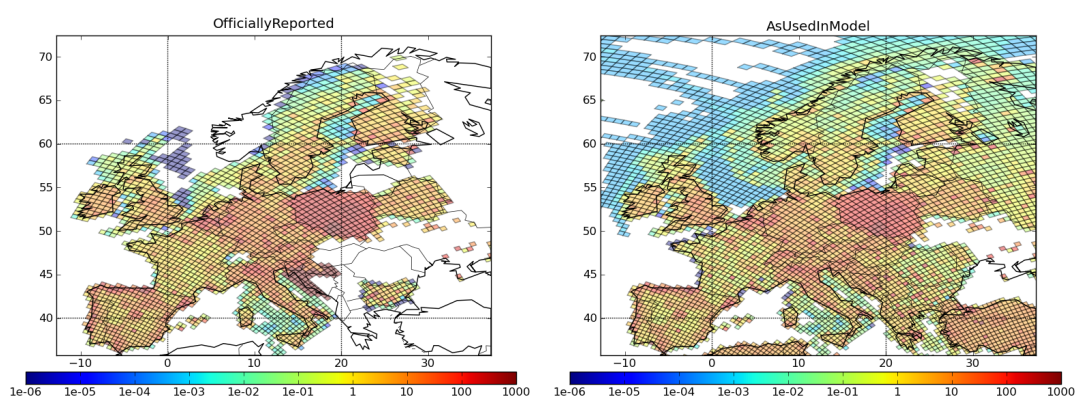


FIGURE 2.1 – Cadastres des émissions anthropiques de cadmium pour l’année 2010 (en  $\text{g km}^{-2} \text{an}^{-1}$ ) disponibles dans les bases de données EMEP. À gauche le cadastre correspondant aux données officielles (“officially reported”), à droite le cadastre correspondant aux données amendées par les experts EMEP et utilisées dans les modèles EMEP (“as used in EMEP models”).

Une fois l’inventaire “officially reported” nettoyé des valeurs aberrantes, les émissions rapportées sont tout à fait cohérentes avec celles de l’inventaire “as used in EMEP models”. Par ailleurs, son emprise quoiqu’inférieure à l’inventaire “as used in EMEP models” est largement suffisante pour l’utilisation que l’on veut en faire (les données manquantes sont essentiellement à l’extrême est de l’Europe). Notre choix s’est donc naturellement porté vers l’inventaire “officially reported” qui a l’avantage d’être sectorisé. Cette sectorisation est essentielle pour pouvoir appliquer des clefs de répartition les plus appropriées possible aux différentes sources d’émissions.

### 2.1.2 Émissions des Grandes Sources Ponctuelles (GSP)

La CEE-NU (CEE - NU, 2009) définit ainsi les GSP :

“ On entend par grandes sources ponctuelles des établissements dont les émissions combinées, dans la zone identifiable limitée aux installations du site, dépassent [un certain] seuil d’émissions. ”

Nous allons utiliser une approche ascendante (bottom-up), car la donnée d’émission et sa spatialisation sont connues. En effet, elles sont soumises à une législation particulière. En France, elles sont généralement soumises à la TGAP (Taxe Générale sur les Activités Polluantes). Elles sont donc référencées dans le Registre français des Émissions Polluantes sur internet (iREP) et peuvent être localisées à l’aide d’un service de cartographie (Google Map, Open Street Map, etc...). Par souci de cohérence, les données des GSP utilisées sont celles référencées par EMEP. Il est à noter que ces données sont issues des données rapportées par la France. Ces données sont donc censées se recouvrir. Les émissions des GSP sont également incluses dans l’inventaire “officially reported” et en sont donc retirées avant son traitement.

### 2.1.3 Méthodologie générale de désagrégation

Les domaines dits locaux ont une résolution approximativement kilométrique. Il est donc nécessaire, dans la mesure du possible, d’obtenir des clés de répartition dont la résolution est au moins inférieure au kilomètre. Les données doivent être géolocalisées, et de préférence vectorisées, sous forme de polygones (pour les données surfaciques), lignes (pour les sources linéiques) ou de points (pour les GSP, déjà traitées au paragraphe précédent). Les données vectorisées vont ensuite être désagrégées dans chaque cellule du domaine cible proportionnellement à l’aire de l’intersection du polygone avec la cellule, ou bien la longueur de la ligne ou enfin la présence du point dans la cellule. En l’absence de clé de répartition dans une cellule EMEP particulière, une désagrégation homogène a été opérée. Dans un premier temps les clés de répartition choisies sont donc attribuées aux cellules du cadastre EMEP (cf. Figure 2.2 pour le cas d’un polygone, pour les lignes l’application est très similaire).

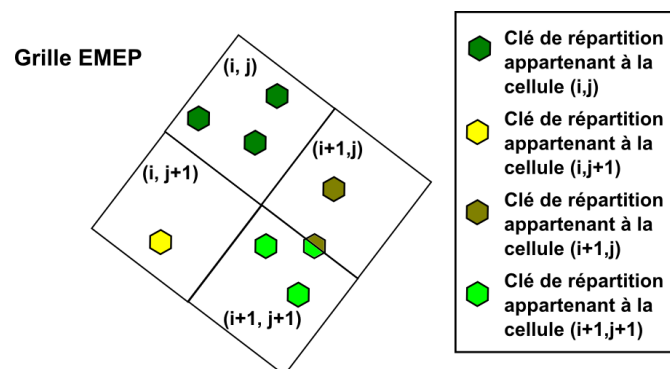


FIGURE 2.2 – Illustration pour une clé de répartition surfacique de l’affectation des éléments de surface aux cellules du cadastre.

Ensuite, pour chaque cellule de notre domaine, on va donc réattribuer les émissions (cf. Figure 2.3) selon l’algorithme suivant pour les polygones (pour les lignes l’algorithme est très similaire) :

$$E_{\text{cell}} = E_{\text{polygon}} \times \frac{\mathcal{A}_{\text{polygon} \cap \text{cell}}}{\mathcal{A}_{\text{polygon}}} \quad (2.1)$$

avec

- $E_{\text{cell}}$  les émissions dans la cellule investiguée (la variable que l’on souhaite calculer).
- $E_{\text{polygon}}$  les émissions réattribuées selon les clés de répartition (ou variables “proxy”).

- $\mathcal{A}$  sont les aires des entités en indice <sup>1</sup>.

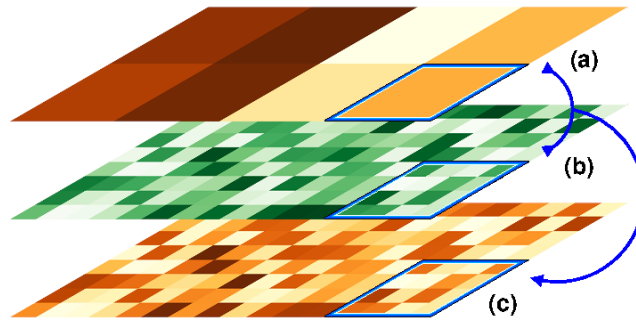


FIGURE 2.3 – Illustration du principe de désagrégation des émissions EMEP : le cadastre à résolution lâche (a) est spatialement désagrégé en exploitant une clef de répartition (b) à une résolution plus fine pour obtenir un cadastre à cette dernière résolution (c).

#### 2.1.4 Clés de répartition utilisées pour les secteurs GNFR

Tous les secteurs ne sont pas émetteurs de métaux lourds. En particulier, les secteurs suivants ne sont pas référencés comme étant émetteurs de cadmium et de plomb dans l’inventaire EMEP :

- Secteur GNFR L “Other waste displacement” : secteur regroupant les émissions liées au traitement des déchets, incluant la mise en décharge (code NFR 6A) et la production de compost (code NFR 6D1) et de biogaz (code NFR 6D2).
- Secteur GNFR M “Waste water” : dans ce secteur est comptabilisé l’ensemble des émissions issues du traitement et du rejet des eaux usées industrielles et des eaux usées domestiques (code NFR 6B).
- L’ensemble des secteurs agricoles :
  - Secteur GNFR O “Agricultural livestock” : secteur recouvrant la gestion des déjections animales (code NFR 4B).
  - Secteur GNFR P “Agricultural (Other emissions)” : secteur concernant les émissions dues aux différentes pratiques agricoles (épandage d’engrais, travail de la terre...).
  - Secteur GNFR Q “Agricultural wastes” : secteur englobant les émissions liées au brûlage des résidus de culture. Bien que cette pratique soit interdite en France, elle peut être ponctuellement autorisée par décision préfectorale.

Si une spatialisation des émissions liées au secteur agricole est nécessaire, la base de données de l’occupation des sols Corine Land Cover (CLC) 2006 propose un certain nombre de catégories

1.  $op1 \cap op2$  symbolise l’intersection des entités  $op1$  et  $op2$

couvrant l'ensemble des terres agricoles. Elles ont été répertoriées dans l'annexe F. Nous allons détailler par la suite l'ensemble des autres secteurs émetteurs, ainsi que le choix de la clé de répartition spatiale associée.

### **Secteur GNFR A “Public power”**

L'approche généralement adoptée dans les inventaires d'émission est dite “orientée source”. Elle consiste à comptabiliser les émissions sur le site réel de production de l'énergie, qui peut donc se trouver à plusieurs centaines de kilomètres de la résidence qui dépense cette énergie. Les rejets atmosphériques sont donc comptabilisés sur le lieu de production (code NFR 1A1a “Public electricity and heat production” ou GNFR A\_PublicPower) et non pas au niveau de l'immeuble. Les émissions de ce secteur sont donc essentiellement dues à de grandes sources ponctuelles.

Pour le reste des émissions de ce secteur d'activité, nous avons utilisé comme clé de répartition, par défaut, la catégorie “Zones industrielles et commerciales” (clc06\_c121 : Commercial and industrial units) issue de la base de données d'occupation des sols CLC 2006. Cette catégorie est définie comme recouvrant les zones recouvertes artificiellement (zones cimentées, goudronnées, asphaltées ou stabilisées : terre battue, par exemple), sans végétation occupant la majeure partie du sol. Ces zones comprennent aussi des bâtiments et/ou de la végétation.

### **Secteur GNFR B “Industrial combustion plants”**

Ce secteur recouvre l'ensemble des sources émettrices liées à la production et à l'usage de l'énergie dans des installations fixes ou mobiles de l'industrie, notamment l'ensemble des installations de combustion (fours, fourneaux, fonderies...). Celui-ci peut donc regrouper un grand nombre de sources potentielles, dont la nature du combustible, et de l'équipement de combustion varient énormément. Cependant, il semblerait que l'utilisation de caractéristiques moyennes pour ces multiples sources soit une bonne approximation et n'engendre pas d'erreurs grossières selon le rapport méthodologique OMINEA du CITEPA (2012). Ceci serait lié au fait que ce secteur inclut un grand nombre de “petites” installations qui utilisent majoritairement des combustibles classiques (gaz naturel, fioul...).

Ce secteur a donc été ventilé à l'aide de la base de données d'occupation des sols CLC 2006, selon la catégorie “Zones industrielles et commerciales” (clc06\_c121 : Commercial and industrial units). Par ce biais, on émet l'hypothèse que la consommation d'énergie d'une zone industrielle est proportionnelle à la surface de cette zone.

### **Secteur GNFR C “Small combustion plants”**

Les métaux lourds se retrouvent en quantité variable (traces) dans les combustibles. Leur présence et leur quantité varient selon la nature du combustible, l'origine de ce dernier et les émissions dépendent au moins pour certains de la nature des équipements thermiques et des dispositifs d'épuration. Dans le secteur résidentiel, la disparité du parc des équipements de chauffage individuel et du combustible (chauffage au fioul, au gaz de bouteille, au charbon, au bois...) est grande.

Les émissions issues du chauffage urbain (correspondant au code NFR 1A4bi “Residential : Stationary plants” ou GNFR C\_SmallComb) ont été réparties à l'aide des données de densité de population produites par l'INSEE (Institut National de la Statistique et des Études Économiques). Ici, on fait l'hypothèse assez grossière que les émissions de ce secteur sont proportionnelles au nombre de personnes qui se chauffent.



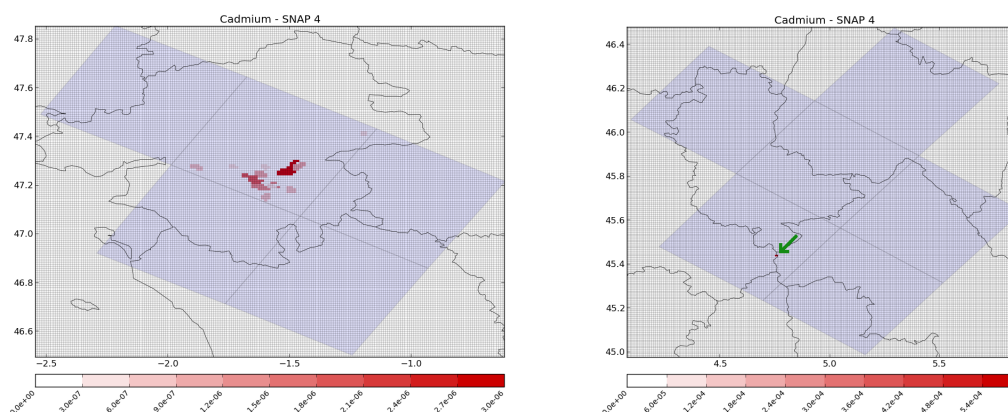


FIGURE 2.4 – Répartition des émissions de cadmium (en t/an) du secteur GNFR D (~SNAP 4) sur le domaine autour des bassins versant du Pin Sec (gauche) et de Chassieu (droite). Les aires bleues correspondent aux cellules du cadastre EMEP utilisées pour produire le cadastre local. La trame grise correspond aux cellules de la base de données d’occupation des sols qui servent d’unité élémentaire pour la désagrégation spatiale.

### Secteur GNFR D “Industrial processes”

Ce secteur recouvre l’ensemble des procédés industriels. On peut distinguer notamment (en suivant la nomenclature NFR) les sous-secteurs suivants :

- L’industrie des produits minéraux ;
- L’industrie chimique ;
- L’industrie métallurgique ;
- Les autres industries (bois, agro-alimentaire...);

Il a naturellement été ventilé à l’aide de la catégorie “Zones industrielles et commerciales” (clc06\_c121 : Commercial and industrial units) de la base de données d’occupation des sols CLC 2006. Ce secteur bénéficie largement de l’approche mixte “bottom-up” et “top-down”. Par exemple, sur le domaine lyonnais (bassin de Chassieu), hormis une pollution de fond de l’ordre de  $10^{-5}$ g Cd/an, les émissions d’origine industrielle (GNFR D) sont géolocalisées très précisément (source ponctuelle). En l’occurrence, les émissions seraient issues de Prayon, une société d’industrie chimique, à hauteur de  $\sim 0,6$  kg Cd/an, située à Saint-Clair-du-Rhône (38370) à la latitude 45,4408, et à la longitude 4,76611 (voir Figure 2.4).

Seul le domaine nantais est constitué de sources surfaciques (voir Figure 2.4) en ce qui concerne les émissions d’origine industrielle (GNFR D).

### Secteur GNFR E “Fugitive emissions”

Ce secteur recouvre les émissions issues de l’ensemble des processus du raffinage, i.e., l’exploration, le raffinage, la distribution et le stockage des combustibles minéraux solides, liquides et gazeux.

Parmi les sous-secteurs responsables d’émissions de métaux lourds selon le rapport OMINEA du CITEPA (2012), on compte :

- La transformation des combustibles minéraux solides (code NFR 1B1b) ;
- Le raffinage du pétrole (code NFR 1B2a) ;

Le CITEPA décompte dans les émissions associées au sous-secteur “transformation des combustibles minéraux solides”, les émissions issues de trois cokeries sidérurgiques (qui peuvent donc être localisées comme sources ponctuelles). Quant au sous-secteur “raffinage du pétrole”, il englobe l’ensemble des procédés impliqués dans le raffinage du pétrole brut ou de produits partiellement élaborés provenant d’autres raffineries. Le CITEPA inclut les procédés suivants :

- les émissions fugitives des procédés en raffinerie (SNAP 040101) ;
- Le craqueur catalytique - chaudière à CO (SNAP 040102) ;
- L’unité Claus (récupération de soufre) (SNAP 040103) ;
- Le stockage et la manutention de produits pétroliers en raffinerie (SNAP 040104) ;
- Les autres procédés (SNAP 040105) ;
- Les stations d’expédition de produits pétroliers (SNAP 050501) ;

Les raffineries sont a priori considérées comme de grandes sources ponctuelles. Pourtant, il reste une pollution de fond assez importante en dehors de ces GSPs (de l’ordre de plusieurs dizaines de kg de cadmium par an sur le domaine parisien par exemple). Celle-ci est vraisemblablement à attribuer au réseau de distribution, au stockage et aux stations-services. Malheureusement, la donnée de géolocalisation de l’ensemble de ces dispositifs n’est pas disponible.

Le parti a donc été pris que le stockage se trouve près des ports, en faisant l’hypothèse que ces combustibles sont distribués par navire-citerne. Pour ce secteur d’activité, nous avons donc utilisé comme clé de répartition la catégorie “Zones portuaires” (clc06.c123 : Port areas) issue de la base de données d’occupation des sols CLC 2006.

### **Secteur GNFR F “Solvents”**

Les émissions de ce secteur sont issues de l’utilisation de solvants et d’autres produits, incluant les sous-secteurs suivants :

- Application de peinture (code NFR 3A) ;
- Dégraissage et nettoyage à sec (code NFR 3B) ;
- Fabrication et mise en oeuvre de produits chimiques (code NFR 3C) ;
- Anesthésie (code NFR 3D) ;
- Utilisation domestique de produits (code NFR 3D) ;
- Autres utilisations de solvants (code NFR 3D) ;

Le rapport OMINEA du CITEPA (2012) indique que seul le sous-secteur “Utilisation domestique de produits” est à l’origine d’émissions de métaux lourds, au travers de la consommation de tabac.

Les émissions issues de ce secteur ont donc été réparties à l’aide des données de densité de population produite par l’INSEE, ce qui paraît être une bonne approximation.

### **Secteur GNFR G “Road rail”**

Dans ce secteur sont agrégées les émissions liées au trafic routier, ainsi qu’au trafic ferroviaire.

D’après le rapport méthodologique OMINEA du CITEPA (2012), les émissions du transport ferroviaire de voyageurs et de marchandises sont essentiellement dues à l’utilisation de combustible fossile par les locomotives et autres engins à moteur diesel. Les émissions issues de l’usure des freins, rails, roues et caténaires constituent le reste des émissions du transport ferroviaire. D’après le même rapport, les émissions de cadmium et de plomb de ce secteur sont considérées comme nulles. C’est pourquoi, les émissions ont été cadastralisées selon des clés de répartition seulement liées au trafic automobile.

Le réseau routier (autoroutes, routes nationales et départementales) peut être facilement géoréférencé. Le Centre d’études et d’expertise sur les risques, l’environnement, la mobilité et l’aménagement (CEREMA) met notamment à disposition des données vectorisées sur le recensement de la circulation sur le réseau routier national, au travers du portail ADéLie, un système de stockage et de catalogue disposant d’un certain nombre de données géographiques.

On y trouve notamment le trafic moyen journalier annuel (TMJA) sur le réseau routier national hors agglomération. Le TMJA indique le nombre de véhicules circulant en moyenne par jour sur un tronçon, il représente donc une donnée centrale et sans doute la plus importante parmi celles qui ont une influence sur les émissions. Les émissions linéiques (trafic non urbain) issues de ce secteur ont donc été réparties à l’aide du TMJA.

En l’absence de données permettant de les différencier et de les distribuer spécifiquement, les émissions du trafic hors du réseau routier national ont été spatialisées sur ce réseau, exception faite du trafic du boulevard périphérique de Paris dont l’importance du trafic pouvait difficilement être négligée. Afin d’inclure les données de trafic du boulevard périphérique de Paris, des données de comptage mises à disposition par la Direction des Routes Île-de-France (DIRIF), notamment issues du dispositif Système Informatisé de Recueil de Données (SIREDO) ont été géolocalisées manuellement par recoupement avec une carte traditionnelle.

### **Secteur GNFR H “Shipping emissions”**

Ce secteur traite du transport maritime et fluvial. Selon le rapport OMINEA du CITEPA (2012), les émissions de métaux lourds sont nulles pour le transport fluvial. En effet, celui-ci n’est pas émetteur de cadmium et n’est plus émetteur de plomb depuis 2005. Cependant, en ce qui concerne le transport maritime, la combustion de fioul lourd est à l’origine d’émissions de cadmium (mais plus de plomb, depuis 2005). Pour les bateaux, un système assez similaire à celui décrit pour le transport aérien (voir Section 2.1.4) existe (AIS pour Automatic Identification System). Néanmoins, ces données n’étaient pas disponibles librement.

Finalement, pour ce secteur d’activité, nous avons donc utilisé comme clé de répartition la catégorie “Zones portuaires” (clc06\_c123 : Port areas) issue de la base de données d’occupation des sols CLC 2006. Celle-ci est définie comme l’ensemble des infrastructures des zones portuaires, y compris les quais, les chantiers navals et les ports de plaisance. Ce choix implique une concentration d’un secteur d’émissions diffuses (les bateaux sont des sources mobiles) vers des “pseudo-

sources” considérées alors ponctuelles, les ports. Malgré tout, si l’on compare les émissions du transport maritime et fluvial par rapport aux émissions du trafic routier, il existe encore un ordre de grandeur sur leur maximum d’émissions. Nous avons donc jugé cette approximation admissible.

### **Secteur GNFR I “Off road mobility”**

Ce secteur traite des émissions liées à la combustion provenant de sources mobiles du secteur résidentiel (groupe électrogène, tondeuse, ...), tertiaire (confondu avec le secteur résidentiel dans le rapport OMINEA du CITEPA, 2012) ainsi que du secteur agricole (tracteur, moissonneuse...).

En l’absence de données plus fines sur l’utilisation de ces sources mobiles, les émissions issues du GNFR I ont été ventilées, par défaut, à l’aide des données de densité de population produite par l’INSEE. Cela va donc induire une concentration de ces émissions sur les zones urbaines plus denses en population, et cela revient à attribuer spatialement les émissions du secteur agricole au secteur résidentiel/tertiaire. La répartition entre ces deux sous-secteurs ayant une forte disparité sur le territoire, il est difficile de distribuer les émissions selon une combinaison de deux clés de répartition représentant ces deux sous-secteurs (avec un facteur constant) sur l’ensemble du pays.

### **Secteur GNFR J “Civil aviation (Domestic LTO)”**

Le terme “LTO” (Landing and Take Off) correspond aux phases d’envol et d’atterrissage, comprenant donc l’ensemble du trafic aérien en dessous de 3000 pieds, soit 914 mètres (arrondis à 1000 mètres). Ceci inclut donc a priori les rejets liés à la combustion des carburants par les équipements de propulsion des aéronefs et les émissions connexes liées aux aéronefs (usure des pneus, des freins et érosion de la piste...) mais aussi celles des autres équipements au niveau de l’aéroport (engins de pistes, véhicules...). Par ailleurs, ce secteur recouvre seulement les liaisons domestiques ou intérieures (i.e., entre deux points situés à l’intérieur du pays considéré).

Selon le rapport OMINEA du CITEPA (2012), les émissions de métaux lourds, plus précisément de plomb (le trafic aérien n’étant pas émetteur de cadmium), sont issues de la combustion de l’essence avion, qui, contrairement à l’essence automobile, contient encore du plomb. Afin de spatialiser les émissions de ce secteur, nous avons donc besoin de l’information géolocalisée des avions en vol en dessous de 1000 mètres.

Pour ce faire, nous avons utilisé une base de données mise à disposition par l’un des sites de surveillance du trafic aérien qui se sont développés ces dernières années, en l’occurrence le serveur de test mise à disposition par le site <http://www.virtualradarserver.co.uk>. Il se base sur la technologie de surveillance dépendante automatique en mode diffusion (ADS-B pour Automatic Dependent Surveillance-Broadcast) qui est un système par lequel tout avion, équipé, peut automatiquement transmettre et recevoir un ensemble de données telles que des données d’identification (numéro du vol, compagnie aérienne...), mais aussi et surtout des données de position.

Il a ainsi pu être possible en suivant le trafic aérien à l’aide de ces outils, pendant une période de temps suffisamment longue, de géolocaliser les routes aériennes et leur poids respectif. Cette donnée a ainsi permis de spatialiser les émissions de ce secteur GNFR J. Il est à noter que, dans le cas des domaines lyonnais et Rhône-Alpes, ces données n’ont pas pu être correctement générées. Par suite, les émissions du secteur GNFR J ont été traitées avec la catégorie “Aéroport” de la base de données d’occupation des sols CLC 2006 (clc06\_c124 “Airports”) pour ces domaines. Or, la méthode utilisant les données générées par le système ADS-B est plus précise car recensant de fait les avions émetteurs de ce secteur. En effet, les données d’occupation des sols recensent aussi de petits aérodromes dont l’aire est non négligeable par rapport aux aéroports dont le trafic

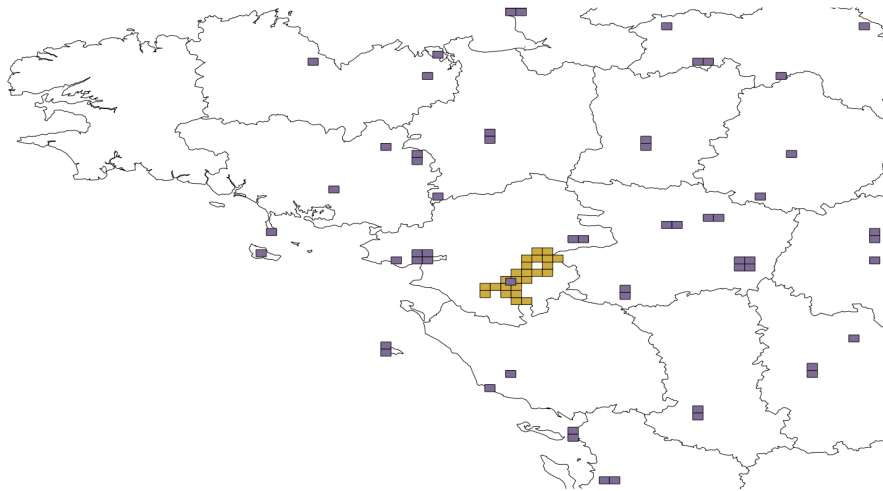


FIGURE 2.5 – Superposition des deux clés de répartition disponibles du secteur GNFR J sur le domaine régional autour du bassin versant du Pin Sec. En jaune la clé de répartition obtenue sur la base des données de vol, en violet celle basée sur les données Corine “Airports”.

est pourtant nettement plus important (voir Figure 2.5 pour une superposition des deux clés de répartition sur le domaine autour du bassin de Bouguenais). De plus, utiliser la clé de répartition liée à l’occupation des sols introduit de fait un biais, en concentrant les émissions de sources mobiles (les avions) à une seule “source fixe”, l’aéroport.

### Secteur GNFR K “Civil aviation (Domestic cruise)”

Le terme “cruise” renvoie à la phase de vol dite de “croisière”, correspondant au trafic aérien au dessus de 3000 pieds (soit 1000 mètres environ). À l’instar du GNFR J, ce secteur ne comprend que le trafic dit intérieur, ou domestique. Les émissions générées par ce secteur (i.e. pendant la phase de croisière) n’ont pas été considérées dans ce cadastre. En effet, le choix a été fait de ne pas les inclure dans les cadastres nationaux rapportés à l’EMEP.

### Secteur GNFR N “Waste incineration”

Ce secteur recouvre l’ensemble des procédés d’incinération de déchets, incluant :

- Incinération des boues de traitement des eaux (code NFR 6Cb)
- Incinération de déchets ménagers sans récupération d’énergie (code NFR 6Cc)
- Feux ouverts et déchets verts (code NFR 6Ce)
- Incinération de déchets hospitaliers (code NFR 6Ca)
- Crémation (code NFR 6Cd)
- Incinération de déchets industriels (code NFR 6Cb)
- Feux de déchets agricoles non organiques (code NFR 6Cc)

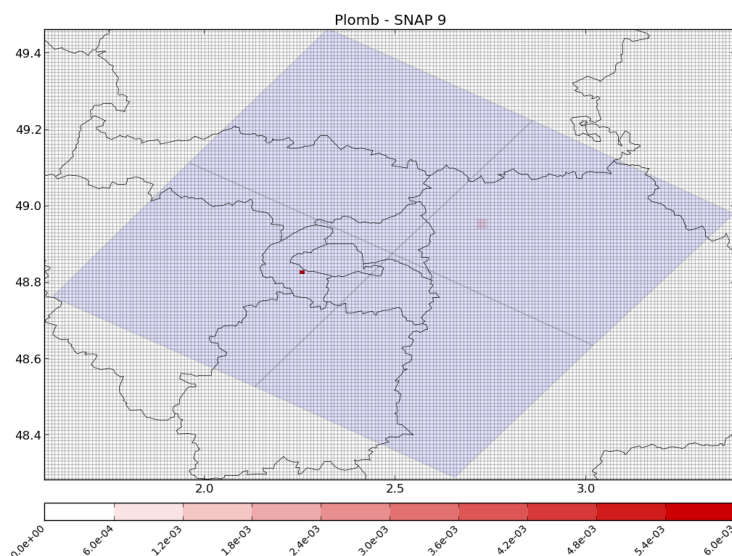


FIGURE 2.6 – Répartition des émissions de plomb (en t/an) du secteur GNFR N (~SNAP 9) sur le domaine autour du bassin versant de Sucy-en-Brie. Les aires bleues correspondent aux “mailles” du cadastre EMEP utilisées pour produire le cadastre “local”. La trame grise correspond aux “mailles” de la base de données d’occupation des sols qui servent d’unité élémentaire pour la désagrégation spatiale.

Les sous-secteurs émetteurs de métaux lourds sont ceux concernant l’incinération des boues de traitements des eaux, des déchets ménagers sans récupération d’énergie, des déchets hospitaliers, industriels, ainsi que la crémation. Ces sous-secteurs bénéficient particulièrement de l’approche mixte “bottom-up” et “top-down”, les usines d’incinération étant géolocalisées précisément comme GSP (Voir Figure 2.6).

Pour ce secteur d’activité, nous avons utilisé comme clé de répartition la catégorie “Décharges” (clc06\_c132 : Dump sites) issue de la base de données d’occupation des sols CLC 2006. Cette catégorie est définie comme recouvrant l’ensemble des décharges et dépôts des mines, des industries ou des collectivités publiques.

### Secteur GNFR S “Natural emissions”

Ce secteur englobe les sources biogéniques (i.e., provenant de la végétation et du sol) et autres sources naturelles (volcans, foudre...). Ces émissions ne sont pas rapportées dans l’inventaire EMEP. Une autre source sera utilisée, décrite ci-après (voir Section 2.2.2).

### Secteur GNFR T “International aviation (Cruise)”

Ce secteur prend en compte les émissions provenant de la phase de croisière des avions effectuant un vol international. Pour ce dernier secteur (et de la même manière que pour le Secteur GNFR K), la législation en vigueur tend à ne pas décompter les émissions dues au trafic en croisière internationale dans les inventaires nationaux.

### 2.1.5 Émissions naturelles

Selon Nriagu (1989), les processus naturels à l'origine des émissions de cadmium et de plomb sont principalement l'activité volcanique, la resuspension éolienne et enfin plus marginalement les feux de forêt. Aucune activité volcanique n'est référencée dans les domaines considérés dans cette étude. Ces émissions n'ont donc pas été considérées. En ce qui concerne les feux de forêt, en l'absence de données disponibles pour les métaux lourds, leurs émissions n'ont pas non plus été considérées.

La principale source naturelle qui a donc été considérée provient de la resuspension éolienne. En effet, une quantité importante de métaux lourds est remise en suspension et peut participer pour une part non négligeable aux émissions. Selon le rapport Heavy Metals : Transboundary Pollution of the Environment 2/2013 de l'EMEP (Joint MSC-E & CCC & CEIP Report, 2013), pour les pays participant au programme EMEP, la contribution moyenne à la pollution de la remise en suspension s'élèverait à 76% du total pour le plomb et 67% pour le cadmium.

Les données des émissions naturelles proviennent du Meteorological Synthesizing Centre - East (MSC-E), qui est un des centres d'étude affilié au programme EMEP. Il met notamment à disposition des sorties de modèle concernant la pollution par les métaux lourds issue de sources biogéniques et naturelles. Il est à noter que l'origine de ces poussières réémises est pour partie d'origine naturelle, et d'autre part des poussières d'origine anthropique qui se sont déposées préalablement. Le MSC-E met à disposition des inventaires des émissions de métaux lourds, spatialisés sur la grille EMEP. Le modèle à l'origine de cet inventaire se base sur les concentrations observées dans le sol, multipliées par un facteur d'enrichissement permettant de prendre en compte les poussières issues de l'activité anthropique, et sur des mesures dans l'air utilisées pour calibrer ces émissions.

## 2.2 Distribution temporelle

Les inventaires sont généralement réalisés sur une base annuelle, et ne font pas apparaître des facteurs potentiellement importants comme les saisons. Il existe cependant des profils temporels moyens qui permettent de répartir les émissions dans le temps (cf. horaire de trafic, modulation horaire fournie par les industriels...). Parmi les profils temporels type (Fontelle, 2005) que l'on peut rencontrer, on trouve :

- **Les activités peu ou pas dépendantes de la période de l'année** : on regroupe ici tous les types d'activités dont le fonctionnement est continu ou quasi continu tout au long de l'année. Il est notamment possible de nuancer le profil en tenant compte des arrêts possibles de l'activité (maintenance ...).
- **Les activités à cycles saisonniers réguliers** : on recense ici l'ensemble des activités saisonnières ou phénomènes naturels dépendant des saisons (émissions biotiques comme la fabrication du vin).
- **Les activités dépendant de paramètres connus** : on réunit sous cette appellation l'ensemble des activités qui dépendent de paramètres connus, telles la consommation d'énergie ou d'eau chaude, qui dépendent des conditions climatiques.
- **Les activités à fluctuation "aléatoires"** : on retrouve ici toutes les autres activités pour lesquelles on observe de fortes variations non modélisables, comme les arrêts imprévus d'usines pour travaux.

On pourra aussi au besoin nuancer l'intensité de l'activité pour tenir compte des différents cycles temporels (cycle nuit/jour, semaine/week-end, etc ...). En l'occurrence, trois clés de distribution temporelle ont été combinées afin d'avoir en sortie un cadastre horaire à partir de l'inventaire annualisé :

- clés de distribution des émissions réparties par mois.
- clés de distribution des émissions en fonction du jour de la semaine.
- clés de distribution des émissions réparties en fonction de l'heure d'émission.

### 2.2.1 Émissions anthropiques

Ces clés de répartition ont été dérivées par le Meteorological Synthesizing Centre-West (MSC-W) à partir d'une étude menée au sein du projet GENEMIS (GENERation and evaluation of EMISsion data, Friedrich *et al.*, 2004). Ces facteurs dépendent du polluant considéré, du secteur d'émissions et du pays émetteur afin de refléter les climats très différents, et donc les manières variées de consommer l'énergie dans les différentes parties de l'Europe.

### 2.2.2 Émissions naturelles

L'inventaire mis à disposition par le MSC-E est basé sur un modèle de remise en suspension. Ce modèle prend en compte aussi bien les poussières d'origines naturelle qu'anthropique.

Afin de temporaliser (et spatialiser) cet inventaire, une première tentative a été élaborée, basée sur le modèle de remise en suspension des poussières, développé au sein du projet NatAir (Improving and Applying Methods for the Calculation of Natural and Biogenic Emissions and Assessment of Impacts on Air Quality) décrit dans Korcz *et al.* (2009). Le modèle développé au sein de NatAir ne considère que la remise en suspension des poussières par les phénomènes d'origine naturelle (i.e. le vent), et ne considère donc pas l'ensemble des phénomènes pouvant remettre en suspension les poussières (trafic routier...).

Ce modèle est basé sur un système de "réservoirs" de poussières, dont la contenance dépend de l'occupation des sols. Les poussières sont réémises selon des facteurs d'émissions dépendant :

- du type de réservoir (stable/instable, dépendant de l'occupation des sols),
- de la disponibilité des poussières (chaque réservoir met un certain temps à se régénérer, la pluie influant aussi sur la disponibilité),
- et de la force de mobilisation de ces poussières (dépendant de la vitesse du vent à 10 mètres).

Ce modèle ne tient donc pas compte, notamment, de la remise en suspension due à l'activité anthropique. Cela est évident autour des centres urbains (voir Figure 2.7) où le modèle ne remobilise pas les poussières.

Le flux d'origine naturelle a donc été diagnostiqué sur une base horaire à l'aide du modèle basé sur le projet NatAir. Ce flux a ensuite servi de clé de répartition temporelle et spatiale. Pour le



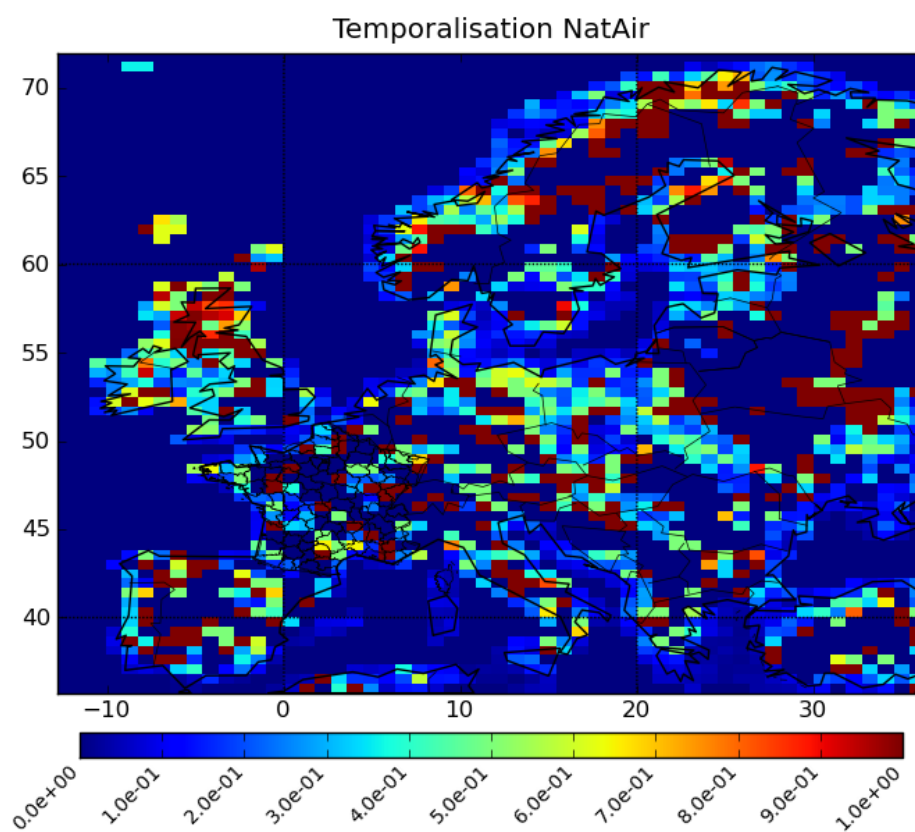


FIGURE 2.7 – Coefficient maximal de temporalisation calculé à partir du modèle NatAir sur l'année 2010.

reste des émissions (dont la remise en suspension a été par suite supposée d’origine anthropique), une clé de répartition temporelle constante a été appliquée en l’absence de données pertinentes et compatibles avec la clé de distribution choisie initialement.

Les inventaires et les modèles impliqués dans la production de ce cadastre des émissions naturelles (notamment leur répartition temporelle) sont soumis à de grandes incertitudes de l’avis même de leurs auteurs.

Après étude des données ainsi générées, il est apparu assez évident qu’elles ne pouvaient pas être utilisées en l’état. En effet, sur un total de 3618 cellules du domaine “Europe” (supra-national), 322 cellules émettaient l’intégralité de leurs émissions sur un seul pas de temps (soit en 1h), soit près de 9% des cellules, toute surface confondue (voir Figure 2.7). Ce chiffre monte à plus de 17% sur la surface terrestre. Quant aux cellules dans lesquels les conditions d’émissions selon la méthodologie NatAir ne sont pas remplies, elles sont au nombre de 2053, soit près de 57% des cellules. En tout et pour tout, moins de 35% du domaine serait effectivement temporalisé selon les critères de NatAir.

Suite à ce constat, une méthode alternative a été utilisée pour temporaliser les émissions naturelles. Elle consiste à distribuer linéairement en fonction du vent les émissions. La clé de répartition temporelle,  $\zeta$ , est donc une fonction du vent. Pour chaque cellule, les émissions annuelles sont distribuées à l’heure  $t$  selon le coefficient suivant :

$$\zeta(x, y, t) = \frac{U(x, y, t)}{\sum_k^{N_t} U(x, y, k)} \quad (2.2)$$

## 2.3 Comparaison aux cadastres d’Airparif

Airparif a aimablement mis à notre disposition leur inventaire de métaux lourds sur l’Île-de-France. Il a ainsi été possible de comparer le cadastre obtenu par la méthodologie mise en oeuvre pour les besoins du projet INOGEV à une référence existante pour la région Île-de-France. La comparaison va porter sur deux cadastres construits avec des philosophies différentes. En effet, le cadastre d’Airparif est conçu sur une approche plutôt orientée ascendante, contrairement au cadastre que nous avons constitué à partir des données de l’EMEP. Il est clair que ces différences peuvent induire des biais dans les estimations des émissions. L’objectif ici n’est pas de dresser une liste exhaustive des origines des biais, mais plutôt d’identifier leur ampleur qui se répercutera sur les concentrations et les flux de dépôt.

### 2.3.1 Description des données Airparif

#### Projection

L’inventaire Airparif concernant les métaux lourds est défini sur un référentiel cartographique correspondant à une projection de Lambert étendue. C’est une projection conique conforme. L’ellipsoïde de référence est l’ellipsoïde de Clarke 1880 IGN (cf. Annexe E pour une courte présentation de géomatique). Pour son exploitation avec le modèle de chimie-transport, le cadastre est transposé dans un référentiel géographique.

#### Nomenclature

La nomenclature Airparif liée à l’inventaire des émissions de métaux lourds est basée sur des classes proches de la nomenclature SNAP. Elle est présentée en détail dans le tableau 2.1.

Tableau 2.1 – Nomenclature du cadastre d’Airparif pour les émissions de métaux lourds.

| Activités | Intitulé                      | Commentaires   |
|-----------|-------------------------------|--|
| AGR       | Agriculture                   | comprend émissions liées aux terres cultivées, aux animaux, aux engins agricoles   |
| BIO       | Biogénique                    | comprend les émissions naturelles (végétaux et sols non cultivés)  |
| IND       | Industrie manufacturière      | comprend chauffage des entreprises et procédés de production   |
| NRJ       | Production d’énergie          | comprend les centrales thermiques et raffineries   |
| PFA       | Plates-formes aéroportuaires  | comprend le trafic aérien ainsi que les émissions liées aux activités des plates-formes  |
| RTE       | Résidentiel et Tertiaire      | comprend les émissions liées au chauffage résidentiel et tertiaire ainsi que le chauffage urbain. Pour les composés organiques volatils (COV) comprend également les utilisations domestiques de colles, solvants... |
| TDE       | Traitement des déchets        | comprend les émissions liées aux décharges et aux incinérateurs  |
| TFF       | Trafic ferroviaire et fluvial |  |
| TRR       | Trafic routier                | comprend les émissions liées à la combustion des moteurs, à l’évaporation des réservoirs ainsi qu’à l’abrasion des pneus, freins et routes   |
| CHANT     | Chantiers et carrières        | comprend les émissions liées à l’extraction dans les carrières (hors engins) et les émissions liées aux particules générées par les chantiers, bâtiments et travaux publics  |

### 2.3.2 Résultats pour le cadmium

La comparaison porte ici sur les émissions anthropiques. Les totaux de masse émise dans les deux cadastres sont très proches, 199 kg pour le cadastre AIRPARIF et 211 kg pour celui élaboré avec la méthodologie de désagrégation des données EMEP présentée précédemment. La Figure 2.8 montre la répartition spatiale des émissions pour les deux cadastres.

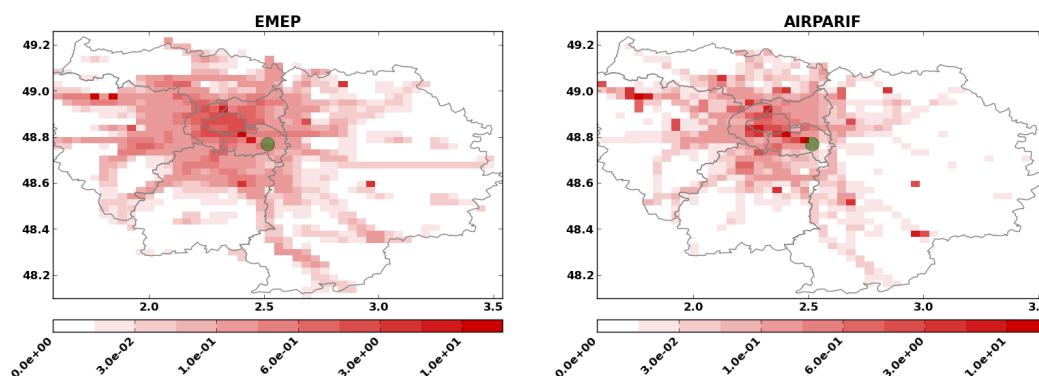


FIGURE 2.8 – Cadastres des émissions anthropiques de cadmium pour l’année 2010 (en kg/an). À gauche le cadastre correspondant à la désagrégation des données EMEP (limité ici à l’Île-de-France), à droite le cadastre élaboré par Airparif. Le cercle vert indique la localisation du bassin versant de Sucy-en-Brie.

Malgré la différence des approches, la distribution globale des émissions dans l’espace semble relativement cohérente. Le coefficient de corrélation spatiale des deux champs pour l’Île-de-France est de 0,67. Une comparaison plus fine par secteur d’activité ne peut être réalisée de manière exhaustive car les nomenclatures d’origine des différents inventaires ne se recoupent pas complètement. Néanmoins, pour obtenir des éléments d’analyse sur l’origine des différences il est possible de comparer certains secteurs communs.

#### Cas des émissions de l’industrie manufacturière

On s’intéresse en premier lieu à un secteur où a priori prédominent des grandes sources ponctuelles. Ce secteur est proposé tel quel dans le cadastre d’Airparif. Il est équivalent à l’association des secteurs GNFR B (“Industrial Combustion plants”) et D (“Industrial processes”) pour le cadastre EMEP. Le cadastre AIRPARIF attribue près de 31 kg d’émissions à ce secteur, celui élaboré à partir des données EMEP conduit à des émissions de 32 kg. Cependant ces totaux très proches sont distribués de façon très différente. Des cartes reproduisant les cadastres de ce secteur sont présentées sur la Figure 2.9.

La liste des GSPs des secteurs GNFR B et D localisées en Île-de-France et recensées dans les données EMEP est présentée dans le tableau 2.2, ainsi que son apparente adéquation avec les données de l’IREP. Seulement un peu moins de 9 kg ( $\sim 28\%$  du total) des émissions sont attribuées à des sources ponctuelles, le reste est donc distribué spatialement comme des sources diffuses. En ce qui concerne le secteur “Industrie manufacturière” du cadastre d’Airparif, l’ensemble des cellules émettrices de cadmium est répertorié dans le Tableau 2.3. L’analyse du cadastre d’Airparif confirme que les émissions de ce secteur d’activité sont principalement liées à des sources ponctuelles. Ce résultat illustre une limite de l’approche développée à partir des données

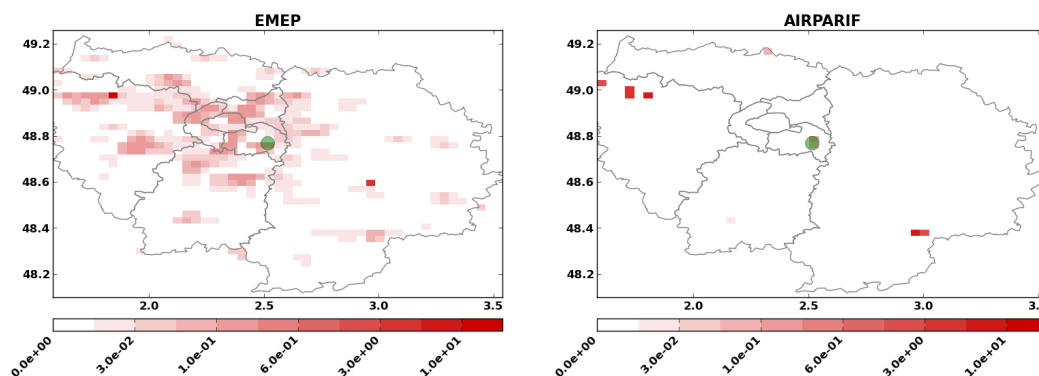


FIGURE 2.9 – Cadastres des émissions de cadmium de l’industrie manufacturière pour l’année 2010 (en kg/an). À gauche le cadastre correspondant à la désagrégation des données EMEP (limité à l’Île-de-France), à droite le cadastre élaboré par Airparif. Le cercle vert indique la localisation du bassin versant de Sucy-en-Brie.

EMEP qui ne permet pas de traiter convenablement les sources ponctuelles non référencées dans l’inventaire des GSPs. Par ailleurs, il apparaît que les données de localisation des GSPs sont parfois approximatives (cf. Tableau 2.2).

La comparaison des GSPs des deux cadastres confirme que la démarche ascendante proposée par Airparif apporte clairement un plus vis-à-vis de l’approche descendante, et permet de disposer d’un cadastre de meilleure qualité a priori. En effet, l’inadéquation des données de l’iREP et des données rapportées par l’EMEP pousse à penser qu’une étude attentive devrait être conduite sur l’absence ou la présence de certaines sources. A ce propos, on peut par exemple citer l’exemple de la cellule N°10688 d’Airparif où les émissions de l’usine d’ITON-SEINE ne sont pas prises en compte dans l’inventaire EMEP tandis que l’expertise d’Airparif a permis d’y associer des émissions qui semblent cohérentes avec son activité.

Tableau 2.2 – Ensemble des grandes sources ponctuelles associées aux secteurs GNFR B et D sur le domaine régional autour du bassin versant de Sucy-en-Brie.

| N° | Coordonnées             | Secteur GNFR | Émissions (en kg) | Comparaison aux données de l'iREP   |
|----|-------------------------|--------------|-------------------|---|
| 1  | 1,820560 ;<br>48,980300 | B            | 5,763             | Les coordonnées pointent sur l'usine Ciments Calcia de Gargenville, 78440. Elle est bien répertoriée à l'iREP mais pas en tant qu'émetteur de cadmium. Cependant, relativement proche de cette localisation (48,987, 1,756), se trouve une usine ALPA (Acierie et Laminoirs de Paris) Riva Acier. Elle est enregistrée à l'iREP comme émettrice de cadmium. Au cours de l'année 2009, dernière donnée disponible, l'iREP rapporte des émissions à hauteur de 12 kg.                                       |
| 2  | 2,945830 ;<br>48,589400 | B            | 1,942             | Deux sociétés sont enregistrées à l'iREP près de cette localisation (Grandpuits-Bailly-Carrois, 77720). Tout d'abord, un site de la société TOTAL Raffinage Marketing qui a priori n'est pas émetteur de cadmium. Ensuite, la seconde, GPN, est enregistrée à l'iREP en tant que fabricant de produits azotés et d'engrais. De la même manière, elle n'est, a priori, pas émettrice de cadmium non plus.  |
| 3  | 2,503610 ;<br>48,770000 | B            | 0,2               | La seule usine enregistrée à l'iREP émettrice de cadmium est l'usine SGD de Sucy-en-Brie (94370). Son activité est dédiée à la fabrication de flaconnage en verre pour le marché pharmaceutique. Selon l'iREP, elle a émis 36 kg de cadmium pendant l'année 2008 (seule donnée annuelle disponible), ce qui est très largement supérieur aux émissions rapportées par l'EMEP qui n'excède pas 0,2 kg.   |
| 4  | 1,762500 ;<br>48,983300 | D            | 1,012             | Les coordonnées pointent la société Linde France, répertoriée à l'iREP en tant que fabricant de produits pharmaceutiques (en l'occurrence de gaz médicaux). Elle n'est cependant pas émettrice de cadmium selon l'iREP. Cette source, tout comme la GSP N°1 est, par contre, très proche de l'usine ALPA (Acierie et Laminoirs de Paris) Riva Acier, située en (48,987, 1,756). Cette dernière est enregistrée à l'iREP comme émettrice de cadmium (12 kg pour l'année 2009, dernière donnée disponible). |

Tableau 2.3 – Ensemble des cellules du cadastre Airparif associées au secteur “Industrie manufacturière” sur le domaine régional autour du bassin versant de Sucy-en-Brie.

| N°    | Coordonnées  | Secteur                  | Émission (kg/an) | Comparaison aux données de l'iREP   |
|-------|--------------|--------------------------|------------------|---|
| 1480  | 2,98 ; 48,39 | Industrie manufacturière | 9,14364          | Dans cette cellule se trouve la SAM Montereau (Montereau-Fault-Yonne, 77130), industrie sidérurgique du groupe Riva Acier. Elle est enregistrée à l'iREP et a émis 11 kg pour l'année 2008 (seule donnée disponible). Ces émissions sont donc tout à fait compatibles avec les données rapportées par l'inventaire d'Airparif.  |
| 2068  | 2,17 ; 48,44 | Industrie manufacturière | 0,0141239        | Dans cette cellule se trouve un unique site enregistré dans l'iREP qui n'est pas émetteur de cadmium. En revanche il est répertorié comme émetteur d'un certain nombre d'autres métaux lourds comme le thallium et le vanadium. Il s'agit de la fonderie Lory.  |
| 6899  | 2,52 ; 48,77 | Industrie manufacturière | 0,2              | Dans cette cellule se trouve la GSP N°3 décrite un peu plus tôt, i.e., l'usine SGD de Sucy-en-Brie (94370) dédiée à la fabrication de flaconnage en verre pour le marché pharmaceutique. Selon l'iREP, elle a émis 36 kg de cadmium pendant l'année 2008 (seule donnée annuelle disponible). On se retrouve avec le même écart entre les données de l'iREP et le cadastre Airparif et avec l'inventaire EMEP (émissions inférieures au kilogramme contre plusieurs dizaines de kilogramme pour l'iREP). |
| 9943  | 1,81 ; 48,98 | Industrie manufacturière | 6,892            | L'usine ALPA (Acierie et Laminoirs de Paris) de Riva Acier se trouve dans cette cellule. L'iREP a enregistré pour cette usine une émission de cadmium de l'ordre de 12 kg pour l'année 2009 (dernière donnée disponible). L'ordre de grandeur de ces émissions est compatible avec les 7 kg émis dans cette cellule.  |
| 10066 | 1,72 ; 48,99 | Industrie manufacturière | 9,36             | A Limay (78520) se trouve une usine de traitement et élimination des déchets dangereux appartenant à la SARP Industries, filiale du groupe Veolia Propreté. Elle est effectivement responsable d'une émission de 16 kg pour l'année 2009 (dernière donnée disponible). Les émissions de cette usine, au vu de son secteur d'activité pourraient plutôt être incluses au secteur “Traitement des déchets”. L'ordre de grandeur des émissions est néanmoins respecté.                                     |
| 10688 | 1,58 ; 49,03 | Industrie manufacturière | 5                | Dans cette cellule se trouve l'usine ITON-SEINE (Bonnières-sur-Seine, 78270), industrie sidérurgique du groupe Riva Acier. Elle est enregistrée à l'iREP mais aucune émission n'est enregistrée en ce qui concerne le cadmium. Cependant, les émissions rapportées par Airparif sont cohérentes avec les émissions des autres aciéries du même groupe.  |
| 11987 | 2,33 ; 49,16 | Industrie manufacturière | 0,086            | Dans cette cellule, à Bruyères-sur-Oise (95820), se trouve deux sociétés enregistrées à l'iREP mais aucune d'entre elle n'est émettrice de cadmium.   |

### Cas des émissions du trafic routier

Les nomenclatures de secteur d’activité GNFR et Airparif se recoupe pour le trafic routier. On s’intéresse ici à des émissions principalement linéiques. Pour ce secteur également les totaux émis sont très proches avec 46 kg pour le cadastre EMEP et 47 kg pour celui d’Airparif. La Figure 2.10 montre que la répartition spatiale est globalement cohérente, les deux champs ont un coefficient de corrélation spatiale de 0,7.

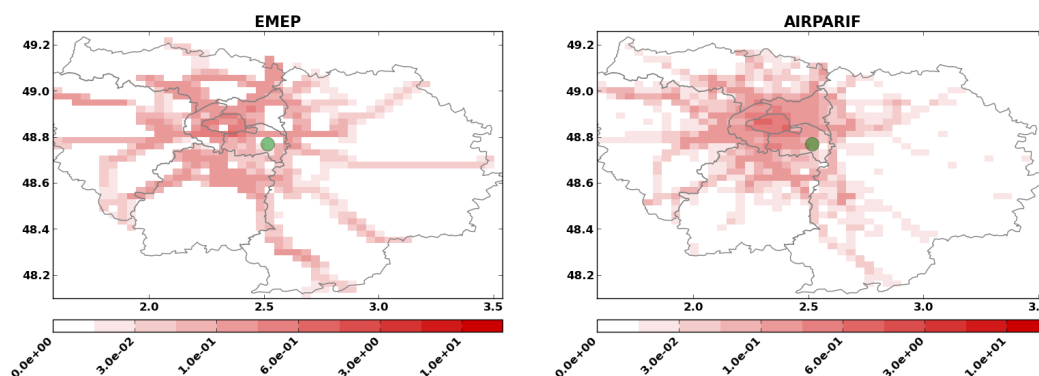


FIGURE 2.10 – Cadastres des émissions de cadmium du trafic routier pour l’année 2010 (en kg/an). À gauche le cadastre correspondant à la désagrégation des données EMEP (limité à l’Île-de-France), à droite le cadastre élaboré par Airparif. Le cercle vert indique la localisation du bassin versant de Sucy-en-Brie.

Il apparaît néanmoins un biais introduit par l’approche descendante via le choix de la clé de répartition. En effet, les émissions du trafic hors du réseau national dans le cadastre effectué à l’aide des données EMEP ont été distribuées sur le réseau national. Ceci est dû à l’absence de données disponibles équivalentes aux TMJA (voir Section 2.1.4) concernant le trafic diffus. Ce biais conduit logiquement à surestimer les émissions le long des axes nationaux et à les sous-estimer dans les zones de trafic diffus.

### 2.3.3 Résultats pour le plomb

La comparaison porte ici encore sur les émissions anthropiques uniquement. Les totaux de masse émise dans les deux cadastres diffèrent beaucoup plus que pour le cadmium. 3 200 kg pour le cadastre AIRPARIF et 13 200 kg pour celui élaboré avec la méthodologie de désagrégation des données EMEP. La Figure 2.11 montre la répartition spatiale des émissions pour les deux cadastres. Malgré le biais global important, le coefficient de corrélation spatiale des deux champs pour l’Île-de-France reste cependant relativement élevé à 0,61. La distribution spatiale des émissions apparaît donc globalement similaire.

Une comparaison plus fine pour des secteurs d’activité pour lesquels un recoupement de périmètre peut se faire semble indiquer des origines diverses au biais global constaté. Les deux secteurs précédemment considérés montrent, comme au global, une surestimation des émissions dans le cadastre EMEP par rapport à celles du cadastre Airparif. Cette surestimation est cependant en relatif plus importante pour le secteur de l’industrie manufacturière, avec 1 500 kg pour le cadastre EMEP contre 121 kg pour Airparif que pour le secteur du trafic routier qui contribue pour 5 880 kg dans le cadastre EMEP et pour 2 271 kg dans celui d’Airparif. Par ailleurs, aucune



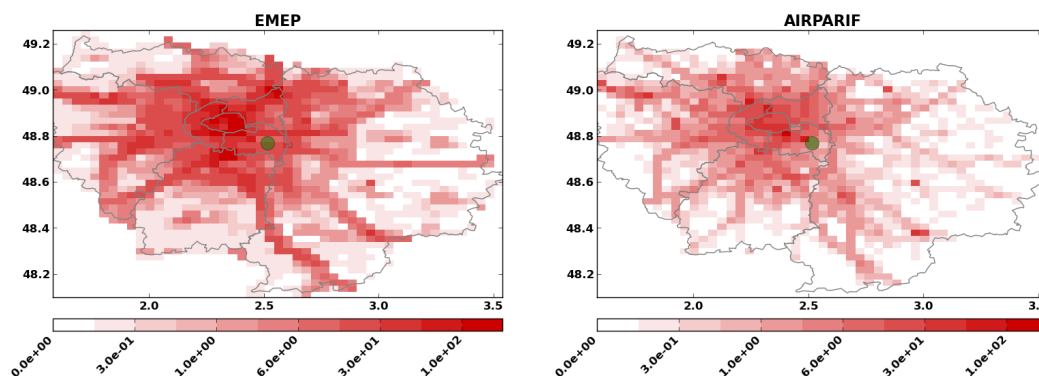


FIGURE 2.11 – Cadastres des émissions anthropiques de plomb pour l’année 2010 (en kg/an). À gauche le cadastre correspondant à la désagrégation des données EMEP (limité ici à l’Île-de-France), à droite le cadastre élaboré par Airparif. Le cercle vert indique la localisation du bassin versant de Sucy-en-Brie.

émission de plomb n’est attribuée au secteur des “Plates-formes aéroportuaires” dans le cadastre Airparif alors qu’il apparaît que les données EMEP attribuent des émissions de 2087 kg au secteur GNFR J (“Civil aviation (domestic landing and take off)”). Comme il semble que l’origine de ces émissions soit clairement identifiée (carburant des avions) on peut penser que le cadastre Airparif présente ici une lacune. Celle-ci ne permet cependant d’expliquer qu’une fraction de la différence globale entre les deux cadastres. Les différences cumulées du secteur de l’industrie manufacturière, du trafic routier et de l’aviation représentent 70 % de l’écart global entre les deux cadastres. Il faut cependant remarquer que pour certains secteurs le cadastre construit à partir des données EMEP sous-estime les émissions du cadastre Airparif. C’est le cas du secteur du “Traitement des déchets”, qui correspond au secteur GNFR N (“Waste incineration”), auquel le cadastre Airparif attribue près de 610 kg alors que les données EMEP ne lui en attribue qu’un peu plus de 15 kg. La surestimation des émissions par le cadastre EMEP n’est donc pas systématique.

### 2.3.4 Conclusion

La comparaison des cadastres construits pour la région Île-de-France à partir d’une désagrégation spatiale des données EMEP aux cadastres élaborés par Airparif pour le plomb et le cadmium a montré :

- Un bon accord global pour le cadmium en terme de quantités émises et de spatialisation.
- Un bon accord global pour le plomb en terme de spatialisation mais un biais important en terme de quantités émises.
- Des différences d’origine multiples lorsque l’analyse est réalisée par secteur d’activité.

Si de nombreux points confirment la plus grande fiabilité du cadastre élaboré par Airparif, l’approche descendante développée ici permet d’accéder à des cadastres qui apparaissent globalement satisfaisant en terme de spatialisation. Ils permettent de plus de bénéficier d’un inventaire cohérent tout le long de la descente d’échelle sur les plans internationaux, nationaux et locaux.

Cette approche a donc été menée afin de réaliser les inventaires aux échelles locales sur l’ensemble des trois bassins versants.

Si une analyse plus exhaustive des différences en terme de quantité globalement émises mériterait d’être menée, particulièrement pour le plomb, ce travail ne faisait pas parti des objectifs du projet INOGEV. On se bornera donc ici aux constats généraux présentés ci-dessus.

# Modélisation du dépôt sec

## Chapitre 3

# Cadre général de la modélisation du dépôt sec

Historiquement, les dépôts atmosphériques ont été étudiés et modélisés pour évaluer l'impact sur les écosystèmes des dépôts acides, de l'eutrophisation ou encore l'impact sanitaire des polluants tels que le mercure ou les polluants organiques persistants (POP), qui s'accumulent dans la chaîne alimentaire. Par conséquent, ces modèles de dépôts atmosphériques peuvent ne pas convenir pour simuler les flux de dépôt dans les zones urbaines. En effet, le milieu urbain est caractérisé par une géométrie complexe, et des surfaces variées. Avec le développement de l'horticulture urbaine (Säumel *et al.*, 2012) et des toits verts (Yang *et al.*, 2008), l'étude du dépôt atmosphérique en milieu urbain est devenu un sujet d'actualité. Le dépôt de polluants en milieu urbain peut aussi entraîner une dégradation des biens culturels et architecturaux (Rabl, 1999). Par ailleurs, le dépôt de polluants atmosphériques contribue aussi à la contamination des eaux pluviales et se retrouve à l'exutoire des bassins versants (Fallah Shorshani *et al.*, 2014).

Parmi l'ensemble des processus de dépôt atmosphérique, on distingue les dépôts dits humides et ceux dits secs. Les dépôts humides comprennent plusieurs processus, et on fait généralement la distinction entre les dépôts humides associés aux précipitations (pluie, neige, grêle) et les dépôts humides occultes, associés à la sédimentation de gouttelettes de brouillard par exemple. Le dépôt humide ne dépend donc pas de la surface de dépôt, et n'est donc pas particulier aux zones urbaines. Les dépôts secs englobent l'ensemble des dépôts par des processus "secs", c'est-à-dire des processus qui ne dépendent pas de précipitations. Contrairement au dépôt humide, le dépôt sec dépend grandement de la nature des surfaces de dépôt. Il y a donc besoin d'un modèle de dépôt sec prenant en compte la géométrie et les caractéristiques du milieu urbain. Actuellement, les modèles de dépôts secs sont trop simples pour une application en milieu urbain. En effet, la plupart des modèles ont été développés pour des surfaces de type couvert végétal, sol nu ou encore plan d'eau. Ils représentent la canopée urbaine avec un seul paramètre (une longueur de rugosité); par conséquent, ces modèles ne parviennent pas à représenter la complexité des processus de dépôt sec sur une canopée urbaine.

### 3.1 Cadre théorique de l'écoulement réactif

La dispersion d'un polluant (ou d'une espèce chimique en général) dans l'air, ou dans un milieu de manière générale, est décrite à l'aide des équations dites de Navier-Stokes réactives.

Néanmoins, on utilise généralement en dispersion atmosphérique l'hypothèse dite de dilution, qui consiste à découpler la dynamique de l'écoulement de la concentration des polluants. La présence des polluants n'a alors pas d'effet significatif sur l'écoulement du fluide, notamment sur la turbulence. Ainsi, les champs dynamiques (vent, température, humidité ...) peuvent être calculés a priori, indépendamment des polluants présents dans la couche atmosphérique, qui sont, eux, caractérisés par leur concentration,  $c$ , définie par exemple comme étant la masse de polluant présente par unité de volume de fluide. L'évolution de la concentration dans l'écoulement est décrite alors par l'équation d'advection-diffusion au sein du fluide porteur :

$$\underbrace{\frac{\partial c}{\partial t}}_I + \underbrace{\operatorname{div}(\vec{u}c)}_{II} = \underbrace{\operatorname{div}(K_{\text{moléculaire}}\nabla c)}_{III} + \underbrace{S}_{IV} \quad (3.1)$$

On peut identifier chaque terme comme :

- I Variation temporelle de la concentration (en  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{s}^{-1}$ );
- II Advection du polluant par la masse d'air environnante se déplaçant à la vitesse  $\vec{u}$  (en  $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ );
- III Diffusion par agitation moléculaire, ou brownienne, quantifiée par le coefficient de diffusivité  $K_{\text{moléculaire}}$  (en  $\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$ );
- IV Terme de source ou perte. On peut notamment y inclure le terme de lessivage par les nuages ou la pluie, le terme de dépôt sec, ou encore le terme de réaction chimique.

La simulation des équations instantanées de Navier-Stokes reste, pour l'instant, limitée à des écoulements faiblement turbulents. On s'intéresse alors plutôt aux équations satisfaites par les quantités moyennes (au sens de Reynolds). Pour cela, on décompose chaque champ  $\Psi$  en une moyenne  $\bar{\Psi}$  et une fluctuation  $\Psi'$  comme :

$$\Psi = \bar{\Psi} + \Psi' \quad (3.2)$$

Cette décomposition satisfait certaines propriétés :

$$\forall (\Psi, \Phi), \lambda \text{ constante} \quad \left\{ \begin{array}{l} \bar{\Psi}' = 0 \\ \lambda \bar{\Psi} = \lambda \bar{\Psi} \\ \frac{\partial \bar{\Psi}}{\partial s} = \frac{\partial \bar{\Psi}}{\partial s} \\ \bar{\Psi}\Phi = \bar{\Psi}\Phi \end{array} \right. \quad (3.3)$$

On réécrit ensuite les équations de Navier-Stokes avec cette nouvelle décomposition. On parle alors souvent de modèle RANS (Reynolds Averaged Navier Stokes). Ces modèles font apparaître des corrélations doubles, qui sont inconnues, via les termes non linéaires comme  $\Psi_1\Psi_2$  :

$$\begin{aligned} \overline{\Psi_1\Psi_2} &= \overline{(\bar{\Psi}_1 + \Psi'_1) \times (\bar{\Psi}_2 + \Psi'_2)} \\ &= \bar{\Psi}_1\bar{\Psi}_2 + \overline{\Psi'_1\Psi'_2} \end{aligned} \quad (3.4)$$

On obtient ainsi le terme de corrélation  $\overline{\Psi'_1\Psi'_2}$  que l'on ne peut directement résoudre. Il est alors nécessaire de faire appel à des fermetures, qui peuvent par exemple relier les corrélations doubles, aux moyennes simples. Dans notre cas, si on applique l'opérateur de moyenne de Reynolds à l'équation (3.1), on obtient :

$$\frac{\partial \bar{c}}{\partial t} + \operatorname{div}(\bar{u}\bar{c}) = \operatorname{div}(K_{\text{moléculaire}}\nabla\bar{c}) + \bar{S} - \operatorname{div}(\overline{c'\vec{u}'}) \quad (3.5)$$

Les termes linéaires sont transposés tels quels dans l'équation moyennée, tandis que les termes non linéaires font apparaître des corrélations (moyenne du produit des fluctuations en l'occurrence). Il est alors nécessaire de “fermer” cette équation moyenne en explicitant le flux turbulent  $\overline{c'u'}$ . Cette explicitation est également nécessaire pour exprimer le flux de dépôt sec qui dépend pour partie du flux turbulent.

## 3.2 Modélisation du dépôt sec

### 3.2.1 Revue historique et phénoménologie

Le transfert de polluants depuis l'atmosphère vers la surface de dépôt est gouverné par un grand nombre de processus, qu'ils soient chimiques, physiques ou biologiques. Pour simplifier ce problème, la notion de vitesse de dépôt a été introduite par Gregory (1945). Elle relie le flux,  $F_c$  (en  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ) à la concentration du polluant,  $c$  (en  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) à une certaine hauteur dite de référence  $z_{\text{ref}}$  (en m), soit :

$$v_d(z_{\text{ref}}) = -\frac{F_c(z_{\text{ref}})}{c(z_{\text{ref}})} \quad (3.6)$$

Dans les modèles opérationnels de prévision de la qualité de l'air (comme ceux de Slinn, 1982 ou de Zhang *et al.*, 2001), la vitesse de dépôt est généralement donnée par une formulation dite “résistive” (par analogie à un circuit électrique) qui décrit le transfert de masse de l'atmosphère vers le sol comme un processus en plusieurs étapes.

- La première étape est représentée par une résistance aérodynamique. Cette résistance au transfert est élevée dans une atmosphère stable où la dispersion turbulente est faible ; elle est faible dans une atmosphère instable où la dispersion turbulente est importante et peut donc transporter de manière efficace les polluants vers la surface. Cette résistance est indépendante des propriétés physico-chimiques du polluant considéré. Elle est par contre fortement dépendante de la nature de la surface à travers son influence sur l'écoulement. La représentation classique de la résistance aérodynamique à travers l'approche par rugosité et ses origines sont rappelées dans le présent chapitre. C'est sur l'amélioration de la représentation de cette étape que la majeure partie de l'effort de développement de modèle a porté dans cette thèse. Le chapitre 4 présente ces nouveaux développements.
- La deuxième étape est représentée par une résistance de diffusion. Cette résistance dépend principalement du coefficient de diffusion moléculaire pour les polluants gazeux et donc des propriétés physico-chimiques de la molécule en question. Pour une particule, le transfert dans la couche de surface dépend de la diffusion brownienne et de différents mécanismes microphysiques en proximité de la surface. Les plus souvent cités sont les processus d'impaction et d'interception, mais d'autres processus pourraient jouer un rôle important selon les surfaces considérées (Roupsard, 2013), notamment en milieu urbain. Le coefficient de diffusion brownienne d'une particule décroît avec la taille de la particule alors que les transferts par impaction et interception croissent avec la taille et/ou la masse de la particule.
- Pour les polluants gazeux, on ajoute une troisième résistance qui correspond au transfert final de la molécule de l'air à la surface. Cette dernière étape dépend des propriétés physico-chimiques du polluant considéré.

Pour les particules atmosphériques pesantes, la vitesse de sédimentation se conjugue aux autres mécanismes de transfert.

La vitesse de dépôt sec est alors simplement formulée comme la composition de ces deux ou trois résistances et éventuellement de la vitesse de sédimentation.

Par exemple, pour les gaz, la vitesse de dépôt sec s'exprime ainsi :

$$v_d = (R_a + R_b + R_c)^{-1} \quad (3.7)$$

avec  $R_a$  la résistance aérodynamique,  $R_b$  la résistance de couche quasi-laminaire et  $R_c$  la résistance de la canopée. Ces résistances au transfert sont exprimées en  $\text{s.m}^{-1}$ .

Pour les particules le modèle de Zhang *et al.* (2001) se base sur la même approche que le modèle de Slinn (1982), tout en simplifiant un certain nombre de processus. Dans ces modèles la vitesse de dépôt est calculée selon une formulation résistive :

$$v_d = v_s + \frac{1}{R_a + R_s} \quad (3.8)$$

avec  $R_s$ , la résistance de surface (en  $\text{s.m}^{-1}$ ), qui rend compte des processus de diffusion dans la sous-couche visqueuse et  $v_s$  la vitesse de sédimentation (en  $\text{m.s}^{-1}$ ). Les simulations réalisées pour les besoins du projet INOGEV n'ayant porté que sur des polluants associés à la phase particulaire, dans la suite ne sont présentés que les paramétrisations relatives aux particules atmosphériques.

### 3.2.2 Sédimentation

La sédimentation d'une particule est le mécanisme de dépôt des particules résultant de l'équilibre de la force de gravitation, de la poussée d'Archimède et des forces de frottement. À faible vitesse (ou en écoulement laminaire), la force de viscosité s'écrit :

$$F_f = K \mu_{\text{air}} v \quad (3.9)$$

avec  $K$  un coefficient géométrique (en m) dépendant de la forme du corps,  $\mu_{\text{air}}$  la viscosité dynamique du fluide (en  $\text{kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$ ), ici l'air, et  $v$  la vitesse de chute de la particule (en  $\text{m.s}^{-1}$ ). Pour une sphère de diamètre  $d_p$  (en m),  $K = 3\pi d_p$ . On a donc :

$$F_f = 3\pi \mu_{\text{air}} d_p v \quad (3.10)$$

Cette loi exprimant la force de frottement d'un fluide sur une sphère est aussi appelée loi de Stokes. Elle n'est a priori valable que pour un nombre de Reynolds très faible ( $\text{Re} < 0,1$ ), et si la sphère est suffisamment loin de tout obstacle (distance généralement considérée comme au moins dix fois supérieure au rayon de la sphère). La résultante des forces de gravitation et d'Archimède, pour une sphère de diamètre  $d_p$ , est définie telle que :

$$F_g = \frac{1}{6} \pi d_p^3 (\rho_{\text{air}} - \rho_p) g \quad (3.11)$$

avec  $\rho_p$  la densité de la particule (en  $\text{kg.m}^{-3}$ ),  $\rho_{\text{air}}$  la densité de l'air (en  $\text{kg.m}^{-3}$ ), et  $g$  la constante de gravitation (en  $\text{m.s}^{-2}$ ). Pour les particules que l'on considère la poussée d'Archimède peut-être largement négligée par rapport à la gravité ( $\rho_{\text{air}} \ll \rho_p$ ).

À l'équilibre des forces de gravité et de frottement, les particules atteignent une vitesse de chute limite, dite vitesse de sédimentation,  $v_s$  (en  $\text{m.s}^{-1}$ ) :

$$v_s = \frac{d_p^2 g \rho_p}{18 \mu_{\text{air}}} \quad (3.12)$$

Pour les particules les plus fines ( $\leq 20 \mu\text{m}$  de diamètre), la formule de Stokes est modifiée pour permettre d'accéder à la vitesse de dépôt due à la gravitation ou sédimentation (Seinfeld et Pandis, 1998a) :

$$v_s = \frac{d_p^2 g \rho_p C_c}{18\mu_{\text{air}}} \quad (3.13)$$

avec  $C_c$  le facteur de correction de Cunningham qui prend en compte les effets de glissement des particules plus fines. Il s'exprime ainsi :

$$C_c = 1 + \frac{2\lambda_{\text{air}}}{d_p} \left[ 1,257 + 0,4 \exp\left(-\frac{1,1d_p}{2\lambda_{\text{air}}}\right) \right] \quad (3.14)$$

### 3.2.3 Résistance de surface

La résistance de surface qui a été utilisée dans ces travaux est basée sur la formulation proposée par Zhang *et al.* (2001). Dans ce modèle, cette résistance de surface dépend de l'efficacité de captation de la surface qui fait intervenir notamment la taille des particules, les conditions de turbulence, et des propriétés de la surface :

$$R_s = \frac{1}{3u_* (E_{\text{in}} + E_{\text{im}} + E_{\text{b}}) R_R} \quad (3.15)$$

où  $u_*$  est la vitesse de friction (en  $\text{m.s}^{-1}$ ),  $R_R$  est le coefficient de rebond,  $E_{\text{in}}$ ,  $E_{\text{im}}$  et  $E_{\text{b}}$  sont les efficacités de collecte respectivement par interception, par impaction et par diffusion brownienne.

#### Diffusion brownienne

Le mouvement brownien traduit l'effet de l'agitation thermique de l'air sur les particules. Il génère une diffusion pour les particules les plus petites. Dans le cas du dépôt, la surface est considérée comme un puits parfait (la concentration à la paroi est donc nulle). Il s'établit alors un flux de particules, qui vont migrer par diffusion brownienne vers la paroi (voir Figure 3.1).

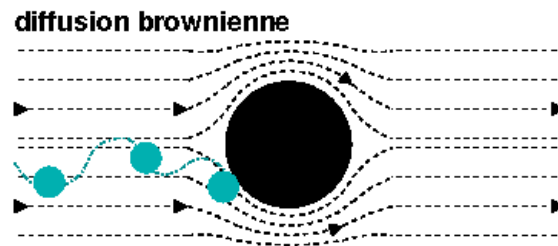


FIGURE 3.1 – Illustration schématique du processus de collecte par diffusion brownienne. La particule (sphère bleue) est transportée par l'écoulement quasi-laminaire puis captée par une rugosité de la surface (sphère noire) par diffusion brownienne.

L'efficacité de collecte par diffusion brownienne  $E_{\text{b}}$  s'exprime en fonction du nombre de Schmidt  $Sc$ , caractérisant la capacité des particules à diffuser dans un milieu visqueux. La



dépendance à la nature de la surface de dépôt est paramétrée au travers d'un coefficient  $\gamma$  qui est tabulé par Zhang *et al.* (2001) selon l'occupation des sols et la saison :

$$E_b = Sc^{-\gamma} = \left( \frac{\nu_{\text{air}}}{D_B} \right)^{-\gamma} \quad (3.16)$$

avec  $\nu_{\text{air}}$  la viscosité cinématique de l'air (en  $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$ ) et  $D_B$  le coefficient de diffusion brownienne de la particule (en  $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$ ).

### Impaction

Si l'inertie de la particule est suffisamment importante alors celle-ci peut être amenée à se déposer sur la paroi par un mécanisme dit par impaction inertielle. En effet, du fait de son inertie, une particule transportée par un fluide peut être amenée à ne pas suivre les changements de direction de l'écoulement (ou avec retard), et venir impacter un obstacle sur son chemin (voir Figure 3.2).

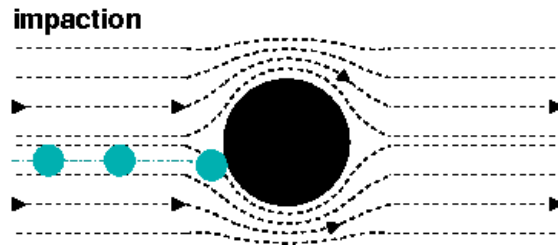


FIGURE 3.2 – Illustration schématique du processus de collecte par impaction. La particule est transportée par l'écoulement quasi-laminaire puis sort de sa ligne de courant du fait de son inertie et impacte une rugosité de la surface.

L'efficacité de collecte par impaction est paramétrisée comme fonction du nombre de Stokes,  $St$ , qui rend compte de l'aptitude d'une particule à suivre ou sortir de la ligne de courant de l'écoulement. La dimension caractéristique  $L$  des obstacles (en m), nécessaire au calcul de  $St$  pour les surfaces rugueuses, est un paramètre du modèle de Zhang *et al.* (2001) dépendant de l'occupation des sols et de la saison :

$$\begin{cases} St = v_s \frac{u_*}{gL} & \text{pour les surfaces "rugueuses"} \\ St = v_s \frac{u_*}{g\nu_{\text{air}}} & \text{pour les surfaces "lisses"} \end{cases} \quad (3.17)$$

L'efficacité de collecte par impaction s'exprime tel que :

$$E_{\text{im}} = \left( \frac{St}{\alpha + St} \right)^2 \quad (3.18)$$

où  $\alpha$  est un paramètre tabulé par Zhang *et al.* (2001).

### Interception

En l'absence d'autres forces extérieures (ou toutefois lorsqu'elles sont négligeables devant la force de traînée), une particule suit parfaitement les lignes de courant de l'écoulement. Si du fait de sa taille elle rencontre toutefois un obstacle, ce qui est d'autant plus probable que sa taille est grande, alors elle se déposera par interception sur l'obstacle (voir Figure 3.3).

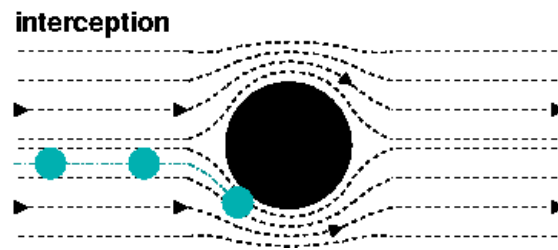


FIGURE 3.3 – Illustration schématique du processus de collecte par interception. La particule est transportée par l'écoulement quasi-laminaire et suit sa ligne de courant mais est captée par une rugosité de la surface du fait de son encombrement.

Le coefficient de collecte par interception, tel que défini par Zhang *et al.* (2001), est quant à lui directement fonction du rapport de la taille de la particule et de la taille caractéristique des obstacles :

$$E_{\text{in}} = \frac{1}{2} \left( \frac{d_p}{L} \right)^2 \quad (3.19)$$

### Rebond

Pour une surface humide, on considère que les particules qui entrent en contact avec la surface y adhèrent. Dans ce cas, le coefficient de rebond est donc maximal ( $R_R = 1$ ). Dans les autres cas ce coefficient est défini à partir du nombre de Stokes par :

$$R_R = \exp \left( -\sqrt{\text{St}} \right) \quad (3.20)$$

### Vitesse de dépôt selon le modèle de Zhang

La Figure 3.4 présente la courbe dite en “v” des vitesses de dépôt sec calculées avec le modèle de Zhang *et al.* (2001) pour un couvert de type herbe, et ce pour différentes valeurs de la vitesse de friction. On peut y voir les différents processus prédominants selon la taille de particules concernées.

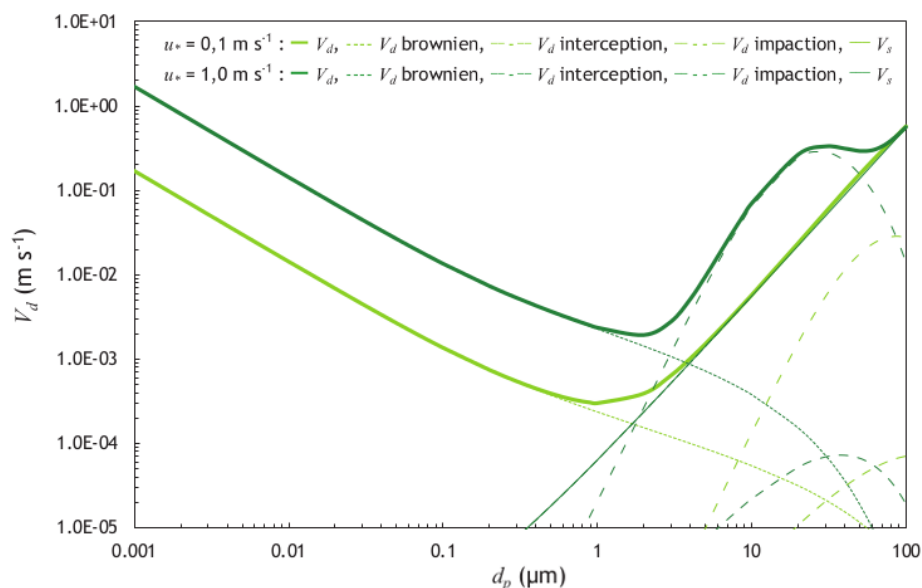


FIGURE 3.4 –  $v_d$  calculée pour l’herbe selon le modèle de Zhang *et al.* (2001) (Figure tirée de Roupsard, 2013) en omettant la résistance aérodynamique.

### 3.2.4 Adaptation de la résistance de surface

L’équipe de l’IRSN participant au projet INOGEV a mis à notre disposition des résultats issus d’expériences en soufflerie. Roupsard (2013) a montré que les phénomènes d’impaction et d’interception étaient sous-estimés par rapport au phénomène de diffusion brownienne dans le modèle de Zhang *et al.* (2001). Il a ainsi montré que la surestimation du modèle sur les surfaces urbaines était vraisemblablement imputable à la surestimation du dépôt par diffusion brownienne.

Roupsard (2013) a donc conduit des expérimentations sur trois types de surfaces caractéristiques du milieu urbain : le verre, l’enduit et l’herbe. Une large gamme de vitesses de vent, et de conditions de turbulence a pu être générée en soufflerie. Le diamètre aérodynamique médian en masse de la distribution d’aérosols lors de ces expérimentations est de  $0,27 \mu\text{m}$ , c’est-à-dire une taille représentative du mode d’accumulation des particules atmosphériques. La masse volumique de l’aérosol est considérée égale à  $1000 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ . Une méthode de mesure indirecte se basant sur des mesures de concentrations pour estimer le flux de dépôts a été utilisée lors de ces expérimentations. Ces concentrations sont mesurées 10 mm au-dessus des surfaces horizontales caractéristiques du milieu urbain.

Par ailleurs, toutes les valeurs nécessaires au calcul de la résistance selon le modèle de Zhang *et al.* (2001) sont tabulées dans Roupsard *et al.* (2013) telles que la hauteur de rugosité, la vitesse de friction, la vitesse de vent moyen...

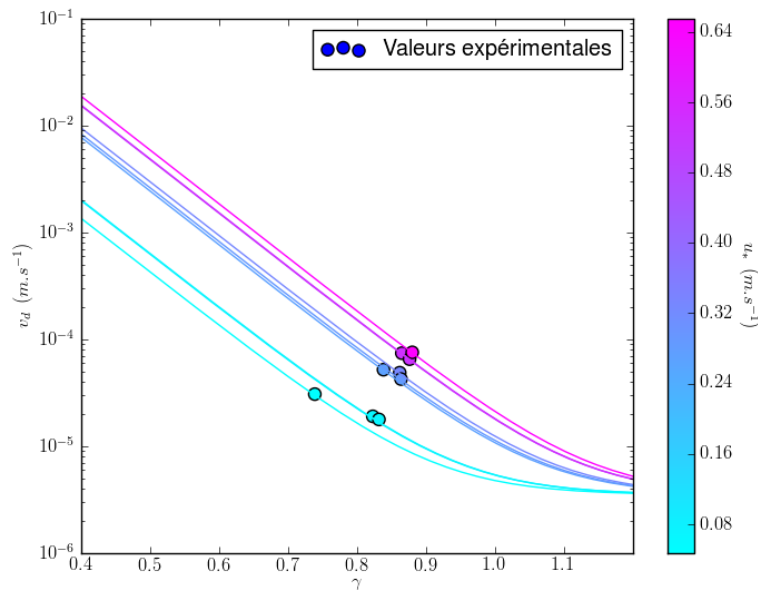
Selon l’hypothèse que la diffusion brownienne est le principal phénomène qui pose problème dans le modèle de Zhang *et al.* (2001), nous allons modifier le coefficient de collecte par diffusion brownienne  $E_b$  au travers du coefficient empirique  $\gamma$ .

Ainsi, les vitesses de dépôts pour l’ensemble des conditions expérimentales ont été calculées, et une valeur de  $\gamma$  en a été déduite pour chaque cas. La Figure 3.5 représente le tracé des vitesses de dépôt en fonction des différentes conditions expérimentales pour la surface de type enduit. On a ainsi généré des séries de valeurs de  $\gamma$ . Zhang *et al.* (2001) ne rapporte qu’une seule valeur de  $\gamma$  par

Tableau 3.1 – Comparatif des valeurs moyennes et médianes de  $\gamma$  issues des travaux de Roupsard *et al.* (2013).

| Type de surface | Moyenne  |                        | Médiane  |                        |
|-----------------|----------|------------------------|----------|------------------------|
|                 | $\gamma$ | écart aux observations | $\gamma$ | écart aux observations |
| Herbe           | 0,675    | 2,2 %                  | 0,683    | 2,4 %                  |
| Enduit          | 0,842    | 2,9 %                  | 0,864    | 3,5 %                  |
| Verre           | 0,902    | 2,2 %                  | 0,864    | 2,1 %                  |

occupation des sols, ne dépendant pas des conditions météorologiques. Le Tableau 3.1 rapporte le comparatif des valeurs moyennes et médianes, ainsi que leur écart aux valeurs expérimentales. Ainsi pour avoir une valeur représentative de  $\gamma$  par couvert, il a été décidé de choisir la valeur moyenne de ces séries, jugée plus significative.

FIGURE 3.5 – Vitesses de dépôts secs en fonction de différentes conditions expérimentales pour une surface de type “enduit” (Source : Roupsard *et al.*, 2013).

La Figure 3.6 montre l’impact pour l’herbe de l’utilisation des valeurs de  $\gamma$  déterminée à partir des expérimentations de Roupsard *et al.* (2013). Le “recalage” ainsi effectué conduit bien à diminuer l’efficacité de dépôt liée à la diffusion brownienne.

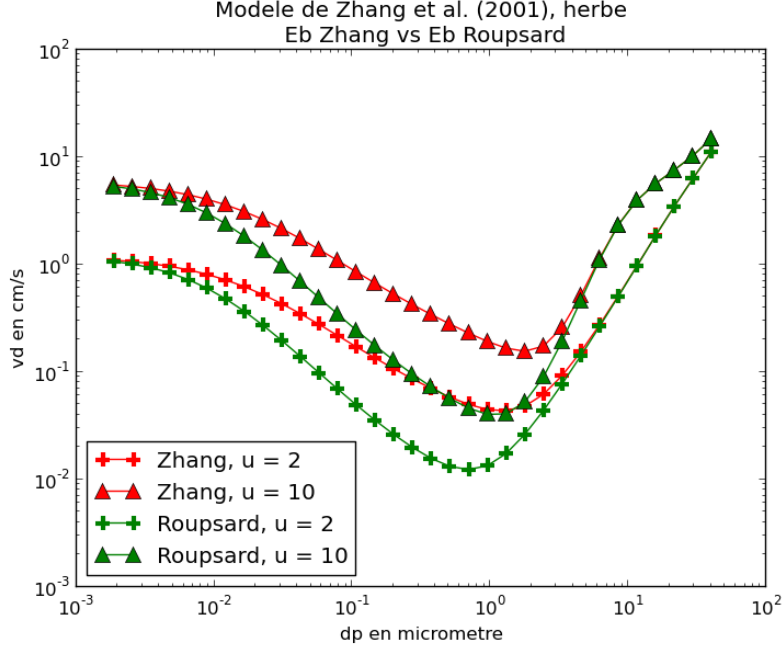


FIGURE 3.6 – Vitesses de dépôts secs en utilisant la valeur du coefficient  $\gamma$  proposée dans Zhang *et al.* (2001) et celle déterminée à partir des expérimentations de Roupsard *et al.* (2013).

### 3.2.5 Expression classique de la résistance aérodynamique

Pour exposer les limites de la représentation classique de la résistance aérodynamique pour le milieu urbain nous rappelons ci-dessous l'ensemble des hypothèses sous-jacentes.

#### Tension de Reynolds

Par la suite on pose  $\Psi = \bar{\Psi} + \Psi'$  où  $\bar{\Psi}$  désigne la moyenne et  $\Psi'$  désigne les fluctuations de la variable  $\Psi$ . Dans le cadre de l'approximation de Boussinesq les équations RANS de conservation de la quantité de mouvement pour l'écoulement atmosphérique peu visqueux peu être formulées telles que :

$$\frac{\partial \bar{u}}{\partial t} + \bar{u} \frac{\partial \bar{u}}{\partial x} + \bar{v} \frac{\partial \bar{u}}{\partial y} + \bar{w} \frac{\partial \bar{u}}{\partial z} - f \bar{v} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial \bar{p}}{\partial x} - \frac{\partial \bar{u}'^2}{\partial x} - \frac{\partial \bar{u}'v'}{\partial y} - \frac{\partial \bar{u}'w'}{\partial z} \quad (3.21)$$

$$\frac{\partial \bar{v}}{\partial t} + \bar{u} \frac{\partial \bar{v}}{\partial x} + \bar{v} \frac{\partial \bar{v}}{\partial y} + \bar{w} \frac{\partial \bar{v}}{\partial z} - f \bar{u} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial \bar{p}}{\partial y} - \frac{\partial \bar{v}'u'}{\partial x} - \frac{\partial \bar{v}'^2}{\partial y} - \frac{\partial \bar{v}'w'}{\partial z} \quad (3.22)$$

$$\frac{\partial \bar{w}}{\partial t} + \bar{u} \frac{\partial \bar{w}}{\partial x} + \bar{v} \frac{\partial \bar{w}}{\partial y} + \bar{w} \frac{\partial \bar{w}}{\partial z} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial \bar{p}}{\partial z} - \frac{\partial \bar{w}'u'}{\partial x} - \frac{\partial \bar{w}'v'}{\partial y} - \frac{\partial \bar{w}'^2}{\partial z} - g \quad (3.23)$$

avec  $u$ ,  $v$  et  $w$  les composantes du vent selon les directions  $x$ ,  $y$  et  $z$ ,  $p$  la pression,  $f$  le paramètre de Coriolis et  $g$  la gravité. Ces équations font apparaître des termes de tension turbulente, ou tension de Reynolds, qui représentent le transport de quantité de mouvement par les

fluctuations de vitesse. Le tenseur de Reynolds  $\mathcal{R}$  s'écrit ainsi :

$$\overline{\overline{\mathcal{R}}} = \begin{pmatrix} \overline{u'^2} & \overline{u'v'} & \overline{u'w'} \\ \overline{v'u'} & \overline{v'^2} & \overline{v'w'} \\ \overline{w'u'} & \overline{w'v'} & \overline{w'^2} \end{pmatrix} \quad (3.24)$$

Ce tenseur introduit un certain nombre d'inconnues supplémentaires. On est donc à nouveau confronté à un nouveau problème de fermeture. Il est nécessaire d'introduire des modèles pour ces inconnues supplémentaires. Il convient de paramétriser les termes non linéaires qui sont apparus suite à l'opération de moyennage (au sens de Reynolds) des équations de Navier et Stokes. On distingue généralement les différentes fermetures par leur ordre.

- Fermeture d'ordre 0

Ici, aucune quantité n'est pronostiquée par une équation. Toutes les quantités physiques sont paramétrées.

- Fermeture d'ordre 1 – Modèles à zéro équation de transport

Dans cette catégorie de modèles, on utilise une analogie entre le transport diffusif et le transport turbulent. En effet, à une quantité dont on fait le bilan, on associe généralement un flux proportionnel au gradient de cette quantité. C'est le cas du modèle de Prandtl, basé sur l'hypothèse de Boussinesq (cf. Section suivante), qui introduit une viscosité turbulente  $\nu_t$  par analogie avec la "vraie" viscosité.

- Fermeture d'ordre 1 – Modèles à équation(s) de transport

Pour éviter les problèmes liés à la modélisation de la longueur de mélange, on peut retenir l'idée d'une viscosité turbulente mais avec une expression plus sophistiquée des échelles de vitesse et de longueur. Par exemple, le modèle  $k-\epsilon$  est basé sur les équations de conservation de l'énergie cinétique turbulente  $k$  :

$$k = \frac{1}{2} \left( \overline{u'^2} + \overline{v'^2} + \overline{w'^2} \right) \quad (3.25)$$

et du taux de dissipation de l'énergie cinétique  $\epsilon$ . On peut aussi citer les modèles dits  $k-\omega$  ( $\omega$  étant la fréquence de turbulence ou taux spécifique de dissipation de l'énergie cinétique turbulente) ou encore  $k-l$  ( $l$  est une longueur de mélange).

- Fermeture d'ordre supérieur

Dans le cadre des fermetures d'ordre 2 ou supérieur, la modélisation ne porte plus directement sur les contraintes turbulentes, mais sur certains termes présents dans leurs équations de transport.

### Hypothèse de Boussinesq pour les tensions de Reynolds

Les représentations des flux de dépôt sec appliqués dans les modèles de chimie-transport s'appuient sur la loi proposée par Boussinesq (1877) pour quantifier le tenseur des contraintes de Reynolds. Il exprime le tenseur des tensions turbulentes par analogie avec le tenseur des contraintes visqueuses, ce qui revient à exprimer le fait que la contrainte de Reynolds se comporte comme toutes les contraintes visqueuses.

$$\mathcal{R}_{ij} = -2\nu_t S_{ij} + \frac{2}{3}k\delta_{ij} \quad (3.26)$$

où  $\nu_t$  est la viscosité turbulente (supposée uniforme dans tous l'écoulement) et  $k$  est l'énergie cinétique des fluctuations, aussi appelée énergie cinétique turbulente (TKE). Les composantes du tenseur des taux de déformations (tenseur symétrique) s'expriment ainsi :

$$S_{ij} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial \overline{u_i}}{\partial x_j} + \frac{\partial \overline{u_j}}{\partial x_i} \right) \quad (3.27)$$

Pour  $i \neq j$ , on a donc :

$$\overline{u'_i u'_j} \stackrel{\text{def}}{=} \mathcal{R}_{ij} = -2\nu_t S_{ij} = -\nu_t \left( \frac{\partial \overline{u_i}}{\partial x_j} + \frac{\partial \overline{u_j}}{\partial x_i} \right) \quad (3.28)$$

Il faut garder en tête que cette fermeture repose sur un certain nombre d'hypothèses qui ne sont pas vérifiées à l'intérieur de la sous-couche de la canopée urbaine (paragraphe 3.2.5).

### Hypothèse de la couche limite de surface

La partie basse de la couche limite atmosphérique pour laquelle l'effet de la force de Coriolis devient négligeable est la zone d'écoulement directement perturbée par la proximité de la surface. Elle est appelée couche limite de surface ("surface layer"). Elle n'est pas spécifique aux milieux hétérogènes, mais dans leur cas, son extension peut être importante. Au-dessus d'une zone présentant des rugosités de surface importantes, comme en milieu urbain par exemple, elle s'étend sur plusieurs dizaines de mètres au dessus du sol. Cette couche limite de surface en milieu urbain peut être décomposée en trois sous-couches :

- La sous-couche la plus haute est appelée couche limite inertielle ("inertial sublayer"). Elle peut être confondue, en milieu homogène (zone rurale par exemple), à l'ensemble de la couche limite de surface (Rotach, 1999). Dans cette sous-couche, l'écoulement est structuré comme si la surface sous-jacente était homogène ; en fait les tourbillons générés par les éléments rugueux, plus petits que les grands tourbillons générés à partir d'une certaine hauteur dans la couche de surface, sont absorbés par le mélange turbulent. Cette couche correspond à la "couche à flux constant" introduite ci-dessous. Les profils de vitesse (mais aussi de température et d'humidité spécifique) sont logarithmiques pour le régime neutre, pseudo-logarithmique pour les régimes stable et instable.
- La sous-couche rugueuse ("roughness sublayer"), est la sous-couche, située juste au dessus de la sous-couche de la canopée urbaine. Cette sous-couche, sans obstacle, n'en est pas moins directement influencée par les éléments rugueux au-dessous d'elle. Les sillages générés par les éléments rugueux interagissent entre eux et créent des structures turbulentes tridimensionnelles complexes. Selon Grimmond et Oke (1999), cette sous-couche peut avoir une extension de l'ordre de 2 à 5 fois la hauteur moyenne des obstacles rugueux.
- Et enfin la sous-couche de la canopée urbaine ("urban canopy sublayer") est la couche la plus proche du sol, où se trouvent les obstacles.

Si on invoque les hypothèses de couche limite homogène horizontalement et stationnaire alors on montre en simplifiant les Équations 3.21 et 3.22 qu'il existe une couche d'atmosphère à proximité de la surface, dite "à flux constant", dans laquelle les tensions turbulentes varient peu avec l'altitude. Il en découle que la direction du vent varie également peu avec l'altitude. On se place dans un repère tel que l'axe  $x$  soit dans la direction de l'écoulement et l'on introduit la vitesse de friction  $u_*$  telle que :

$$\overline{u'w'}(z) \simeq \overline{u'w'}(0) = -u_*^2 \quad (3.29)$$

Dans ce repère l'expression du flux turbulent vertical de vitesse de vent se simplifie en :

$$\overline{u'w'} = -\nu_t \frac{\partial \bar{u}}{\partial z} \quad (3.30)$$

On peut remarquer que  $\nu_t$  est homogène au produit d'une vitesse par une longueur, suggérant d'écrire, par analogie avec le libre parcours moyen en théorie cinétique des gaz :

$$\nu_t \propto u_t \cdot l_m \quad (3.31)$$

où  $u_t$  et  $l_m$  représentent la vitesse caractéristique et la longueur de mélange de l'agitation turbulente. Prandtl (1925) suggéra ce concept d'une longueur de mélange,  $l_m$  (qui représenterait la dimension des tourbillons qui mélangeraient le plus efficacement), reliant la viscosité turbulente aux gradients de vitesse moyenne. Ce qui donnerait, pour un écoulement plan :

$$\nu_t = l_m^2 \left| \frac{\partial \bar{u}}{\partial z} \right| \quad (3.32)$$

Ce modèle est applicable au voisinage des parois, où le gradient transversal de la composante longitudinale de la vitesse est prépondérante. La longueur de mélange est alors généralement choisie proportionnelle à la distance à la paroi, suivant une loi empirique :

$$l_m = \kappa z \quad (3.33)$$

avec  $\kappa$  la constante de von Karman égale à 0,4. La formulation de la longueur de mélange présentée dans l'équation 3.33 peut être étendue pour les régimes non neutres. En effet, l'impact du régime de stabilité peut être pris en compte en changeant la taille des tourbillons générés :

$$l_m = \frac{\kappa z}{\Phi_m} \quad (3.34)$$

où  $\Phi_m$  est un paramètre sans dimension relié au régime de stabilité (Dyer et Hicks, 1970; Businger *et al.*, 1971). Par la suite, et par un souci de clarté, seules les formulations en régime neutre seront présentées. En introduisant le modèle de Prandtl dans l'Équation 3.30 et en utilisant la valeur limite  $u_*$  on écrit le gradient vertical de la vitesse moyenne horizontale comme :

$$\frac{\partial \bar{u}}{\partial z} = \frac{u_*}{\kappa z} \quad (3.35)$$

En introduisant la hauteur de rugosité  $z_0$  telle que la composante horizontale du vent moyen y soit nulle et en intégrant la relation précédente selon  $z$  on aboutit à l'expression du profil vertical logarithmique pour  $\bar{u}$ .

$$\bar{u}(z) = \frac{u_*}{\kappa} \ln \left( \frac{z}{z_0} \right) \quad (3.36)$$

C'est ce profil classique qui est généralement utilisé pour quantifier la résistance aérodynamique de la vitesse de dépôt sec au-dessus des surfaces homogènes. En milieu hétérogène, le profil de vitesse dans la sous-couche inertielle dépend de la même manière de la longueur de rugosité, mais aussi d'un autre paramètre, la hauteur de déplacement  $d$ .

$$\bar{u}(z) = \frac{u_*}{\kappa} \ln \left( \frac{z - d}{z_0} \right) \quad (3.37)$$

La hauteur de déplacement s'interprète comme un décalage d'origine de l'altitude. Elle peut être vue comme l'altitude d'une paroi fictive qui représenterait le "sol" vu par l'écoulement



(Seinfeld et Pandis, 1998b). Généralement, il est courant d'évaluer  $d$  et  $z_0$  en fonction de la hauteur moyenne des obstacles  $H$  par des coefficients empiriques  $f_d$  et  $f_0$  :

$$\begin{cases} d &= f_d H \\ z_0 &= f_0 H \end{cases} \quad (3.38)$$

Grimmond et Oke (1999) évaluent  $f_d$  de l'ordre de 0,5 à 0,7; tandis que Arya (1988) estime  $f_d$  entre 0,6 et 0,8.

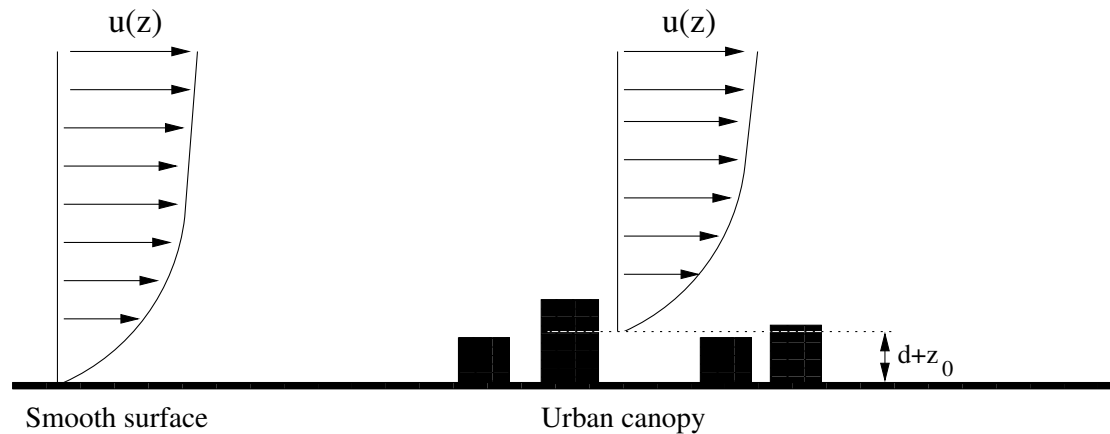


FIGURE 3.7 – Profil de vent moyen au-dessus d'une surface lisse et rugueuse (type canopée urbaine).

### Flux de masse d'un polluant particulaire

Nous allons maintenant considérer le cas du flux de masse de particule avec les mêmes hypothèses sur l'écoulement. Ce flux vertical est constant au-dessus du couvert et peut se décomposer en trois contributions :

- la première, due à la force gravitationnelle qui s'exerce sur les particules, peut être exprimée à l'aide de la vitesse de sédimentation, notée  $v_s$ , qui a été présentée au paragraphe 3.2.2.
- et une seconde contribution, liée à la diffusion turbulente,  $\overline{w'c'}$ , qui peut être exprimée de différentes manières selon la fermeture turbulente mise en oeuvre. Elle est néanmoins généralement choisie sous la forme (hypothèse de Boussinesq, section 3.2.5) :

$$\overline{w'c'} = K_t^c \frac{\partial \bar{c}}{\partial z}$$

- et enfin une contribution liée à la diffusion brownienne qui peut être négligée par rapport à la diffusion turbulente, sauf dans une couche très fine au contact de la surface (résistance  $R_s$ ).

On a donc le flux qui s'écrit :

$$F_c = - (K_t^c + D_B) \frac{\partial \bar{c}}{\partial z} - v_s \bar{c} \quad (3.39)$$

Plutôt que le maintien de l'analogie électrique, Venkatram et Pleim (1999) préconisent d'utiliser une solution de cette équation différentielle :

$$\bar{c}(z) = -\frac{F_c}{v_s} + A \exp\left(-v_s \int_0^z \frac{1}{K_t^c(z') + D_B} dz'\right) \quad (3.40)$$

La résolution complète de cette équation nécessite des conditions aux limites pour déterminer la constante  $A$ . Il est ainsi nécessaire de fixer la concentration au sol. Ici, deux hypothèses sont généralement admises :

1. concentration (nulle) au sol,
2. condition sur le flux au sol.

Généralement, la condition sur le flux au sol est fournie en donnant une vitesse de dépôt au sol. Cette vitesse, à défaut d'être connu a priori, est souvent confondue avec la vitesse de sédimentation. Cette hypothèse, bien que raisonnable pour les particules de taille supérieure au micron, peut néanmoins conduire à sous-évaluer le flux au sol pour des particules de tailles inférieures. En effet, pour cette gamme de taille de particules, la diffusion brownienne devient importante, et peut donc conduire à une sous-évaluation du flux. Ici, on fera plutôt l'hypothèse que la concentration est nulle au sol, ce qui permet d'écrire :

$$\bar{c}(z) = -\frac{F_c}{v_s} \left(1 - \exp\left(-v_s \int_0^z \frac{1}{K_t^c(z') + D_B} dz'\right)\right) \quad (3.41)$$

On voit ici apparaître la résistance totale au flux de dépôt diffusif  $R(z)$

$$R(z) = \int_0^z \frac{1}{K_t^c(z') + D_B} dz' \quad (3.42)$$

Que l'on peut décomposer selon la verticale pour faire apparaître  $R_a(z)$  et  $R_s(z)$ ,

$$R(z) = \underbrace{\int_h^z \frac{1}{K_t^c(z') + D_B} dz'}_{R_a(z)} + \underbrace{\int_0^h \frac{1}{K_t^c(z') + D_B} dz'}_{R_s(z)} \quad (3.43)$$

Par définition on a dans la zone de résistance aérodynamique  $K_t^c(z) \gg D_B$ , d'où on déduit l'expression de  $R_a$

$$R_a(z) = \int_h^z \frac{1}{K_t^c(z')} dz' \quad (3.44)$$

Il est donc nécessaire de formuler le coefficient de diffusivité turbulente pour la concentration  $K_t^c$ . On notera également que la recommandation de Venkatram et Pleim (1999) conduit à l'expression suivante pour  $v_d$  :

$$v_d(z) = \frac{v_s}{1 - \exp(-v_s R(z))} \quad (3.45)$$

C'est cette formulation, a priori plus rigoureuse, qui est utilisée dans le cadre des simulations présentées par la suite.

Le coefficient de diffusion brownienne  $D_B$  est lié à la viscosité cinématique par le nombre de Schmidt  $Sc = \nu/D_B$ . Le terme de diffusion turbulente  $\overline{w'c'}$  est un terme non linéaire inconnu a

priori. Par analogie avec les fermetures visqueuses (Cf. paragraphe 3.2.5), on définira un nombre de Schmidt turbulent  $Sc_t$  tel que :

$$\overline{w'c'} = \frac{\nu_t}{Sc_t} \frac{\partial \bar{c}}{\partial z} \quad (3.46)$$

On peut donc définir le coefficient de diffusion turbulente pour la concentration  $K_t^c$  tel que :

$$K_t^c = \frac{\nu_t}{Sc_t} \quad (3.47)$$

Dans la couche limite atmosphérique, l'hypothèse couramment admise (Businger, 1986) consiste à considérer le coefficient de diffusion turbulente pour la concentration et pour la température comme étant égal à la diffusion turbulente pour la quantité de mouvement (dite dynamique, i.e.,  $K_t^\varphi = \nu_t$ , avec  $\varphi$  pouvant être n'importe quel scalaire, température ou concentration).

À l'intérieur de la sous-couche de rugosité, souvent définie comme la limite de validité des expressions à flux gradient, ces coefficients de diffusion pour les scalaires divergent du coefficient de diffusion turbulente dynamique (i.e.  $\mathcal{P}r_t$ ,  $Sc_t \neq 1$ ). Petroff (2005) a par exemple mis en exergue qu'une canopée végétale, via la création d'instabilité de type de celle de Rayleigh, impactait le transport turbulent de la chaleur, s'en suivant un nombre de Prandtl  $\mathcal{P}r_t \neq 1$ . Pour une canopée urbaine Sini *et al.* (1996) a conclu que  $\mathcal{P}r_t$  devrait être choisi égal à 0,7.

En ce qui concerne le nombre de Schmidt  $Sc_t$ , très peu d'études ont été menées à l'intérieur de canopées urbaines. Tominaga et Stathopoulos (2007) a montré qu'aux alentours d'un bâtiment isolé, le transport de polluants était très impacté, amenant un nombre de Schmidt  $Sc_t$  de l'ordre de 0,3, tout en mettant en garde le lecteur qu'un grand nombre de bâtiments devrait impacter très fortement ce résultat. En effet, la production supplémentaire de turbulence générée par l'ensemble des bâtiments devrait augmenter significativement le nombre de Schmidt. En l'absence de données disponibles, et comme ce résultat impacterait de la même manière le modèle par rugosité et le modèle que nous avons développé (voir le chapitre suivant), nous avons choisi de considérer le nombre de Schmidt  $Sc_t$  comme unitaire. Le modèle de mélange de Prandtl est donc utilisé dans le cadre du modèle standard de vitesse de dépôt. On en déduit les expressions suivantes de  $R_a$  pour le

- cas d'une surface homogène :

$$R_a(z) = \int_{z_0}^z \frac{1}{\kappa u_* z'} dz' = \frac{1}{\kappa u_*} \ln \left( \frac{z}{z_0} \right) \quad (3.48)$$

- cas d'une surface hétérogène :

$$R_a(z) = \int_{z_0+d}^z \frac{1}{\kappa u_* (z' - d)} dz' = \frac{1}{\kappa u_*} \ln \left( \frac{z - d}{z_0} \right) \quad (3.49)$$

Rotach (1993) a démontré que la théorie des similitudes n'est pas capable de reproduire les structures de la turbulence au sein de la sous-couche rugueuse, et encore moins à l'intérieur des rugosités, dans la sous-couche de la canopée urbaine. Feigenwinter *et al.* (1999) ont quant à eux mis en évidence que la théorie des similitudes peut s'appliquer dans la partie supérieure de la sous-couche rugueuse, à condition d'utiliser des paramètres locaux.

Il n'en reste pas moins que cette théorie ne peut pas s'appliquer à l'intérieur des rugosités, dans la canopée urbaine. Il en résulte que la résistance aérodynamique dans le modèle standard de vitesse de dépôt ne s'applique que jusqu'à la hauteur des bâtiments (limite entre la sous-couche rugueuse et celle de la canopée urbaine).

Il y a donc besoin d'améliorer la modélisation du profil de turbulence à l'intérieur de la canopée, afin d'avoir un profil complet de la résistance aérodynamique jusqu'à la surface, tout du moins jusqu'à la couche quasi-laminaire où est censée s'appliquer la résistance de surface (ou résistance de couche limite).

Nous allons dans le chapitre suivant nous intéresser particulièrement à la résistance aérodynamique, car c'est la résistance au dépôt qui dépend des caractéristiques de l'écoulement, et qui sera donc grandement impactée par le milieu urbain.

## Chapitre 4

# Modélisation de la résistance aérodynamique au sein de la canopée

Bien que les zones urbaines ne représentent qu'une très faible surface (2.8% en 2011 selon Martine, 2011), plus de la moitié de la population y vit. La fraction urbaine de la population atteint même 80% en Europe, en Amérique du Nord et au Japon (Oleson *et al.*, 2008) et elle est amenée à augmenter (Shepherd, 2005). Ainsi, l'impact sanitaire et environnemental des polluants dans ces zones urbaines est un enjeu majeur. Qui plus est, les flux de dépôt de polluants, qui peuvent être importants proche des sources, ont rarement été modélisés en milieu urbain. Comme cela a déjà été abordé, la plupart des modèles ont été développés pour des surfaces de type couvert végétal, sol nu ou encore plan d'eau. Par conséquent, ces modèles ne parviennent pas à représenter la complexité des processus de dépôt sec sur une canopée urbaine. Il y a donc besoin d'un modèle de dépôt sec prenant en compte la géométrie et les caractéristiques du milieu urbain.

Le modèle décrit dans ce chapitre a été développé au sein de la plateforme de modélisation de la qualité de l'air Polyphemus. Pour des raisons historiques, le calcul des vitesses de dépôt est effectué comme un prétraitement. Ceci est principalement dû au fait que le dépôt est vu comme un terme de perte linéaire dans les équations d'advection diffusion (Cf. Equation 3.5). Par souci de cohérence, il a donc été choisi de développer ce modèle pour les dépôts secs avec une complexité équivalente à celle utilisée pour le traitement de la diffusion turbulente au sein du modèle de qualité de l'air, i.e. un modèle basé sur une fermeture d'ordre 1 (voir le paragraphe 3.2.5). Le modèle développé ici est donc un modèle à longueur de mélange. Cette longueur de mélange dépend d'un certain nombre de caractéristiques de la canopée urbaine, qui permettent de rendre compte des principaux processus qui prennent place à l'intérieur de la canopée urbaine. De la même manière, le profil des vitesses de vent moyen est directement impacté par ce changement de longueur de mélange, ainsi que par les caractéristiques morphologiques de la canopée urbaine. Ainsi, ce nouveau modèle offre la possibilité de calculer les dépôts secs en milieu urbain en fonction de quelques paramètres représentant les principales caractéristiques de la canopée urbaine (hauteur moyenne des bâtiments, largeur moyenne des rues, densité du bâti). Il est donc une amélioration par rapport aux modèles précédents où la canopée urbaine est simplement représentée par une longueur de rugosité sensée décrire l'effet du bâti sur l'écoulement à l'échelle de la ville. Le reste de ce chapitre correspond à un manuscrit qui a été publié dans Geoscientific Model Development.

Numerous urban modelling schemes have been developed in the past decade (e.g. Brown, 2000) to approximate the effect of the local scale urban elements on drag, heat flux and the radiative budget. Large-scale numerical models do not have the spatial resolution needed to represent fluid dynamics at the scales relevant to the built urban environment. Several reviews of urban models are available (e.g. Brown, 2000; Masson, 2006). For example, Masson (2006) considers three general categories of urban parametrisations :

- Empirical models : These models are based on observations and represent the behaviour of the urban canopy using statistical relations.
- Vegetation models : These models have been modified to fit to urban characteristics.
- Urban canopy models : These relatively recent models include a representation of the urban canopy in the dynamic flow equations.

These latter urban canopy models are based on simple geometries, but are nevertheless appropriate to represent the main aerodynamic and thermal characteristics of urban areas. However, they have so far been intended to parametrise the momentum and heat transfer processes, not dry deposition.

Here, a novel dry deposition model based on the urban canyon concept of Oke (1988), is presented. The modelling concept is based on a single infinitely-long road, bordered by two facing buildings, which are treated separately. It accounts for local effects of buildings through the use of a local mixing length and key parameters characteristic of the urban canopy. Three different flow regimes are distinguished in the urban canyon according to its height-to-width ratio : isolated roughness flow, wake interference flow and skimming flow. The turbulence scheme used in the classical roughness-length approach using the wind velocity to parametrise turbulent motions is improved to make it suitable for the urban canopy. This approach provides three-dimensional spatially distributed dry deposition fields within the urban canopy, which cannot be obtained from the roughness-length model.

We summarise first the formulation of the roughness-length model. Next, we describe the subgrid model developed here and present the dry deposition flux for the different flow regimes and surface types. Finally, simulations are conducted to compare the dry deposition fluxes obtained with this model and the roughness-length model, as well as to investigate the sensitivity of the model results to several key parameters.

## 4.1 Model description

### 4.1.1 Urban canopy model

The model described here is developed for use in three-dimensional gridded air quality models and is designed to simulate the transfer of pollutants from the atmosphere to urban surfaces. It is a bulk approach, developed using a subgrid parametrisation. Thus, only the lowest grid layer will be investigated. In air quality models, the lowest model layer is generally between 25 and 50 meters high (e.g. Van Loon *et al.*, 2007), although heights as low as 14 to 25 meters have been reported in recent applications (Solazzo *et al.*, 2013). It is assumed here that the height of the lowest model layer is at least twice that of the urban canopy. The currently available roughness-length models use some urban canopy parameters (roughness length, displacement height...) to estimate dry deposition in urban areas but it is not designed to reproduce the flow fields within the urban canopy. Here, we use the canyon concept developed by Nunez et Oke (1977). The urban canyon consists of a single road, bordered by two facing buildings, which can be treated

separately. The individual shapes of individual buildings are not taken into account and only spatially-averaged characteristics of the urban area (mean building height  $h$ , canyon width  $W$ ...) are used. Any road orientation is possible and exists with the same probability.

The flow fields depend on the canyon geometry. The range of canyon geometries is split into three different flow regimes depending on the height-to-width ratio of the canyon :

- In a very narrow canyon, a vortex can develop within the canopy, leading to a *recirculation region* (abbreviated as “recirc.” in the variable indices), similar to a cavity flow, which is called *skimming flow*.
- If the canyon is large enough, a second region, the *ventilation region* (abbreviated as “vent.” in the variable indices), appears downwind of the *recirculation region*. The flow pattern is called *isolated roughness flow*.
- Between these two cases, the downwind buildings leads to a *ventilation region* that does not extend down to the ground. This flow pattern is called *wake interference flow*.

The boundaries between these two regions still need to be defined. In most models using this approach, the shape of the recirculation region is a trapezoid (e.g., see Figure 4.2). According to the review by Harman *et al.* (2004), measurements show that the maximum length of the recirculation region (the base of the trapezoid,  $W_r$ ) is proportional to the height of the building,  $h$ . Harman *et al.* (2004) show that the ratio  $\frac{W_r}{h}$  depends on the turbulence level in the boundary layer and the shape of the buildings and roofs. For a cubical array of buildings (an hypothesis assumed by Macdonald *et al.*, 1998, , for the calculation of the displacement height  $d$ ), Castro et Robins (1977) proposed  $\frac{W_r}{h} \approx 2$ . On the other hand, Oke (1988) suggests  $\frac{W_r}{h} \in [2, 3]$ . Okamoto *et al.* (1993) described a two-dimensional geometry, which resembles a realistic urban area, and recommended  $\frac{W_r}{h} \approx 3.5$ . Here, we selected  $W_r = 3h$ . The sensitivity of the model to this value is tested in Section 4.3.5.2.

The three flow regimes are then split according to the length of the flow regions (in particular the recirculation region) :

- For narrow canyons (Figure 4.1),  $W < \frac{W_r}{2}$ , i.e.,  $\frac{h}{W} > \frac{2}{3}$ , which corresponds to the skimming flow regime.
- For the intermediate case (Figure 4.2),  $W_r > W > \frac{W_r}{2}$  i.e.,  $\frac{1}{3} < \frac{h}{W} < \frac{2}{3}$ , which corresponds to the wake interference flow regime.
- For wide canyons (Figure 4.3),  $W > W_r$  i.e.,  $\frac{h}{W} < \frac{1}{3}$ , which corresponds to the isolated roughness flow regime.

### 4.1.2 Parametrisation of turbulence within the urban canopy

As already stated, the standard flux-gradient relationships fail to reproduce the mean flow and concentration profiles within and above an urban canopy.

Applying K-theory to the transport of pollutants may be even more problematic than its application to momentum, because the length scales involved in the transport of pollutants are even smaller than those involved in the transport of momentum.

Numerous schemes have been developed for momentum, such as nonlocal closure schemes (e.g., Probability Density Function theory of Pope, 2000, or the transilient theory from Stull et Hasegawa, 1984). Concerning pollutant concentrations, Raupach (1989) developed an alternative to K-theory with its Localized Near Field theory (LNF) within vegetative canopies.

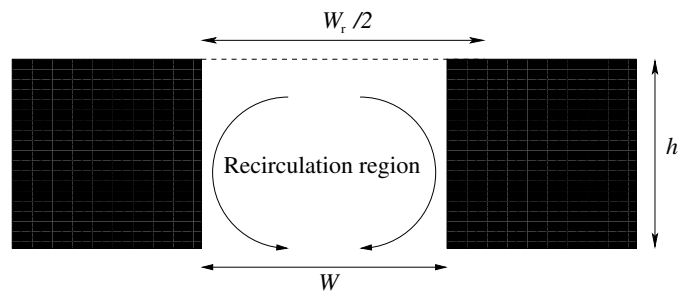


FIGURE 4.1 – Narrow canyon

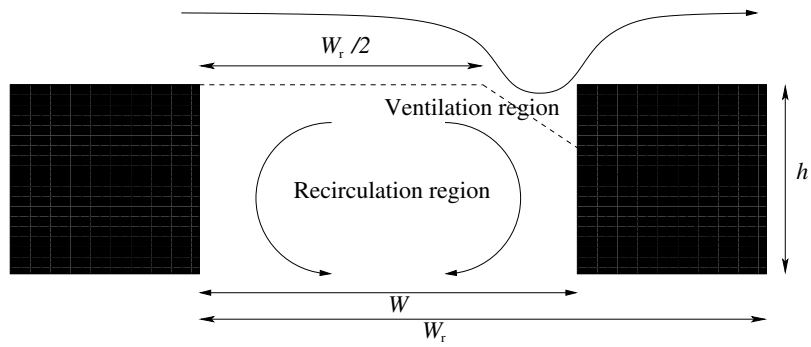


FIGURE 4.2 – Intermediate case

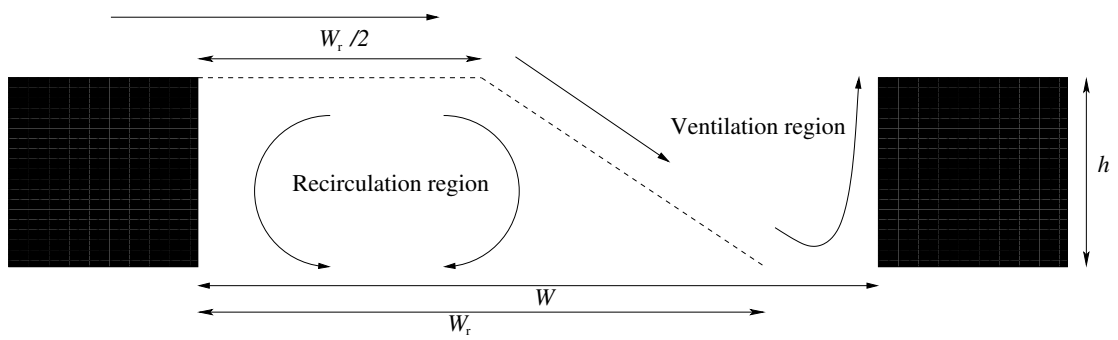


FIGURE 4.3 – Wide canyon



This latter theory splits the pollutant transport into two components : advection from near-field sources and diffusion from far-field contributions.

Such approaches are generally considered too demanding in terms of computational requirements and/or input data (e.g., source or sink distribution) for routine application in air quality modeling. Therefore, all these constraints (computational costs, lack of available data...) point out the need for a simple model (such as flux-gradient relationships) to predict dry deposition fluxes above and within the canopy.

This work aims to develop a revised flux-gradient relationship, based on an improved length scale of turbulence compared to that used in the roughness length model (Section 4.1.2.1), coupled to a realistic representation of the wind speed profile within the canopy (Section 4.1.2.2).

#### 4.1.2.1 Urban mixing length

First, we improve the characteristics of the mixing length compared to that used in the roughness length model. The impact of buildings can be taken into account by introducing a new mixing length. The roughness elements, such as buildings, generate turbulent wakes, and the size of resulting eddies is known to be related to the dimensions of these roughness elements.

Following Coceal et Belcher (2004), the general form of the mixing length will be deduced from the two followings extreme cases :

- If the urban canopy is very sparse, turbulence should not be affected significantly by the urban canopy. In this case, turbulent eddies are blocked mostly by the ground and the mixing length,  $l_m$ , follows the “law of the wall” profile :  $l_m = \kappa z$ , where  $z$  is the distance to the surface and  $\kappa$  is the von Kármán constant (taken here to be 0.41).
- If the urban canopy is very dense, the large eddies above the urban canopy break at the top of the canopy. Raupach *et al.* (1996) show that the dominant eddies within a vegetation canopy are mostly produced from mixing-layer instability of the shear layer, which is created at the top of the canopy. The mixing length in a very dense canopy,  $l_c$ , is then assumed to be constant with height in order to reflect this behaviour, controlled by the thickness of the shear layer. It is then expected to depend on the mean height of buildings.

Coceal et Belcher (2004) proposed to interpolate between these two behaviours using an harmonic mean. They argue that the mixing length is constrained by the smaller of these two length scales.

$$\frac{1}{l_m} = \frac{1}{\kappa z} + \frac{1}{l_c} \quad (4.1)$$

To close this model we impose the mixing length to be equal to  $\kappa(h - d)$  at the top of the canopy (i.e.,  $z = h$ , which is the bulk mixing length above an urban area in the standard roughness length approach), as proposed by Coceal et Belcher (2004). This closure leads to the following formulation of the canyon mixing length  $l_c$  :

$$l_c = \frac{\kappa h (h - d)}{d} \quad (4.2)$$

The displacement height  $d$  is determined by the empirical formulation proposed by Macdonald *et al.* (1998), which links the displacement height to the mean building height  $h$  and the building density  $\lambda_p$ , which is defined as the ratio of the plane built area  $\mathcal{A}_{\text{plane}}$  to the total plane area  $\mathcal{A}_{\text{total}}$  :

$$d = h [1 + \alpha^{-\lambda_p} (\lambda_p - 1)] \quad (4.3)$$

where  $\alpha$  is an empirical parameter, taken equal to 4. Thus, the mixing length within the canopy is a function of morphological parameters of the canopy ( $h$  and  $\lambda_p$ ).

Finally, one can check that the model remains consistent with the extreme cases :

- If the canopy is very sparse, then the density  $\lambda_p$  tends toward 0, and so does the displacement height  $d$ . Thus, the mixing length tends towards the classical “law of the wall” (i.e.,  $l_m \rightarrow \kappa z$ ), thereby reflecting the fact that the canopy does not impact the flow field.
- If the canopy is very dense, then  $\lambda_p$  tends toward 1 and  $d \approx h$ . Thus,  $l_m$  tends toward  $l_c$  and then the flow field is strongly influenced by buildings.

#### 4.1.2.2 Wind profile

The Prandtl mixing model uses a logarithmic wind profile, which cannot be applied down to the ground in an urban canopy. Therefore, we use instead, within the urban area, an exponential profile, which is now widely used within vegetative canopies E. (1963); Petroff *et al.* (2008). Numerous studies support the use of such a profile within the urban canopy (e.g. Macdonald, 2000; Masson, 2000). For example, measurements of median wind profiles within the urban canopy obtained during the Basel UrBan Boundary Layer Experiment (BUBBLE) are consistent with such an exponential wind profile within the urban canopy (Hamdi et Schayes, 2007).

Assuming a mean flow above roof level, parallel to the canyon orientation, the exponential formulation is imposed all along the canyon. The exponential formulation can be deduced for a simple geometry (array of uniformly distributed drag elements), with simplifying hypotheses (mixing length and drag coefficient constant with height) as it was done for vegetative canopies :

$$\forall z < h \quad \bar{u}(z) = \bar{u}(h) \exp\left(\beta\left(\frac{z}{h} - 1\right)\right) \quad (4.4)$$

where  $\beta$  is an attenuation coefficient (Cionco, 1965).

Velocity profiles based on Equation (4.4) are depicted in Figure 4.4 for different values of  $\beta$ . One notes that, except for high values of  $\beta$ , the no-slip condition at the ground is not satisfied.

Based on studies by Arya (1988) and Rotach (1995), Masson (2000) computed the wind speed at half-height for a narrow canyon (corresponding to the skimming flow). Then, the following parametrisation of  $\beta$  was derived in this case :

$$\beta = \frac{1}{2} \frac{h}{W} \quad (4.5)$$

Hereafter, this expression will be assumed to apply for all canyon geometries.

Another parametrisation of  $\beta$  is provided by Macdonald (2000), which is a linear relationship between the attenuation coefficient and the frontal building density  $\lambda_f$ , defined as the ratio of the frontal built area  $\mathcal{A}_{\text{frontal}}$  to the total plane area  $\mathcal{A}_{\text{total}}$  :

$$\beta = 9.6 \lambda_f \quad (4.6)$$

The sensitivity of the model to  $\beta$  is investigated in Section 4.3.5.4. The formulation, which was extracted from Masson (2000), was used in the following base simulations.

An integration over 360 degrees is performed to account for all street orientations. Only the wind component parallel to the canyon orientation is considered and thus a no mean wind

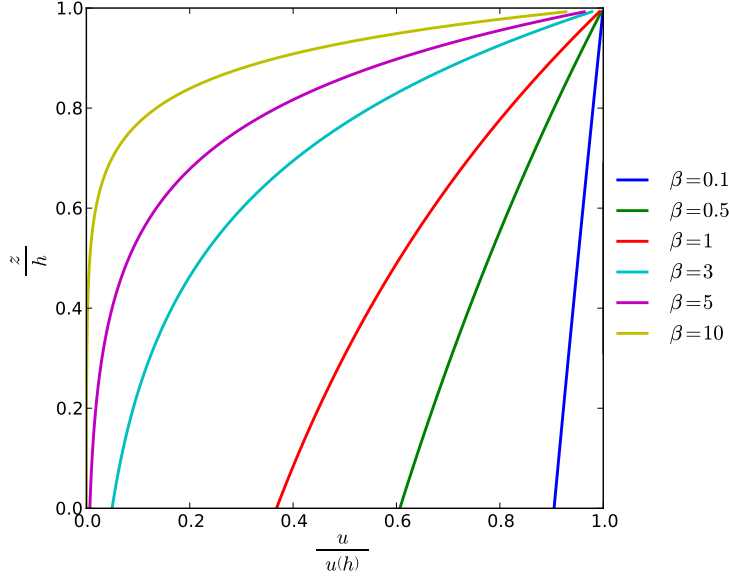


FIGURE 4.4 – Wind velocity profiles as predicted by Equation (4.4) for various values of the attenuation coefficient  $\beta$ .

condition inside the canyon is assumed when the flow is perpendicular to the canyon orientation :

$$\forall z < h \quad \bar{u}(z) = \frac{2}{\pi} \bar{u}(h) \exp\left(\beta \left(\frac{z}{h} - 1\right)\right) \quad (4.7)$$

This formulation was computed for narrow urban canyons, i.e., for skimming flow conditions. Lemonsu *et al.* (2004) proposed to extend this formulation to all canyons. An adaptation of these formulations is used here. For wide canyons, in the case of the isolated roughness flow, the integration coefficient of the mean wind speed within the canyon is assumed to be equal to unity, then, the formulation for wide canyons is the same as Equation (4.4).

In the intermediate case, i.e., wake interference flow, the wind speed inside the canyon is computed as follows :

$$\forall z < h \quad \bar{u}(z) = \left[1 + 3 \left(\frac{2}{\pi} - 1\right) \left(\frac{h}{W} - \frac{1}{3}\right)\right] \bar{u}(h) \exp\left(\beta \left(\frac{z}{h} - 1\right)\right) \quad (4.8)$$

We introduce the coefficient  $\zeta$ , which depends on the canyon geometry, and we express the mean wind speed as follows :

$$\forall z < h \quad \bar{u}(z) = \zeta \bar{u}(h) \exp\left(\beta \left(\frac{z}{h} - 1\right)\right) \quad (4.9)$$

The no-slip condition requires that the wind velocity must be zero at the surface. Therefore, the exponential profile cannot apply near the surface and it must match with a different profile that tends to zero as  $z$  tends to zero. Experimental data suggest that, near the ground, the mean wind profile approaches a logarithmic profile (e.g. experimental data from Macdonald, 2000, , Figure 6).

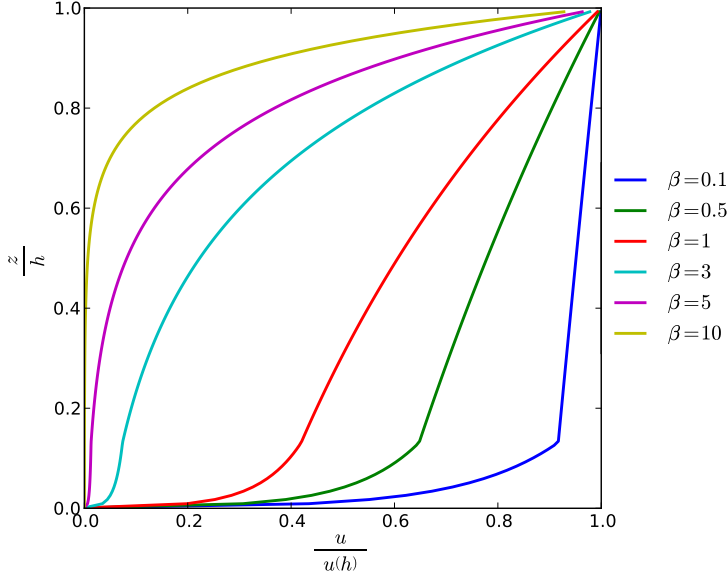


FIGURE 4.5 – Wind velocity profiles modified to fit the logarithmic profile close to the surface ( $\Phi = 0.2$ ).

The height  $z_{\text{limit}}$  at which the change from the exponential wind profile to a logarithmic wind profile occurs is defined as the limit at which the mixing length in the urban canopy tends toward the law of the wall mixing length, i.e. :

$$\frac{l_c \kappa z_{\text{limit}}}{l_c + \kappa z_{\text{limit}}} = (1 - \Phi) \kappa z_{\text{limit}} \quad (4.10)$$

i.e.

$$z_{\text{limit}} = \frac{\Phi l_c}{(1 - \Phi) \kappa} \quad (4.11)$$

where  $\Phi \in [0, 1]$  is a dimensionless parameter, which must be chosen as small as reasonably possible. It is discussed in Section 4.3.5. The modified wind profile is depicted in Figure 4.5.

## 4.2 Dry deposition flux

The dry deposition flux must take into account the different deposition pathways (see Figure 4.6) according to the canopy model described in Section 4.1.1. For the sake of clarity, only the formulation for gases is presented. The formulation for particles is presented in Appendix G.

The following formulation is assumed, according to the historical dry deposition velocity formulation :

$$v_d = \frac{F_{\text{atmosphere}}^c}{\bar{c}(z_{\text{ref}})} \quad (4.12)$$

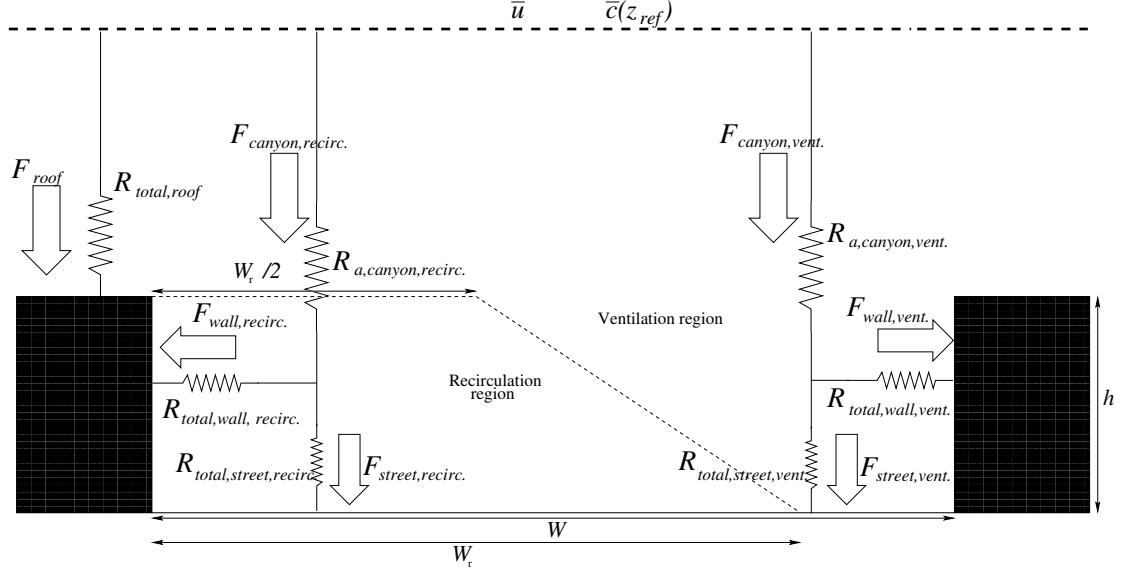


FIGURE 4.6 – Dry deposition resistance network.

where  $\bar{c}(z_{\text{ref}})$  is the concentration at the first vertical node of the air quality mesoscale model  $z_{\text{ref}}$  (i.e., half the depth of the first model layer),  $v_d$  is the dry deposition velocity seen from the atmosphere and  $F_{\text{atmosphere}}^c$  is the flux of pollutants removed from the atmosphere.

In order to compute the flux of pollutants removed from the atmosphere, the mass balance between the atmosphere and the surface can be written as follows, assuming there is no accumulation :

$$F_{\text{atmosphere}}^c \mathcal{A}_{\text{total}} = F_{\text{canyon,recirc.}}^c W_{\text{canyon,recirc.}} L + F_{\text{canyon,vent.}}^c W_{\text{canyon,vent.}} L + F_{\text{roof}}^c \mathcal{A}_{\text{plane}} \quad (4.13)$$

where  $L$  is an area-averaged length of the street, defined by :

$$L = \frac{(1 - \lambda_p) \mathcal{A}_{\text{total}}}{W_{\text{street}}} \quad (4.14)$$

It should be noted that the canyon's width defines the exchange surface between the atmosphere and the canyon. These exchange surfaces are then defined at the top of the canopy between each region and the atmosphere.

Each  $F_{\text{canyon}}^c$  can be expressed by a mass balance in each region of the canyon :

$$F_{\text{canyon,vent.}}^c = \frac{W_{\text{street,vent.}}}{W_{\text{canyon,vent.}}} F_{\text{street,vent.}}^c + \frac{W_{\text{wall,vent.}}}{W_{\text{canyon,vent.}}} F_{\text{wall,vent.}}^c \quad (4.15)$$

and :

$$F_{\text{canyon,recirc.}}^c = \frac{W_{\text{street,recirc.}}}{W_{\text{canyon,recirc.}}} F_{\text{street,recirc.}}^c + \frac{W_{\text{wall,recirc.}}}{W_{\text{canyon,recirc.}}} F_{\text{wall,recirc.}}^c \quad (4.16)$$

The different values of the dimensions of interest (fraction of street, wall and canyon which lie in the recirculation and the ventilation region, respectively) depend on the canyon geometry ; they are summarised in Table 4.1. The term  $W_{\text{wall}}$  refers to the height of walls.  $\gamma$  is defined, as

the portion of the downwind wall, which lies in the recirculation region :

$$\gamma = \begin{cases} h & \text{if } W < \frac{W_r}{2} \\ 2h \left(1 - \frac{W}{W_r}\right) & \text{if } \frac{W_r}{2} < W < W_r \\ 0 & \text{if } W > W_r \end{cases} \quad (4.17)$$

Tableau 4.1 – Different widths/heights of urban surfaces depending on the canyon geometry.

| region        | canyon                                  | wall         | street             |
|---------------|---|--------------|--------------------|
| recirculation | $\min\left(\frac{W_r}{2}, w\right)$     | $h + \gamma$ | $\min(W_r, w)$     |
| ventilation   | $W - \min\left(\frac{W_r}{2}, w\right)$ | $h - \gamma$ | $W - \min(W_r, w)$ |

We now describe the fluxes over each surface of the urban canyon.

Assuming Equation (3.2.5), the mass flux can be written as :

$$F^c = (D + K_t^c) \frac{\partial \bar{c}}{\partial z} \quad (4.18)$$

In the case of turbulent mass transfer, the molecular diffusion term is negligible (aerodynamic resistance), whereas in the case of mass transfer in the quasi-laminar layer near the surface, the turbulent term is negligible (surface resistance).

### 4.2.1 Fluxes between the bulk atmosphere and the canyon

First, we assume here that the urban canopy is entirely contained within the first layer of the gridded air quality model.

Second, we assume that the mass flux through the canyon is governed only by turbulent mass transfer. The flux from the bulk atmosphere (i.e., the atmosphere above the canyon) toward the canyon is chosen to occur from  $z_{\text{ref}}$  to a reference height in the canyon region  $z_{\text{canyon}}$ .

At this point, one must note that the well-known formulation of the dry deposition velocity used in most operational air quality models (e.g. Zhang *et al.*, 2001)<sup>1</sup> is based on the hypothesis of a constant vertical mass flux, which is not verified within the urban canopy, in particular the momentum flux formulation developed in this work is not consistent with this assumption (e.g., use of an exponential wind velocity profile).

Nevertheless, in the absence of another available framework, we adapted this one-dimensional conceptual model of a vertical dry deposition flux to the two-dimensional schematic representation of the urban canopy.

Accordingly, the flux is formulated as follows :

$$F_{\text{canyon}}^c = \frac{\bar{c}(z_{\text{ref}}) - \bar{c}(z_{\text{canyon}})}{R_{a,\text{canyon}}} \quad (4.19)$$

with

$$R_{a,\text{canyon}} = \int_{z_{\text{canyon}}}^{z_{\text{ref}}} \frac{dz}{K_t^c} \quad (4.20)$$

1. Cf. le cadre théorique décrit dans le Chapitre 3.

In the recirculation region, this integral is split into two parts, one above the canopy ( $z > h$ ), and another one within the canopy ( $z < h$ ). The continuity point is assumed to be the top of the canopy ( $z = h$ ), as it was chosen for the improved formulation of the mixing length :

$$R_{a,\text{canyon,recirc.}} = \underbrace{\int_h^{z_{\text{ref}}} \frac{1}{[\kappa(z-d)] u_*} dz}_{R_{a,\text{canyon}}^{\text{top}}} + \underbrace{\int_{z_{\text{canyon}}}^h \frac{1}{\left(\frac{l_c \kappa z}{l_c + \kappa z}\right)^2 \frac{\partial \bar{u}}{\partial z}} dz}_{R_{a,\text{canyon,recirc.}}^{\text{bottom}}} \quad (4.21)$$

Above the canopy ( $R_{a,\text{canyon}}^{\text{top}}$ ), the standard mixing length is used and the wind velocity is deduced from the classical logarithmic profile. The friction velocity  $u_*$  is computed above the canopy with the Louis (1979) formula and parameters defining the canopy. The stability is then taken into account above the canopy. This integral can then be computed analytically. Within the canopy ( $R_{a,\text{canyon,recirc.}}^{\text{bottom}}$ ), the improved mixing length is used (see Equations (4.1) and (4.2)), and the wind velocity follows the exponential profile. This formulation leads to an indefinite integral (exponential integral  $Ei$ ). It must be computed numerically.

In the ventilation region, the same resistance above the canopy is used ( $R_{a,\text{canyon}}^{\text{top}}$ ). Within the canopy, the mixing length  $l_m = \kappa z$  is used, to reflect the weak influence of buildings on atmospheric turbulence in this part of the canyon. Nevertheless, the wind velocity profile still follows the exponential profile for consistency within the canyon.

$$R_{a,\text{canyon,vent.}} = \underbrace{\int_h^{z_{\text{ref}}} \frac{1}{[\kappa(z-d)] u_*} dz}_{R_{a,\text{canyon}}^{\text{top}}} + \underbrace{\int_{z_{\text{canyon}}}^h \frac{1}{(\kappa z)^2 \frac{\partial \bar{u}}{\partial z}} dz}_{R_{a,\text{canyon,vent.}}^{\text{bottom}}} \quad (4.22)$$

#### 4.2.2 Fluxes between the canyon and urban surfaces

For the sake of simplicity, in this section, the  $\diamond$  symbol means either street surface or wall surface, in each region (recirculation and ventilation). For the building walls and street surfaces, the flux can then be expressed similarly to the previous flux formulation :

$$F_{\diamond}^c = \frac{\bar{c}(z_{\text{canyon}})}{R_{\text{total},\diamond}} \quad (4.23)$$

where the concentration at the surface is taken to be zero.

The turbulent mass flux occurs between  $z_{\text{canyon}}$  and  $z_{0,\diamond}$ , which is the roughness length of the surface  $\diamond$  (building wall or street surface).

$$R_{\text{total},\diamond} = R_{a,\diamond} + R_{b,\diamond} + R_{c,\diamond} \quad (4.24)$$

$$R_{a,\diamond} \approx \int_{z_{0,\diamond}}^{z_{\text{canyon}}} \frac{dz}{K_t^c} \quad (4.25)$$

In the recirculation region, the formulation of the aerodynamic resistance between the canyon and urban surfaces is expressed as follows :

$$R_{a,\diamond} = \int_{z_{\text{limit}}}^{z_{\text{canyon}}} \frac{1}{\left(\frac{l_c \kappa z}{l_c + \kappa z}\right)^2 \frac{\beta}{h} \zeta \bar{u}(h) \exp\left(\beta\left(\frac{z}{h} - 1\right)\right)} dz + \frac{1}{\kappa u_*} \ln\left(\frac{z_{\text{limit}}}{z_{0,\diamond}}\right) \quad \text{if } z_{\text{limit}} > z_{0,\diamond} \quad (4.26)$$

It is important to note that the roughness length  $z_{0,\diamond}$  represents the surface roughness and not the bulk roughness of the urban area. For the sake of simplicity, the aerodynamic resistance of the wall, is supposed to be similar to the aerodynamic resistance of the street, except for the local roughness length of the surface. A local friction velocity  $u_*$  is also computed close to the surface. At this step, the atmospheric stability is assumed to be neutral.

The surface aerodynamic resistance in the ventilation region is written as follows :

$$R_{a,\diamond} = \int_{z_{\text{limit}}}^{z_{\text{canyon}}} \frac{1}{(\kappa z)^2 \frac{\beta}{h} \zeta \bar{u}(h) \exp\left(\beta\left(\frac{z}{h} - 1\right)\right)} dz + \frac{1}{\kappa u_*} \ln\left(\frac{z_{\text{limit}}}{z_{0,\diamond}}\right) \quad \text{if } z_{\text{limit}} > z_{0,\diamond} \quad (4.27)$$

In the case when  $z_{\text{limit}}$  is lower than  $z_{0,\diamond}$ , the logarithmic part of these equations is not taken into consideration and the lower bound of the integral is  $z_{0,\diamond}$ .

### 4.2.3 Flux between the bulk atmosphere and the building roofs

Dry deposition occurs also from the bulk atmosphere to the building roofs of the urban canyon area. The turbulence is assumed to be generated by the urban canopy above the roof. Then, the following formulation applies :

$$F_{\text{roof}}^c = \frac{\bar{c}(z_{\text{ref}})}{R_{\text{total,roof}}} \quad (4.28)$$

with :

$$\begin{aligned} R_{\text{total,roof}} &= R_{a,\text{roof}} + R_{b,\text{roof}} + R_{c,\text{roof}} \\ R_{a,\text{roof}} &\approx \int_h^{z_{\text{ref}}} \frac{1}{[\kappa(z-d)] u_*} dz \end{aligned} \quad (4.29)$$

### 4.2.4 Closure on the pollutant concentration within the canyon

The mass balance within the canyon (Equations (4.15) and (4.16)) is used to close the flux equations and calculate the concentration  $\bar{c}(z_{\text{canyon}})$  needed in Equations (4.19) and (4.23) :

$$\bar{c}(z_{\text{canyon}}) = \frac{\bar{c}(z_{\text{ref}})}{1 + \frac{R_{a,\text{canyon}}}{R_{\text{total,wall}}} \frac{W_{\text{wall}}}{W_{\text{canyon}}} + \frac{R_{a,\text{canyon}}}{R_{\text{total,street}}} \frac{W_{\text{street}}}{W_{\text{canyon}}} } \quad (4.30)$$

Note that, for the sake of simplicity, we have considered that no pollutant source is located within the urban canyon.

### 4.2.5 Overall dry deposition

The mass balance in Equation (4.13) allows one to calculate the overall dry deposition velocity of the pollutants removed from the atmosphere to an urban area :

$$v_d = \frac{1}{\bar{c}(z_{\text{ref}})} \left[ \lambda_p F_{\text{roof}}^c + (1 - \lambda_p) \frac{W_{\text{canyon,vent.}}}{W} F_{\text{canyon,vent.}}^c + (1 - \lambda_p) \frac{W_{\text{canyon,recirc.}}}{W} F_{\text{canyon,recirc.}}^c \right]$$



i.e.,

$$\begin{aligned}
v_d = & \frac{\lambda_p}{R_{\text{total,roof}}} \\
& + \frac{\frac{(1-\lambda_p)}{W} \left( \frac{W_{\text{street,vent.}}}{R_{\text{total,street,vent.}}} + \frac{W_{\text{wall,vent.}}}{R_{\text{total,wall,vent.}}} \right)}{1 + \frac{R_{a,\text{canyon,vent.}}}{R_{\text{total,wall,vent.}}} \frac{W_{\text{wall,vent.}}}{W_{\text{canyon,vent.}}} + \frac{R_{a,\text{canyon,vent.}}}{R_{\text{total,street,vent.}}} \frac{W_{\text{street,vent.}}}{W_{\text{canyon,vent.}}}} \\
& + \frac{\frac{(1-\lambda_p)}{W} \left( \frac{W_{\text{street,recirc.}}}{R_{\text{total,street,recirc.}}} + \frac{W_{\text{wall,recirc.}}}{R_{\text{total,wall,recirc.}}} \right)}{1 + \frac{R_{a,\text{canyon,recirc.}}}{R_{\text{total,wall,recirc.}}} \frac{W_{\text{wall,recirc.}}}{W_{\text{canyon,recirc.}}} + \frac{R_{a,\text{canyon,recirc.}}}{R_{\text{total,street,recirc.}}} \frac{W_{\text{street,recirc.}}}{W_{\text{canyon,recirc.}}}} \quad (4.31)
\end{aligned}$$

## 4.3 Results

### 4.3.1 Evaluation by comparison with observations

There is a wide range of existing methods to measure dry deposition velocities and it is of interest to discuss briefly the advantages and limitations of such dry deposition velocity measurements (Wesely et Hicks, 2000). There are two main quantification methods of deposition : direct and indirect measurements. Direct measurements use surrogate surfaces that mimic the actual surface, and are used to quantify dry deposition via analysis of the amount of material deposited on the surface. However, although the use of surrogate surfaces is convenient for the collection and analysis of material, it raises the question of representativeness of such surfaces compared to actual surfaces. Moreover, it has been shown that both the surface geometry and characteristics have a large impact on deposition (Sakata et Marumoto, 2004).

Indirect measurements are typically based on micrometeorological approaches where the dry deposition flux is calculated by measuring both the atmospheric concentration and the vertical velocity. There is a wide range of techniques to measure fluxes (eddy correlation, eddy accumulation, gradient method...). These techniques provide a flux measurement that is representative of a large homogenous area. Even the interpretation of these measurements remains questionable (see Baldocchi *et al.*, 2000, for instance). Thus, such techniques cannot provide detailed information on dry deposition fluxes in complex settings such as urban areas. Furthermore, there are very few experimental data available on dry deposition over urban areas. The scarce field campaigns generally occur over long sampling period of time and detailed meteorological data over these periods are not available.

Such studies are extremely difficult to conduct because of the heterogeneity of the environment, large spatial and temporal variations of meteorological conditions and the challenges associated with the measurements of dry deposition fluxes. One can cite dry deposition fluxes measured around Lake Michigan (Sofuoglu *et al.*, 1998; Paode *et al.*, 1998; Shahin *et al.*, 2000; Yi *et al.*, 2001, for example) during the Atmospheric Exchange Over Lakes and Oceans Study (AEOLOS). Yi *et al.* (2001) measured overall dry deposition velocities in Chicago, which vary from  $2.1 \text{ cm.s}^{-1}$  (fine particle fraction of Cu and Zn) to  $23 \text{ cm.s}^{-1}$  (fine particle fraction of Al and Mn). In another study, Sakata et Marumoto (2004) measured dry deposition on the roof of a building at Komae City, Japan. They measured dry deposition velocities in a range from  $0.73 \text{ cm.s}^{-1}$  (for Zn) to  $4.6 \text{ cm.s}^{-1}$  (for Mn). Moreover, these measurements show a high standard deviation, which makes interpretation difficult. Sofuoglu *et al.* (1998) report a factor of five between measured and modeled (using a roughness dry deposition velocity) fluxes in Chicago.

Clearly, the large uncertainties associated with dry deposition flux measurements make their use for model performance evaluation difficult, as dry deposition can vary by more than one order

of magnitude depending on surface type and meteorological conditions (e.g., see Roupsard, 2013, for an exhaustive review of dry deposition velocity measurements over urban surfaces)<sup>2</sup>.

### 4.3.2 Base simulation

The model presented above is applied to the Paris urban area, France, for the year 2011 and simulation results are compared to those obtained with the roughness length model. The meteorology is obtained from simulations conducted with the Weather Research and Forecasting Model (Skamarock *et al.*, 2001). The dry deposition velocities are computed for fine particulate matter (PM<sub>2.5</sub>). Calculations were performed here for particles with an aerodynamic diameter of 1  $\mu\text{m}$  as an example. A single configuration is applied here over the whole domain for the sake of demonstration of the model; accordingly, a suburban configuration is assumed.

- Mean building height :  $h = 12$  meter
- Mean roof width :  $W_{\text{roof}} = 6.25$  meter (it is assumed that buildings are contiguous except for the side facing the street)
- Roughness length of walls :  $z_{0,\text{wall}} = 10^{-4}$  meter
- Roughness length of streets :  $z_{0,\text{street}} = 10^{-2}$  meter

The dry deposition model presented above was developed within the Polyphemus air quality modelling platform (Mallet *et al.*, 2007). Meteorological data are provided with a horizontal resolution of  $0.04^\circ \times 0.027^\circ$  every hour. For land use coverage, the United States Geological Survey (USGS) land cover map (24 categories) is used and categories are aggregated to match the land use categories defined by Zhang *et al.* (2001). The model of Zhang *et al.* (2001) was used to compute the surface resistance. Outside urban areas, the roughness length model based on Zhang *et al.* (2001) was used.

Figure 4.7 shows the mean dry deposition velocity computed with the parametrisation presented in this work ( $\lambda_p = 0.4$ ). These results are consistent with the range of measurements reported in the literature.

Figure 4.8 represents the mean wind speed at the reference height  $z_{\text{ref}}$  averaged over the year 2011. The dry deposition velocity is strongly influenced by the mean wind speed, inasmuch as the aerodynamic resistance depends on it. Greater deposition velocities occur in areas with greater wind speeds.

Figure 4.9 shows the relative difference between the dry deposition velocity averaged over the year 2011 computed with the model presented above ( $\lambda_p = 0.4$ ),  $v_{\text{canyon}}$ , and computed with the roughness length model,  $v_{\text{roughness}}$ , i.e. :

$$\Delta v_d = \frac{v_{\text{canyon}} - v_{\text{roughness}}}{v_{\text{roughness}}}$$

The differences are computed for each hour, then they are averaged over the year 2011. The annual-average difference is about 45% with a standard deviation of 15% (not shown). This difference reaches 82% for  $\lambda_p = 0.6$  with a standard deviation of 22% (not shown). These relatively low standard deviations are explained by the fact that the two models use similar approaches, based on wind velocity profiles. The different vertical wind profiles, mixing length and surface areas used in the two models explain the difference. In Figure 4.10, the time series of this relative difference during a winter period (from January to March 2011) is presented for different building densities.

---

2. In French

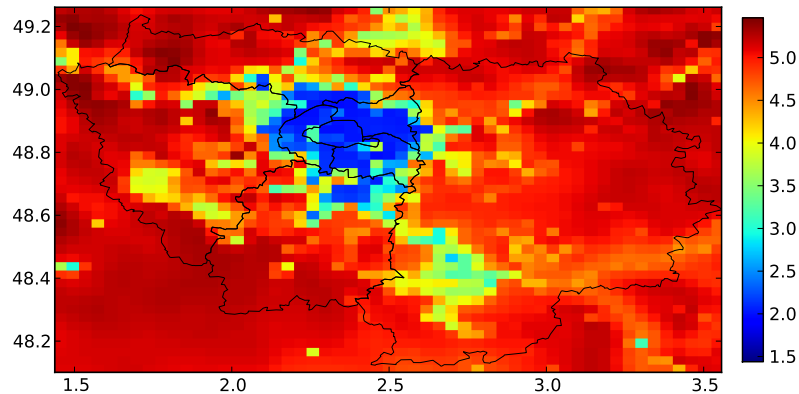


FIGURE 4.7 – Spatial distribution of the annual mean deposition velocity ( $\text{mm s}^{-1}$ ) for 2011 in the Paris region. The coordinates indicate longitude (east) and latitude (north). The black lines indicate the French administrative counties (“départements”).

### 4.3.3 Total flux over urban surfaces

A major difference between the standard roughness length model and the model developed here, is the ability of the latter to distinguish surfaces within the urban canopy. Figure 4.11 depicts the normalised dry deposition rates over walls (black and purple lines), roads (red and green lines) and roofs (blue line), which have been calculated for the Paris suburbs ( $\lambda_p = 0.4$ ) in November 2011 (a uniform pollutant concentration of  $1 \mu\text{g m}^{-3}$  is used to normalise the deposition rate). Figure 4.12 depicts the dry deposition fluxes on each surface and region for the same period. These fluxes are also normalised with a unit atmospheric concentration of  $1 \mu\text{g m}^{-3}$ .

The major fraction of dry deposition fluxes occurs on the roofs. The resistance to deposition is strongly influenced by the distance to the surface; thus, the deposition flux on roofs is larger than on any other surface.

In this configuration, even with a building density,  $\lambda_p = 0.4$ , the ventilation region is very narrow, and its contribution is close to zero, even if fluxes on surfaces in this region are significant (see Figure 4.12). It explains the reason why the deposition rate is close to zero in this region (strictly zero for the street, because there is no portion of the street that lies in the ventilation region). Figure 4.12 also shows that the modelled deposition on building walls is slightly lower than on streets in the same region (there is no sedimentation on walls). In the present parametrisation, the modelled deposition fluxes in the ventilation region are slightly larger than in the recirculation region. This difference can be explained by the rather strong shear layer created in the recirculation region, which implies that this part of the canyon is nearly isolated from the bulk atmosphere and explains that the deposition fluxes are lower in this region (see Figure 4.12).

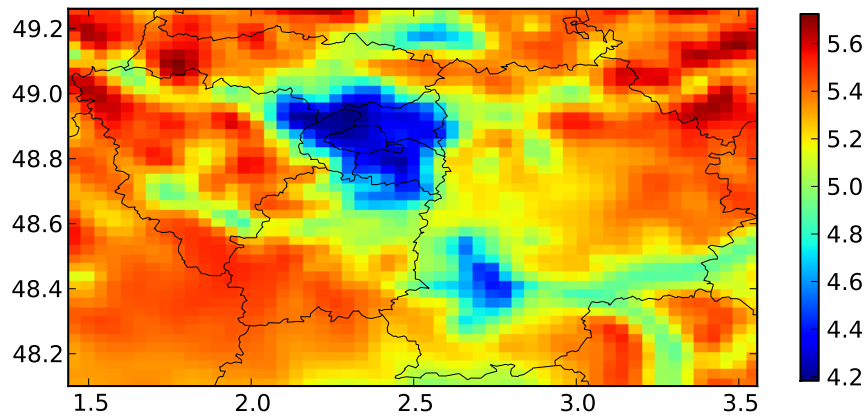


FIGURE 4.8 – Spatial distribution of the annual mean wind speed at the first model level ( $\text{m s}^{-1}$ ) for 2011 in the Paris region. The black lines indicate the French administrative counties (“départements”).

#### 4.3.4 Influence of building density

The impact of the building density ( $\lambda_p$ ) on the dry deposition velocity was investigated. In Figure 4.13, the dry deposition velocity is shown as a function of wind speed for four different building densities, all other variables and parameters being equal. The results obtained with this model are also compared to the roughness length model :

- $\lambda_p = 0.2$ , which cannot be classified as urban type, but rather sparse suburban area ;
- $\lambda_p = 0.4$ , which is typical of a suburban area ;
- $\lambda_p = 0.6$ , which is typical of a downtown area ;
- $\lambda_p = 0.8$ , which is a rather theoretical density.

The dry deposition velocity computed with the roughness length model is slightly lower than the dry deposition velocity computed with the present parametrisation for low to medium mean wind speed. At high wind speed, the dry deposition velocity computed with the roughness length model crosses over the one computed with the urban canopy model for a very low building density ( $\lambda_p = 0.2$ ). The dry deposition velocity computed with the roughness-length model is

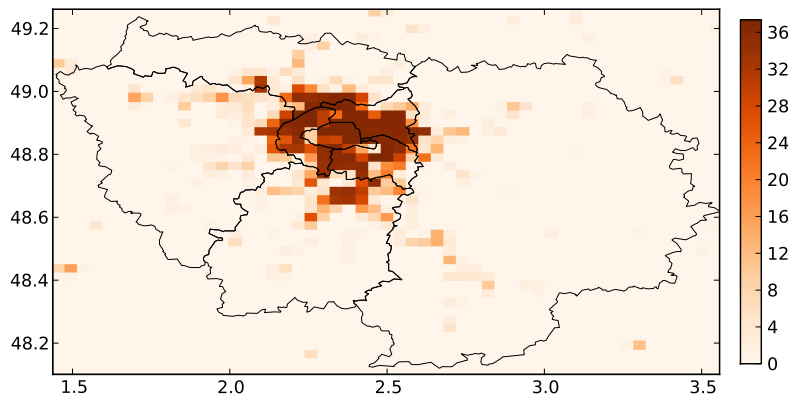


FIGURE 4.9 – Spatial distribution of the relative difference (%) between the urban canopy ( $\lambda_p = 0.4$ ) and the roughness-length models averaged over 2011 in the Paris region. The black lines indicate the French administrative counties (“départements”).

nearly linear with the wind speed, whereas the one computed with the urban canopy model is not.

The difference between the roughness length model and the urban canopy model can be partly explained by the fact that the surface available for deposition is greater in the latter. However, when the building density is very low, additional deposition surfaces are not large enough to compensate the resistance of the last few meters, which are not taken into account in the roughness length model (i.e., from  $d$  to the ground).

Concerning the urban canopy model at higher building densities, one might expect that, as the turbulence increases, the deposition rate should grow with building density. However, once a threshold is exceeded ( $\lambda_p \approx 0.6$ ), the dry deposition velocity decreases with the building density in the present parametrisation, because the strong shear layer generated by buildings nearly suppresses interactions between the canyon and the bulk atmosphere (i.e.,  $R_{a,\text{canyon},\text{recirc.}}$  increases strongly). Such results can only be obtained with an urban canopy model that provides some differentiation among different flow regimes within urban canyons. These results are consistent with measurements obtained in Chicago and South Haven by Yi *et al.* (2001). They found that the dry deposition velocity (overall dry deposition velocities for various pollutants) was higher in Chicago (moderate  $\lambda_p$ ) than in South Haven (low  $\lambda_p$ ).

### 4.3.5 Other sensitivity tests

In this section, the sensitivity of the model results to the following key parameters is investigated : the coefficient  $\alpha$  of the displacement height formulation, the characteristic recirculation length  $W_r$ , the threshold  $z_{\text{limit}}$  and the attenuation coefficient  $\beta$  of the exponential wind profile.

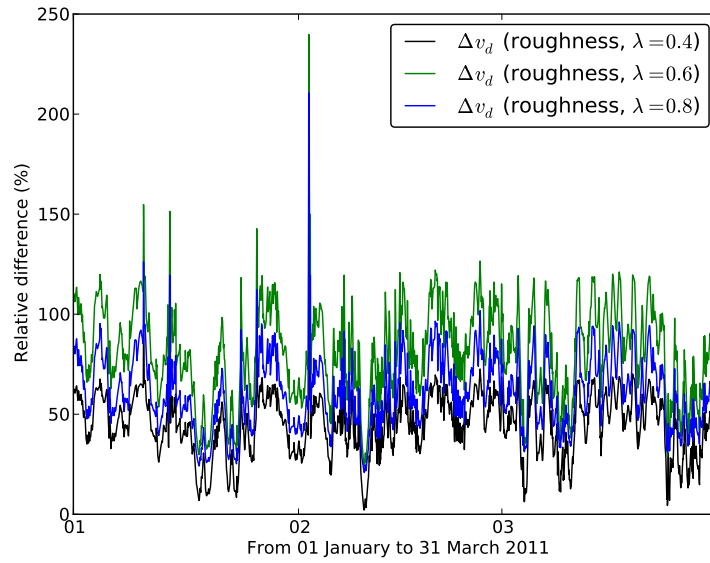


FIGURE 4.10 – Time series of dry deposition velocity difference between the urban canopy and roughness-length models from January 2011 to March 2011 in one urban grid cell for three values of the building density.

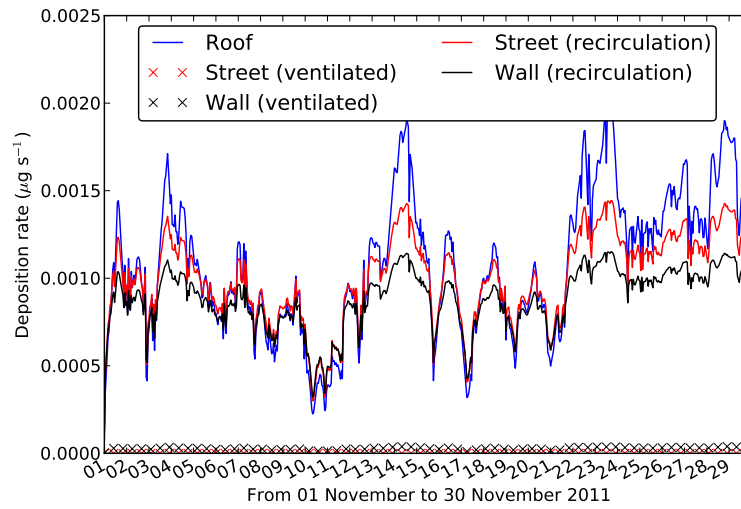


FIGURE 4.11 – Deposition rate ( $\mu\text{g s}^{-1}$ ) of pollutants ( $\bar{c} = 1 \mu\text{g m}^{-3}$ ) for each surface and region in November 2011.

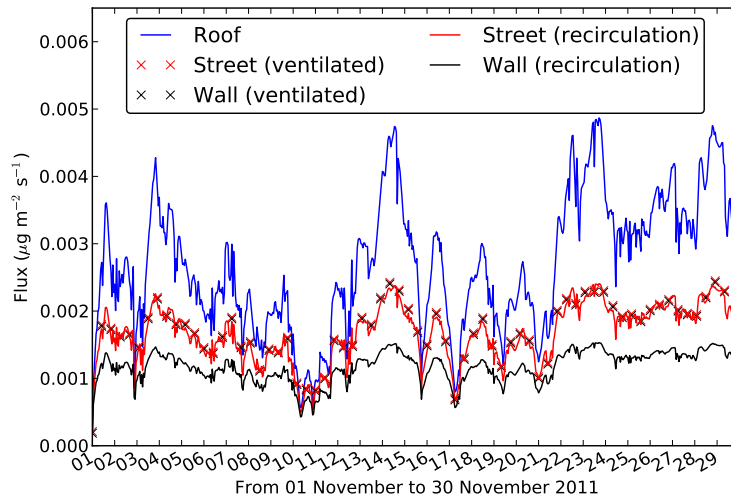


FIGURE 4.12 – Flux ( $\mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ ) of pollutants ( $\bar{c} = 1 \mu\text{g m}^{-3}$ ) for each surface and region in November 2011.

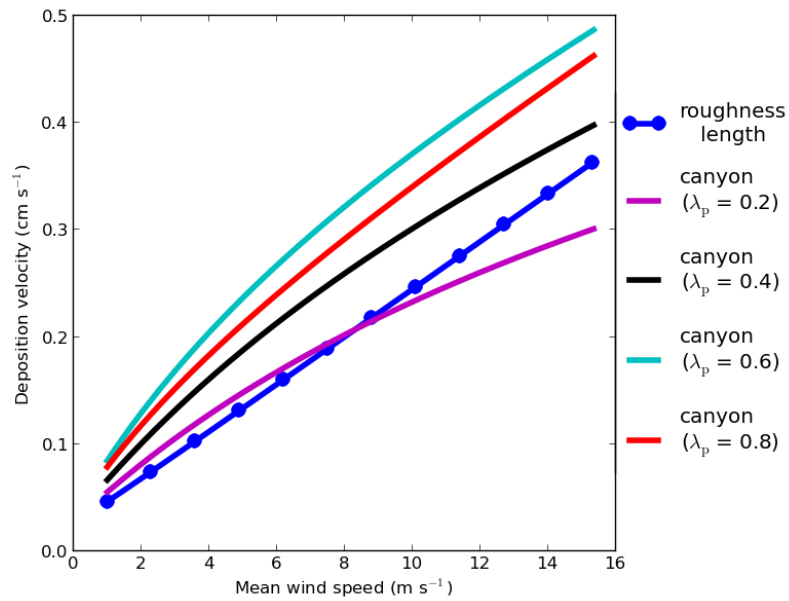


FIGURE 4.13 – Evolution of dry deposition velocity as a function of wind speed and building density.

#### 4.3.5.1 Coefficient $\alpha$ of the displacement height

Macdonald *et al.* (1998) chose to set the coefficient  $\alpha$  in Equation (4.3) to 4. This value was obtained from experiments conducted over arrays of cubes. We have tested our model, using the following canyon characteristic lengths :

- mean building height : 12 meter,
- mean road width :  $\begin{cases} 18.75 \text{ meter} & \text{for } \lambda_p = 0.4 \\ 6.25 \text{ meter} & \text{for } \lambda_p = 0.6 \\ 3.125 \text{ meter} & \text{for } \lambda_p = 0.8 \end{cases}$

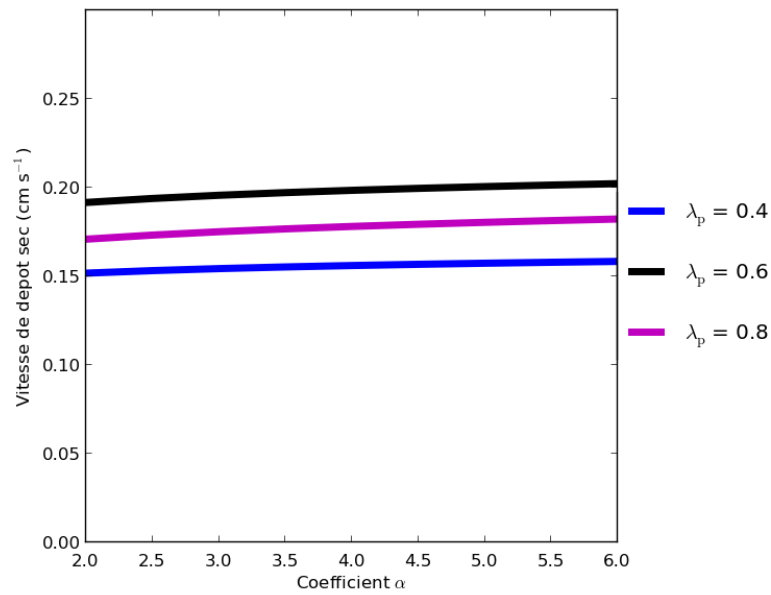


FIGURE 4.14 – Dry deposition velocity as a function of  $\alpha$ .

As it can be seen in Figure 4.14, the dry deposition velocity is not very sensitive to the values of  $\alpha$ . For  $\lambda_p = 0.8$  and  $\alpha \in [2, 6]$ , the dry deposition velocity varies by less than 7%. It varies by less than 6% for  $\lambda_p = 0.6$  and by 4% for  $\lambda_p = 0.4$ .

Therefore, the canopy model is not very sensitive to the value of  $\alpha$  and the default value of 4 seems appropriate.

#### 4.3.5.2 Characteristic recirculation length $W_r$

The canyon characteristic recirculation lengths are defined empirically as 2 to 3.5 times the building height (see Section 4.1.1)

Therefore, for a building height of 12 m, we conducted simulations with  $W_r$  varying from 24 to 42 m. For  $\lambda_p = 0.6$  and  $\lambda_p = 0.8$ , the dry deposition velocity is not very sensitive to the value of  $W_r$  (not shown). It can be explained by the fact that, in these densely built configurations, the ventilation region is very narrow or nonexistent. For a rather low building density ( $\lambda_p = 0.4$ ), which includes a large ventilation region, the dry deposition varies by only 8% (not shown).



Therefore, this parameter has little influence on the canopy model. It can affect the distribution of pollutants within the canopy because it defines the boundary between the recirculation region and the ventilation region, but it has little effect on the amount of pollutants removed from the atmosphere.

#### 4.3.5.3 Threshold $z_{\text{limit}}$

The threshold  $z_{\text{limit}}$  defines the height at which the wind profile within the urban canyon switches from a logarithmic profile near the surface to an exponential profile. The sensitivity of the dry deposition velocity to the threshold  $z_{\text{limit}}$  (via the value of  $\Phi$ ) is investigated.

For all building densities, the variation does not exceed 9% for  $\Phi \in [0.1, 0.2]$  (not shown). The dry deposition velocity is not very sensitive to the value of  $z_{\text{limit}}$ . A value of  $\Phi = 0.2$  was chosen.

#### 4.3.5.4 Attenuation coefficient $\beta$ of the exponential wind profile

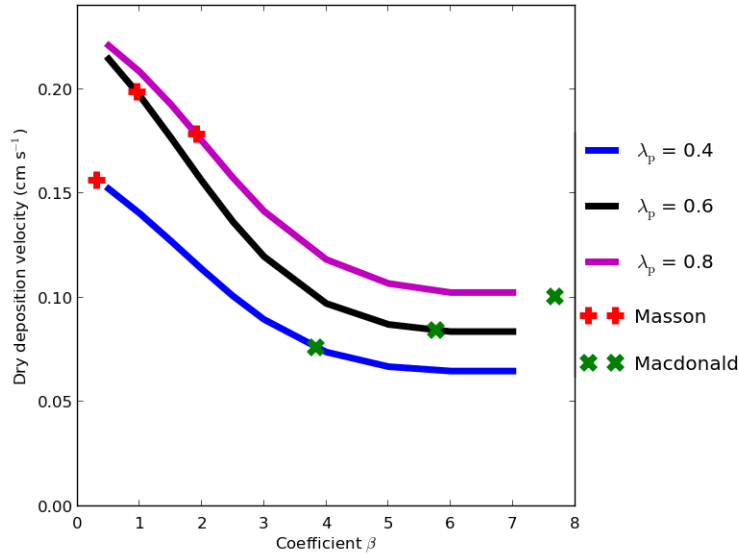


FIGURE 4.15 – Dry deposition velocity as a function of  $\beta$ .

The sensitivity of the dry deposition velocity to the attenuation coefficient  $\beta$  is illustrated in Figure 4.15.

This parameter strongly influences the dry deposition velocity. According to Cionco (1972),  $\beta$  should be between 0.5 and 3 for a wide range of vegetative canopies. In this range, the dry deposition velocity varies by a factor of about two.

Several formulations are available to define  $\beta$  (see Section 4.1.2.2). In order to decide which formulation should be chosen, it is important to note that the geometry chosen in this work ( $\lambda_p = \lambda_f$ ) does not seem to be compatible with the ones studied by Macdonald (2000). In fact, the frontal building density in his work is considered to be lower than 0.35. Above this density, the formulation could not be applied. Since the building density in this work varies between 0.2 and 0.8, MacDonalD’s formulation was not considered here. Regarding Masson’s formulation, it

is within the range recommended by Cionco (1972). Moreover, it has been computed from measurements in a real urban area (Toulouse, France), and then confirmed with another experiment (e.g. Lemonsu *et al.*, 2004, during the ESCOMPTE campaign). Therefore, Masson’s formulation was used here.

## 4.4 Conclusion

The standard roughness length model is appropriate if one is interested in the removal of airborne pollutants from the atmosphere. However, if one wants to follow the spatial distribution of pollutant deposition within urban areas, the roughness length model is not suitable because it fails to differentiate among the different types of surfaces (roofs, walls, streets, ...). For example, the experimental results of Roupsard *et al.* (2013) suggest that dry deposition velocities can vary by a factor of 24 between two surface types in urban areas. Consequently, there is a need to be able to model dry deposition in urban areas with some spatial resolution.

We have presented an urban canopy model for dry deposition that takes into account the atmospheric flow regimes depending on urban morphology and resolves three types of surfaces (roofs, walls, and streets). Therefore, this approach provides three-dimensional spatially distributed dry deposition fields within the urban canopy, which cannot be obtained from the roughness-length model. The model was shown not to be very sensitive to key parameters related to the atmospheric flow within the urban canyon (except for the attenuation coefficient  $\beta$ ). The building density affects the dry deposition velocity. For a suburban area, the urban canopy model led to greater dry deposition than the roughness length model. For sparsely built areas, both modelling approaches gave similar results at low wind speeds but diverge at high wind speeds due to their different vertical wind profile formulations. For very densely built areas, the formation of a shear layer prevents dry deposition within the urban canyon and there is an optimal building density that maximizes dry deposition in the present model.

This work has shown that fluxes of pollutants may vary by a factor of 4 among different surfaces and regions in a given urban area. Further work could address a finer characterization of surface materials in terms of roughness to better estimate dry deposition fluxes according to surface types, thereby leading to even greater variability in dry deposition fluxes.

Further work could also address finer representations of micrometeorology within the urban canopy (e.g. improved wind profile). Using a meteorological model with fine vertical resolution (or a multi-layer model) within the urban canopy could provide valuable information on atmospheric turbulence. An adaptation of a multi-layer canopy model could also be used to refine the aerodynamic resistance formulation. Furthermore, applications to actual urban configurations should be conducted.

Above the urban canopy, the thermal stability has been taken into account through the use of the Louis (1979) parametrisation. Within the urban canopy, a neutral condition was assumed. Because of the urban heat island, the layer within the urban canopy could be either neutral or unstable. Further analysis should be conducted to investigate the influence of unstable conditions on the dry deposition flux.

The contribution of sources of some air pollutants (e.g., from road traffic) within the urban canopy may need to be taken into account.

Finally, there is a need for measurements of dry deposition velocities in urban areas, which could be used to evaluate and improve dry deposition models. However, such measurements are very difficult to implement and new method developments (e.g., use of isotopes in laboratory settings) may be required to obtain experimental databases suitable for model performance evaluation.

# Mise en place des simulations et comparaison aux observations

## Chapitre 5

# Modélisation et comparaison aux mesures

## 5.1 Définitions des domaines étudiés

Un des objectifs du projet INOGEV était de développer une meilleure compréhension de la contribution des retombées atmosphériques (dépôts secs et humides) à la contamination des eaux de ruissellement. Dans ce contexte, trois bassins versants ont été étudiés :

- Le Pin Sec, un quartier de Nantes (44000) ;
- Sucy-en-Brie (94370), en région parisienne ;
- Chassieu (69680), près de Lyon.

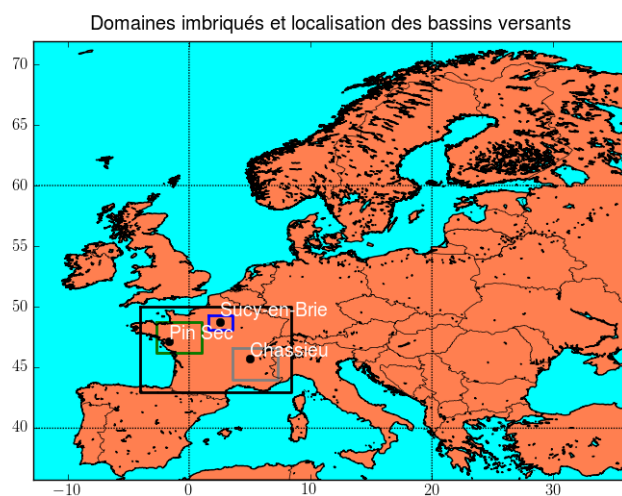
L'une des informations qui intéressait le projet était l'origine géographiques des polluants. Pour cela, il a été décidé de réaliser des simulations sur plusieurs domaines dont :

- un domaine dit supra-national qui couvre l'ensemble de l'Europe ;
- un domaine national dont l'emprise principale se situe sur la France ;
- trois domaines régionaux autour des régions Île-de-France, Rhône-Alpes et Pays-de-la-Loire ;
- trois domaines urbains centrés sur les bassins versants de Sucy-en-Brie, de Chassieu et du Pin Sec.

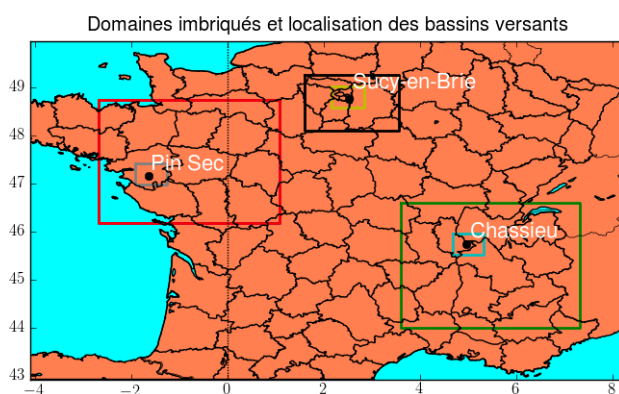
Un autre intérêt de ce choix de domaines vient de la descente d'échelles possibles. En effet, même si en théorie, la résolution spatiale peut être aussi fine que nécessaire, dans la pratique, la contrainte liée au temps de calcul et au stockage des données limite le nombre de mailles du domaine, et par conséquent la résolution spatiale. La descente d'échelles par emboîtements successifs de domaines dont la résolution est plus fine pour le domaine plus petit permet de s'affranchir en partie de ces contraintes. Les limites des différents domaines d'intérêt ont été tracées dans la Figure 5.1. Leur définition est décrite dans le Tableau 5.1. Sur la verticale ils partagent une discrétisation commune en huit niveaux verticaux qui vont de la surface jusqu'à 6 km d'altitude. Les limites de ces niveaux en hauteur relative par rapport au sol sont 0, 50, 150, 300, 800, 1 500, 2 500, 4 000 et 6 000 m.

Tableau 5.1 – Définition des différents domaines étudiés.

| Nom              | latitude<br>[min ;max]   | pas    | longitude<br>[min ;max] | pas     |
|------------------|--------------------------|--------|-------------------------|---------|
| Europe           | 36°N ;72.18°N            | 0.54°  | 12.375°E ;36.765°W      | 0.91°   |
| France           | 43°N ;50.02°N            | 0.135° | 4°E ;8.4°W              | 0.2°    |
| Île-de-France    | 48.111395°N ;49.272395°N | 0.027° | 1.6°W ;3.56°W           | 0.04°   |
| Rhône-Alpes      | 44°N ;46.61°N            | 0.045° | 3.6°W ;7.312°W          | 0.064°  |
| Pays-de-la-Loire | 46.18°N ;48.745°N        | 0.045° | 2.69°E ;1.072°W         | 0.066°  |
| Paris            | 48.575°N ;49.025°N       | 0.009° | 2.16°W ;2.84°W          | 0.0136° |
| Lyon             | 45.52°N ;45.97°N         | 0.009° | 4.678°W ;5.323°W        | 0.0129° |
| Nantes           | 46.975°N ;47.425°N       | 0.009° | 1.93°E ;1.27°E          | 0.0132° |



(a) Localisation des domaines supra-national, national et régionaux.



(b) Localisation des domaines national, régionaux et urbains.

FIGURE 5.1 – Localisation des 8 domaines d'intérêt.

## 5.2 Données d'entrée du modèle

Le modèle de qualité de l'air, POLAIR3D, de la plate-forme de modélisation Polyphemus (Mallet *et al.*, 2007) est utilisé ici pour simuler les concentrations et dépôts atmosphériques de deux polluants métalliques : le plomb (Pb) et le cadmium (Cd).

### 5.2.1 Occupation des sols

Le modèle développé est un modèle de dépôt en milieu urbain. Il est donc important d’avoir une base de données de sols à jour, qui soit la plus précise possible, puisque les dépôts secs dépendent fortement de la nature des surfaces. Un nouveau jeu de données d’occupation des sols (LUC pour Land Use Cover) a donc été constitué pour les simulations. La base de données d’occupation des sols GLC2000 (Global Land Cover 2000 database) est fournie par un centre de recherche affilié à la Commission Européenne (European Commission, Joint Research Centre). Contrairement aux données issues de la base de données Corine Land Cover 2006, elle n’est pas lacunaire pour certains pays (Suisse et Norvège). Elle est constituée de 23 classes d’occupation des sols, dont une seule est dévolue aux zones urbaines. Sa résolution est de 1 km (à l’équateur). Quant aux données issues de Corine Land Cover, l’occupation des sols de type urbain est répartie selon 9 classes parmi les 44 classes disponibles. La résolution spatiale de cette base de données est de 250 m.

L’étendue des zones urbaines entre ces deux bases de données a été comparée. Pour le domaine national (voir Section 5.1 pour une description des différents domaines étudiés) qui s’étend sur une surface de 262 676 km<sup>2</sup>, près de 8 068 km<sup>2</sup> sont dévolus aux zones urbaines dans la base de données GLC2000, soit un peu plus de 3% du territoire. Quant à la base de données CLC2006, l’emprise des zones urbaines s’étend sur plus de 27 960 km<sup>2</sup>, soit près de 11% du domaine étudié. On voit donc que l’emprise de la zone urbaine, si on considère l’une ou l’autre des bases de données d’occupation des sols, est totalement différente, avec un facteur 3,6 entre les deux bases de données.

Le taux d’artificialisation a été estimé pour la France à hauteur de 9% selon l’enquête Teruti-Lucas (enquête annuelle sur l’utilisation des terres, réalisée par le ministère chargé de l’agriculture, par photographie aérienne et observation directe) réalisée en 2012. Pour comparaison, ce taux n’atteint que 5.1% pour la base de données CLC2006 sur le même domaine (données INSEE<sup>1</sup>), et est encore plus faible pour les données GLC2000.

Ceci nous amène à penser que l’utilisation des données générées à partir de la base de données Corine est plus pertinente, surtout au vu de la localisation des domaines étudiés, centrés sur 3 bassins versants fortement urbanisés. Il reste que la base de données CLC2006 est lacunaire pour certains pays. Pour pallier cela, les données de sols issues de GLC2000 ont été utilisées pour combler les absences.

Afin de profiter des capacités du modèle de dépôt, quatre catégories différentes de type urbain ont été distinguées, différenciées par la hauteur et la densité moyennes estimées du bâti (voir Tableau 5.2).

### 5.2.2 Conditions aux limites et initiales

Selon le Meteorological Synthesizing Center-East (MSC-E), les conditions aux limites du plomb et du cadmium ne sont pas des données aussi critiques que pour le mercure par exemple. En effet, le temps de séjour de ces polluants est plus faible dans l’atmosphère que celui du mercure, qui est d’environ un an en moyenne. Le domaine supra-national (Europe) permet de définir les conditions aux limites pour les domaines nichés (voir Section 5.1). Pour le domaine supra-national, elles sont choisies nulles, en l’absence de données.

---

1. [http://insee.fr/fr/themes/document.asp?reg\\_id=17&ref\\_id=15236](http://insee.fr/fr/themes/document.asp?reg_id=17&ref_id=15236)

Tableau 5.2 – Catégories d’occupation des sols urbains définies à partir de la base de données d’occupation des sols Corine CLC2006.

| Cat. | LABEL 3 - Corine                                   | LABEL 2 - Corine  | Densité du bâti | Hauteur des bâtiments |
|------|--|---|-----------------|-----------------------|
| 1    | Tissu urbain continu                               | Zones urbanisées  | dense           | élevée                |
| 2    | Tissu urbain discontinu                            | Zones urbanisées  | modéré          | modérée               |
| 3    | Zones industrielles et commerciales                | Zones industrielles ou commerciales et réseaux de communication | faible          | modérée               |
| 4    | Réseaux routier et ferroviaire et espaces associés | Zones industrielles ou commerciales et réseaux de communication | faible          | faible                |
| 5    | Zones portuaires                                   | Zones industrielles ou commerciales et réseaux de communication | faible          | modérée               |
| 6    | Aéroports  | Zones industrielles ou commerciales et réseaux de communication | faible          | modérée               |
| 7    | Extraction de matériaux                            | Mines, décharges et chantiers                                   | faible          | faible                |
| 8    | Décharges  | Mines, décharges et chantiers                                   | faible          | faible                |
| 9    | Chantiers  | Mines, décharges et chantiers                                   | modérée         | modérée               |
| 10   | Espaces verts urbains                              | Espaces verts artificialisés, non agricoles                     | —               | —                     |
| 11   | Équipements sportifs et de loisirs                 | Espaces verts artificialisés, non agricoles                     | —               | —                     |

### 5.2.3 Données météorologiques

Une approche communément utilisée consiste à décorrélérer la dynamique de l’écoulement et des concentrations des polluants. On parle souvent de modèle “off line”. Les données météorologiques sont donc calculées a priori et servent de données d’entrée du modèle de qualité de l’air. Pour ces travaux, les données météorologiques ont été générées à l’aide du modèle de prévision météorologique WFR (Weather Research and Forecasting Model) du National Center for Atmospheric Research (NCAR) et d’autres laboratoires nationaux des États-Unis.

Les National Centers for Environmental Prediction (NCEP) mettent à disposition des analyses à larges échelles qui permettent de forcer les champs initiaux sur le domaine le plus grossier, c’est-à-dire le domaine européen. Ces données dites NCEP FNL (Final) sont issues d’une réanalyse de données d’observation et de prévision. Elles sont disponibles par tranches de 6 heures, sur une grille de résolution  $1.0^\circ \times 1.0^\circ$ .

Pour les mêmes raisons qu’expliquées dans la Section 5.2.1, les données de sols utilisées par WRF ont été régénérées à partir de la base de données d’occupation des sols Corine. Les simulations WRF sont généralement menées avec une base de données d’occupation des sols de type USGS (United States Geological Survey). Les données ont ainsi été générées au format USGS, avec une résolution de 12’ d’arc. Par ailleurs, De Meij et Vinuesa (2014) ont montré que l’utilisation de données de sol issues de la base de données Corine améliorerait sensiblement les données météorologiques. Les résultats des modèles de qualité de l’air étant particulièrement sensibles aux données météorologiques, ce choix en est d’autant plus justifié.



Les données météorologiques sont générées sur les 8 domaines nichés définis dans la Section 5.1. Par ailleurs, les descentes d’échelles telles que définies dans cette section permettent un échange entre les domaines dits « 2-way nesting ». Ce mode, proposé par WRF, permet d’échanger, en plus des conditions aux limites du domaine grossier vers le domaine plus fin (influence descendante), une influence des domaines nichés sur leur domaine parent (influence ascendante). Les choix de configuration du modèle WRF réalisés pour ces simulations sont synthétisés dans le Tableau 5.3

#### 5.2.4 Données urbaines

Percot (2012) a étudié le bassin du Pin Sec. Cette étude l’a amené à parcourir le bassin versant du Pin Sec et y relever notamment la surface vitrée, ainsi que la hauteur des bâtiments.

Nous avons utilisé ces résultats et nous les avons généralisés pour en déduire des paramètres moyens pour chaque type d’urbain :

- densité du bâti,
- hauteur moyenne des bâtiments,
- largeur moyenne des rues,
- surface vitrée.

Le modèle de dépôt, en particulier le calcul de la résistance de surface, s’appuie sur une base d’occupation des sols de type Zhang *et al.* (2001). C’est pourquoi, il a été décidé d’étendre le type d’occupation des sols de type Zhang, en remplaçant l’unique type d’urbain par 4 différents types d’occupation urbaine des sols. Ces paramètres sont référencés dans le Tableau 5.4.

Tableau 5.3 – Configuration et paramétrisations physiques du modèle WRF.

| domaine WRF            | 1   | 2      | 3                                 | 4           | 5             | 6      | 7     | 8     |
|------------------------|---|--------|-----------------------------------|-------------|---------------|--------|-------|-------|
| domaine POLAIR3D       | Europe  | France | Pays-de-la-Loire                  | Rhône-Alpes | Île-de-France | Nantes | Lyon  | Paris |
| résolution             | 60 km   | 15 km  | 5 km                              | 5 km        | 3 km          | 1 km   | 1 km  | 1 km  |
| # cellules             | 86×84   | 93×81  | 82×82                             | 79×79       | 66×66         | 71×76  | 71×71 | 70×73 |
| # couches              | 24 niveaux verticaux<br>(1,0;0,995;0,988;0,980;0,970;0,956;0,938;0,916;0,893;0,868;0,839;0,808;0,777;0,744;0,702;0,648;0,582;0,500;0,400;0,300;0,200;0,120;0,052;0,0) |        |                                   |             |               |        |       |       |
| pas de temps           |   |        |                                   |             |               |        |       |       |
| intégration            | 360 s   | 90 s   | 30 s                              | 30 s        | 18 s          | 6 s    | 6 s   | 6 s   |
| sortie                 | 1 h   | 1 h    | 1 h                               | 1 h         | 1 h           | 1 h    | 1 h   | 1 h   |
| micro-physique         | schéma de Kessler   |        |                                   |             |               |        |       |       |
| cumulus                | schéma de Grell-Devenyi   |        |                                   |             |               |        |       |       |
| schéma radiatif        |   |        |                                   |             |               |        |       |       |
| grande longueur d'onde | schéma RRTM ("Radiative Rapid Transfer Model")  |        |                                   |             |               |        |       |       |
| petite longueur d'onde | schéma RRTMG  |        |                                   |             |               |        |       |       |
| couche limite          |   |        |                                   |             |               |        |       |       |
| planétaire             | schéma de l'université Yonsei   |        |                                   |             |               |        |       |       |
| de surface             | paramétrisation de la théorie de la similitude dans MM5   |        |                                   |             |               |        |       |       |
| urbaine                | -   | -      | schéma UCM ("Urban Canopy Model") |             |               |        |       |       |

Tableau 5.4 – Paramètres associés aux différents types d'urbain.

| Catégorie Zhang étendu                          | 15            | 16                   | 17                               | 18                |
|---|---------------|----------------------|----------------------------------|-------------------|
| Densité et hauteur moyennes du bâti             | Dense, élevée | modérée, modérée     | faible, modérée                  | faible, faible    |
| Surface typique                                 | centre ville  | quartier résidentiel | centre commercial, (aéro)port... | mine, décharge... |
| Hauteur des bâtiments (en mètres)               | 18            | 14                   | 12                               | 8                 |
| Largeur de la rue (en mètres)                   | 9             | 12                   | 30                               | 20                |
| Densité du bâti                                 | 0.7           | 0.5                  | 0.4                              | 0.4               |
| Pourcentage de surfaces vitrées sur les façades | 20            | 6                    | 20                               | 0                 |

## 5.3 Configuration du modèle POLAIR3D

### 5.3.1 Représentation des particules métalliques dans POLAIR3D

Les deux métaux lourds d'intérêt (cadmium et plomb) sont caractérisés, comme cela a été rappelé, par leur peu de réactivité atmosphérique, ce qui nous a donc amené à les considérer comme chimiquement inertes, transportés par les particules dans lesquelles ils sont présents. La masse volumique de ces particules a été fixée à  $1400 \text{ kg.m}^{-3}$ , basée sur celle du sulfate d'ammonium définie par Ruijgrok *et al.* (1997). On suppose donc que ces polluants métalliques particuliers émis dans l'atmosphère sont rapidement associés dans ces particules à du sulfate d'ammonium qui se condense sur ces particules. L'approche utilisée pour représenter la distribution en taille de la population de particules porteuses des métaux lourds repose sur une discrétisation de cette distribution en un certain nombre de classes de taille. On parle alors de modèle résolu en taille (voir Roustan, 2005, pour une description du modèle dans POLAIR3D). Les diamètres minimum et maximum définissant le spectre complet de ces classes de taille sont respectivement de  $0,01 \mu\text{m}$  et  $10 \mu\text{m}$ . Cet intervalle est découpé en 5 classes (bins), dont les diamètres limites ont été définis comme suit :  $0,01$  ;  $0,0398$  ;  $0,1585$  ;  $0,6310$  ;  $2,5119$  ;  $10 \mu\text{m}$ .

### 5.3.2 Distribution des émissions par classe de taille

La dernière étape de la spécification des émissions de Pb et de Cd consiste à choisir la répartition entre les différentes classes de taille ainsi définies. Il est à noter qu'aucune donnée sur la distribution en taille des métaux particuliers n'est mise à disposition par l'EMEP conjointement aux inventaires d'émissions de métaux lourds. En l'absence de cette donnée un choix doit être réalisé. Les travaux de Percot (2012) sur le site du bassin versant du Pin Sec fournissent une distribution en taille des particules observées. Cette distribution pourrait être utilisée en première approche pour les émissions locales mais sa représentativité à l'échelle européenne n'est pas assurée. Par soucis de simplicité une répartition uniforme sur les classes de taille préalablement définies a été choisie. Étant donné la répartition non linéaire des classes de taille ce choix implique que 60% des apports sont attribués aux particules de diamètre inférieur à  $1 \mu\text{m}$  ( $\text{PM}_{1,0}$ ). Il est cohérent avec la plupart des études menées sur la distribution en taille des particules métalliques, qui situe ce chiffre entre 40% et 70% du Pb et Cd portés par des  $\text{PM}_{1,0}$  (voir Roustan, 2005, pour une revue exhaustive sur le sujet).

### 5.3.3 Représentation des processus de dépôt

Le modèle utilisé pour représenter le dépôt sec a été décrit au Chapitre 4. L'autre processus de dépôt déterminant les concentrations atmosphériques est le dépôt humide, aussi appelé lessivage.

Le dépôt humide est généralement considéré comme ayant deux composantes distinctes, le lessivage dans le nuage et le lessivage sous le nuage. La part du lessivage dans le nuage au dépôt humide varie suivant les conditions, mais ne peut pas être ignoré a priori. Le lessivage sous le nuage est lié à l'efficacité de collecte des particules par les hydrométéores (pluies, neiges, etc.) alors que le lessivage dans le nuage est principalement lié à la nucléation (formation des gouttelettes autour des particules).

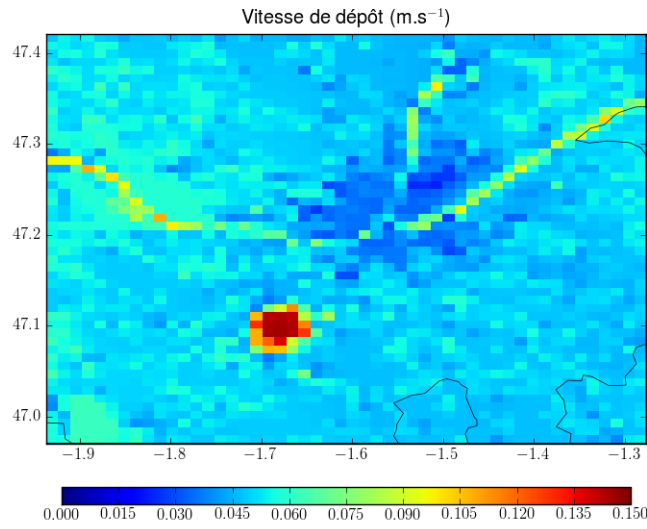
Pour le lessivage sous les nuages, c'est le modèle de Slinn (1983) qui est utilisé avec un diamètre représentatif unique pour les gouttes d'eau précipitantes (Atlas, 1953). Pour le modèle de lessivage dans les nuages c'est le modèle proposé par Roselle et Binkowski (1999) qui est utilisé. Il est basé sur l'intensité de précipitation et le contenu en eau liquide.

## 5.4 Comparaison aux mesures

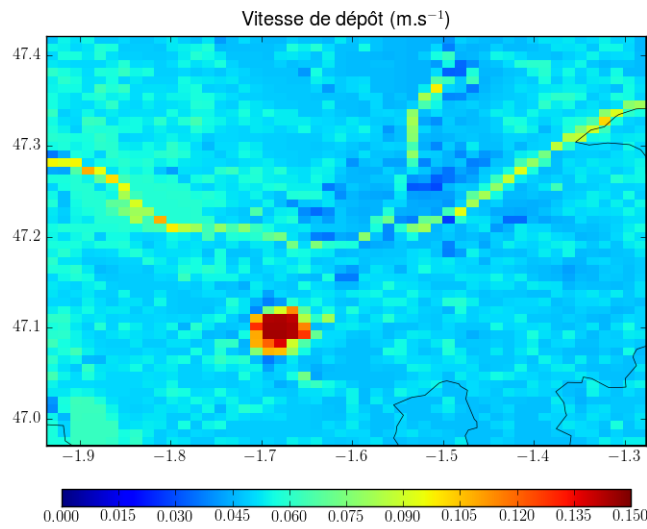
Les concentrations moyennes dans l'air ainsi que les dépôts sec et humide ont été simulés sur l'ensemble des 8 domaines. Des données d'observations sont disponibles seulement sur les domaines Europe et Nantes. Trois simulations ont été réalisées, avec les mêmes données d'entrées (conditions météorologiques, aux limites...), différant seulement par le modèle de dépôt sec utilisé :

1. le modèle classique utilisant l'approche rugueuse (Zhang *et al.*, 2001) ;
2. le modèle de type urbain développé dans cette thèse, mais conservant la même résistance de surface que le modèle classique ;
3. le modèle de type urbain, avec la résistance de surface définie dans le paragraphe 3.2.4 à partir des données de Roupsard *et al.* (2013).

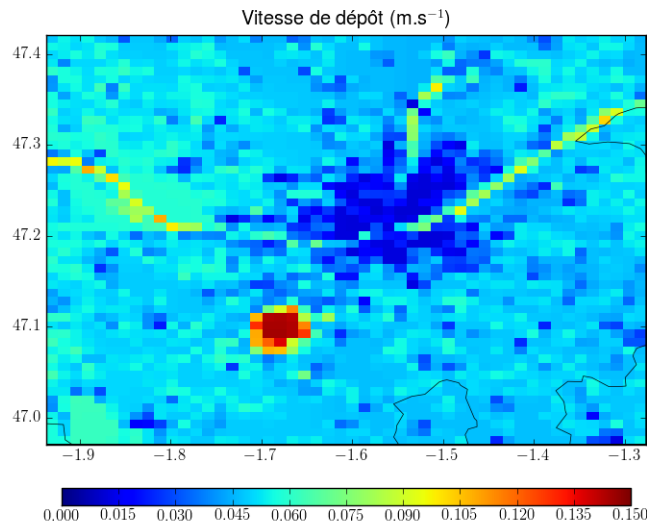
La Figure 5.2, montre que le modèle de dépôt sec est très sensible à la résistance de surface. À l'échelle européenne étant donné la difficulté d'alimenter le modèle urbain en information pertinente sur les caractéristiques des surfaces verticales et horizontales il apparaît préférable de limiter la comparaison aux deux premiers modèles (rugueux et urbains).



(a) Carte des vitesses de dépôt du modèle rugueux.



(b) Carte des vitesses de dépôt du modèle urbain avec la résistance de surface de Zhang *et al.* (2001).



(c) Carte des vitesses de dépôt du modèle urbain avec la résistance de surface modifiée.

FIGURE 5.2 – Comparaison des vitesses de dépôts des trois simulations sur le bassin versant du Pin Sec.

### 5.4.1 Indicateurs statistiques utilisés

Les différents indicateurs statistiques utilisés pour la comparaison des résultats de simulations aux observations sont décrits ci-dessous. Dans ces définitions on notera :

$o_i$  un élément d'une série de valeurs d'observations et  $s_i$  son pendant simulé.

$\bar{o} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n o_i$  et  $\bar{s} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n s_i$  les moyennes de séries de valeurs d'observation et de simulation.

Avec ces notations, on définit :

- l'écart type (STD pour "Standard deviation")

$$\text{STD} = \sqrt{(s - \bar{s})^2}$$

- le biais moyen (MBE pour "Mean Bias Error")

$$\text{MBE} = \bar{s} - \bar{o}$$

- le biais fractionnel (FB pour "Fractionnal Bias")

$$\text{FB} = 2 \frac{\bar{s} - \bar{o}}{\bar{s} + \bar{o}}$$

- l'erreur quadratique moyenne (RMSE pour "Root Mean Square Error")

$$\text{RMSE} = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (s_i - o_i)^2}$$

- le coefficient de détermination ( $R^2$ )

$$R^2 = \frac{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (s_i - \bar{s})(o_i - \bar{o})}{\sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (s_i - \bar{s})^2 \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (o_i - \bar{o})^2}}$$

- le biais moyen normalisé (NMB pour "Normalized Mean Bias")

$$\text{NMB} = \frac{\sum_{i=1}^n s_i - o_i}{\sum_{i=1}^n o_i}$$

- l'erreur moyenne normalisée (NME pour "Normalized Mean Bias")

$$\text{NME} = \frac{\sum_{i=1}^n |s_i - o_i|}{\sum_{i=1}^n o_i}$$

- le pourcentage des écarts compris dans un facteur X ( $F_X$ )

$$F_X = 100 \times \frac{1}{n} \text{Card} \left\{ (o_i, s_i), i = 1 \dots n \mid \frac{1}{X} \geq \frac{s_i}{o_i} \geq X \right\}$$

## 5.4.2 Mesures du NILU

Deux jeux de données issus des simulations POLAIR3D vont être comparés aux données d’observation fournies par le Chemical Co-ordinating Centre (CCC) du Norwegian Institute for Air Research (NILU). Ces deux jeux de données sont issus des simulations avec le modèle de dépôt sec “rugeux” et le modèle de dépôt sec développé dans ce travail.

### 5.4.2.1 Concentrations atmosphériques

Une synthèse des indicateurs statistiques calculés pour quantifier les écarts entre modèle et mesure est proposée dans le Tableau 5.5. La localisation des différentes stations d’observations dont les données sont disponibles pour les concentrations du plomb et de cadmium est affichée sur les cartes de la Figure 5.3.

Tableau 5.5 – Indicateurs statistiques globaux obtenus pour la comparaison avec les observations mensuelles de concentration dans l’air du NILU.

| Modèle   | Cd (493 observations)                                  |   | Pb (485 observations)                                |  |
|--|--|---|--|--|
|  | “rugeux”   | urbain  | “rugeux”   | urbain   |
| Moyenne et STD (en $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) |  |   |  |  |
| des observations                                     | $12,6 \times 10^{-5}$<br>( $\pm 13,0 \times 10^{-5}$ ) |   | $3,6 \times 10^{-3}$<br>( $\pm 3,1 \times 10^{-3}$ ) |  |
| des simulations                                      | $7,8 \times 10^{-5}$<br>( $\pm 10,3 \times 10^{-5}$ )  | $7,8 \times 10^{-5}$<br>( $\pm 10,1 \times 10^{-5}$ ) | $2,4 \times 10^{-3}$<br>( $\pm 3,2 \times 10^{-3}$ ) | $2,4 \times 10^{-3}$<br>( $\pm 3,2 \times 10^{-3}$ ) |
| Moyenne temporelle des corrélations spatiales        | 0,32   | 0,32  | 0,49   | 0,49   |
| Moyenne spatiale des corrélations temporelles        | 0,41   | 0,38  | 0,20   | 0,16   |
| Fraction des écarts mensuels                         |  |   |  |  |
| dans un rapport 2                                    | 35%  | 35%   | 30%  | 31%  |
| dans un rapport 10                                   | 82%  | 82%   | 82%  | 82%  |

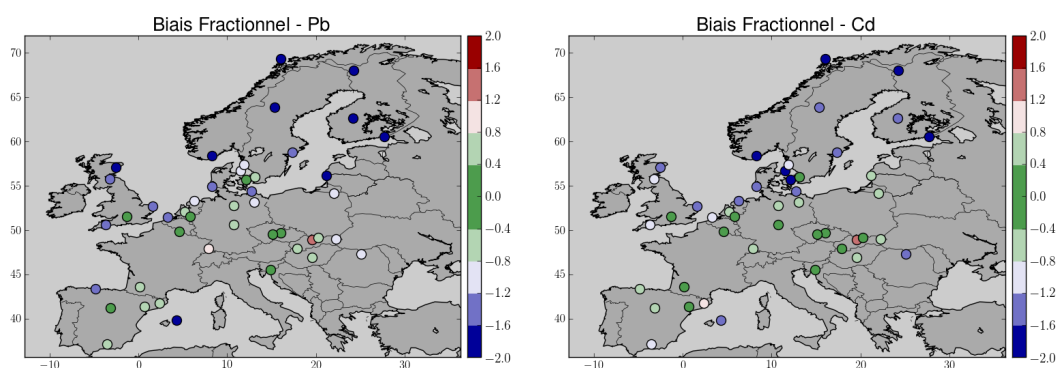


FIGURE 5.3 – Distribution spatiale des biais fractionnels modèle/mesure calculés sur les moyennes mensuelles dans l’air disponibles aux stations NILU pour le plomb (à gauche) et le cadmium (à droite) obtenus à partir du modèle urbain.

La Figure 5.4 propose une vision globale de la comparaison des résultats de simulation aux mesures des concentrations moyennes mensuelles dans l'air pour le cadmium et le plomb avec les deux modèles. Les valeurs numériques sont détaillées station par station et mois par mois dans les Tableaux en Annexe D.1.

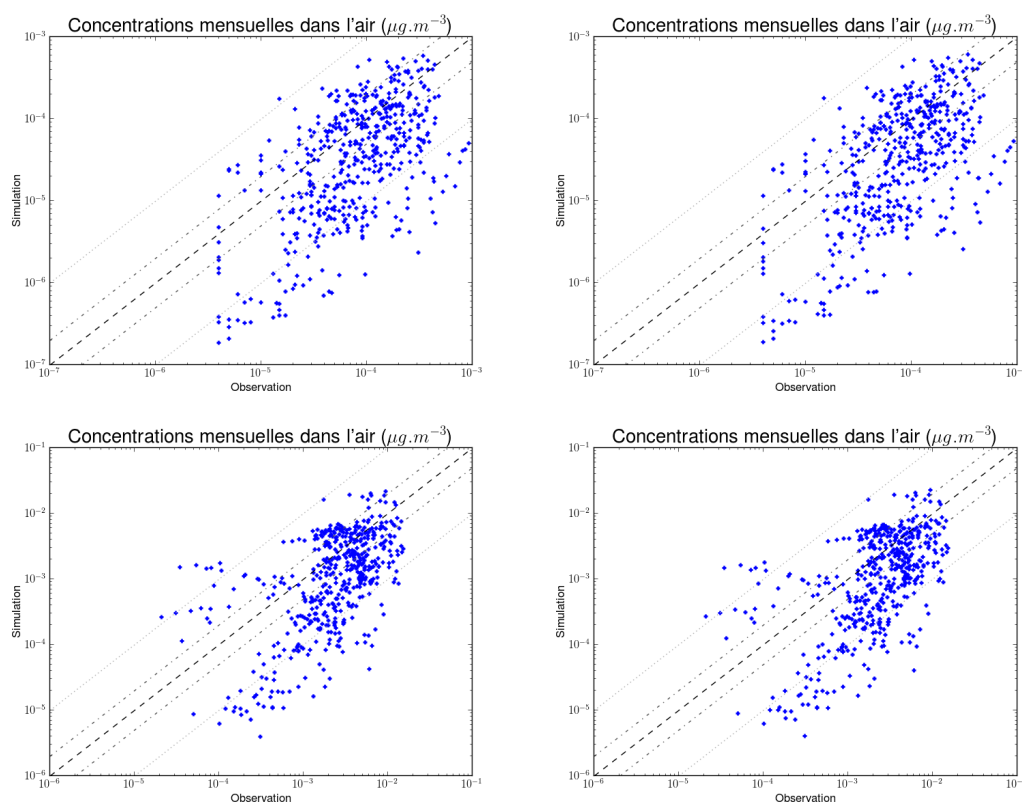


FIGURE 5.4 – Diagrammes de dispersion modèle / mesure pour le cadmium (en haut) et le plomb (en bas) obtenus avec le modèle urbain (à gauche) et le modèle rugeux (à droite).

Avant toute chose, il est important de noter que le choix du modèle de dépôt n'impacte pas fortement la concentration moyenne mensuelle simulée dans l'air au niveau des stations d'observation. En effet, ces dernières se trouvent en grande majorité loin des zones urbaines, souvent près de zones côtières ou dans des zones reculées.

Les simulations tendent à sous-estimer les observations, plus particulièrement au nord du domaine représenté (cf. Figure 5.3). Quel que soit le modèle de dépôt utilisé plus de 80% des concentrations modélisées sont dans le bon ordre de grandeur par rapport aux observations mais seulement un tiers sont dans un facteur 2. La sous-estimation importante des concentrations peut sans doute s'expliquer en partie par l'utilisation de conditions aux limites nulles. Mais l'erreur moyenne normalisée est inférieure à l'incertitude sur l'inventaire des émissions pour la plupart des stations pour les deux polluants.

Les corrélations spatiales sont meilleures pour le plomb que pour le cadmium mais dans les deux cas assez variables d'un mois sur l'autre. Pour le plomb de 0,29 (juillet 2011) à 0,62 (mai 2011) et pour le cadmium de 0,13 (janvier 2011) à 0,48 (novembre 2010). Les corrélations moyennes peu élevées peuvent s'expliquer en partie par la résolution assez grossière utilisée sur le



domaine européen pour des questions de contraintes de temps de calcul. Par ailleurs, les stations ne sont pas réparties de manière homogène mais concentrées en Europe centrale principalement et en Scandinavie (voir la Figure 5.3). Comme les minima et maxima de corrélation spatiale ne sont pas concomitants pour le Cd et le Pb, on peut supposer qu’au-delà des incertitudes imputables à la modélisation météorologique la répartition spatiale des émissions de Cd est moins robuste que celle des émissions de Pb.

Au regard de cette première évaluation il apparaît que les incertitudes sur les inventaires des émissions représente un frein réel à la comparaison des modèles de transfert au sol. Les différences induites par l’utilisation du modèle urbain sont très faibles au regard de ces incertitudes. Les simulations réalisées à l’échelle européenne semblent néanmoins permettre d’atteindre des niveaux de concentrations dans l’air acceptables pour alimenter les simulations sur les domaines imbriqués.

#### 5.4.2.2 Dépôt humide

Une synthèse des indicateurs statistiques calculés pour quantifier les écarts entre modèle et mesure est proposée dans le Tableau 5.6. La localisation des différentes stations d’observations dont les données sont disponibles pour les concentrations du plomb et de cadmium est affichée sur les cartes de la Figure 5.5.

Tableau 5.6 – Indicateurs statistiques globaux obtenus pour la comparaison avec les observations mensuelles des flux de dépôt humide du NILU.

| Modèle   | Cd (647 observations)                                  |  | Pb (663 observations)                                  |   |
|--|--|--|--|---|
|  | “rugeux”   | urbain   | “rugeux”   | urbain  |
| Moyenne et STD (en $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ) |  |  |  |   |
| des observations   | $11,7 \times 10^{-7}$<br>( $\pm 24,0 \times 10^{-7}$ ) |  | $21,8 \times 10^{-6}$<br>( $\pm 33,6 \times 10^{-6}$ ) |   |
| des simulations  | $3,8 \times 10^{-7}$<br>( $\pm 4,3 \times 10^{-7}$ )   | $3,7 \times 10^{-7}$<br>( $\pm 4,2 \times 10^{-7}$ ) | $9,5 \times 10^{-6}$<br>( $\pm 11,2 \times 10^{-6}$ )  | $9,5 \times 10^{-6}$<br>( $\pm 11,1 \times 10^{-6}$ ) |
| Moyenne temporelle des corrélations spatiales                          | 0,18   | 0,18   | 0,20   | 0,20  |
| Moyenne spatiale des corrélations temporelles                          | 0,22   | 0,23   | 0,26   | 0,26  |
| Fraction des écarts mensuels   |  |  |  |   |
| dans un rapport 2  | 32%  | 32%  | 36%  | 36%   |
| dans un rapport 10   | 82%  | 82%  | 88%  | 88%   |

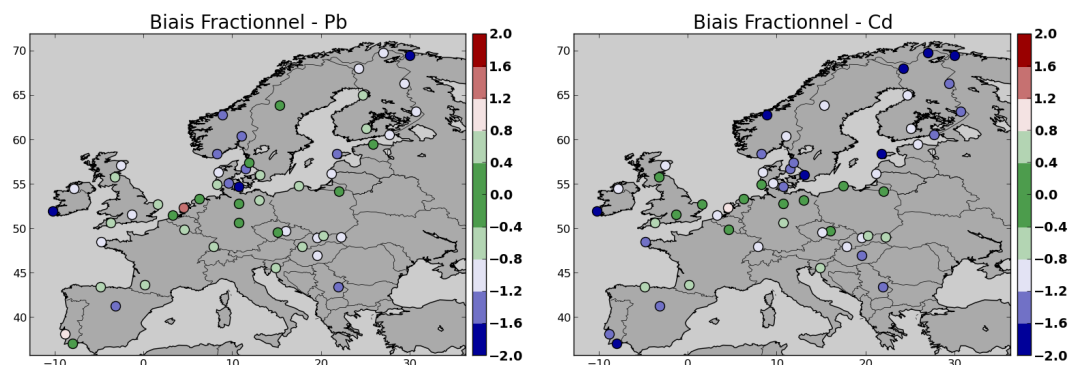


FIGURE 5.5 – Distribution spatiale des biais fractionnels modèle/mesure calculés sur les moyennes mensuelles des flux humides disponibles aux stations NILU pour le plomb (à gauche) et le cadmium (à droite) obtenus à partir du modèle urbain.

La Figure 5.6 propose une vision globale de la comparaison des résultats de simulation aux mesures des flux humides moyens mensuels pour le cadmium et le plomb avec les deux modèles. Les valeurs numériques sont détaillées station par station et mois par mois dans les Tableaux en Annexe D.2.

Comme pour les concentrations dans l’air les simulations tendent à sous-estimer les observations, avec un biais plus important au nord du domaine représenté (cf. Figure 5.3). Quel que soit le modèle de dépôt utilisé plus de 80% des flux humides modélisés sont dans le bon ordre de grandeur par rapport aux observations mais seulement un tiers sont dans un facteur 2. La sous-estimation importante des flux humides est sans doute principalement imputable à la sous-estimation des concentrations dans l’air.

Contrairement au dépôt sec, la simulation utilisant le modèle de dépôt rugueux produit un lessivage légèrement plus important que la simulation utilisant le modèle de dépôt urbain. Ceci peut s’expliquer par le fait que le modèle de dépôt sec urbain dépose davantage que le modèle de dépôt sec utilisant l’approche par rugosité. La masse de polluants disponible pour le lessivage par la pluie est donc plus importante dans le cadre de la simulation utilisant le modèle de dépôt par rugosité. Les différences induites par l’utilisation du modèle urbain sont très faibles au regard de ces incertitudes.

Les corrélations spatiales sont ici aussi faibles pour le plomb que pour le cadmium mais toujours assez variables d’un mois sur l’autre. Pour le plomb de  $-0,01$  (janvier 2011) à  $0,4$  (juin 2011) et pour le cadmium de  $-0,04$  (janvier 2011) à  $0,47$  (avril 2011). Ce résultat plus faible que pour les concentrations dans l’air peut s’expliquer par la difficulté de simuler les événements pluvieux, couplée à l’incertitude sur les données des émissions et à la faible résolution spatiale de la simulation sur le domaine européen.

### 5.4.2.3 Conclusion

L’analyse des données d’occupation de sols sur lesquelles se trouvent les stations (voir Figures 5.3 et 5.5) permet d’expliquer le faible impact du changement de modèle de dépôt sur les résultats de simulation. En effet, de nombreuses stations se situent dans des zones côtières, ou tout du moins, loin des grands centres urbains. Ces stations peuvent donc être assimilées à des stations dites “de fond”. Les résultats ne sont donc dus qu’à l’appauvrissement des panaches sur

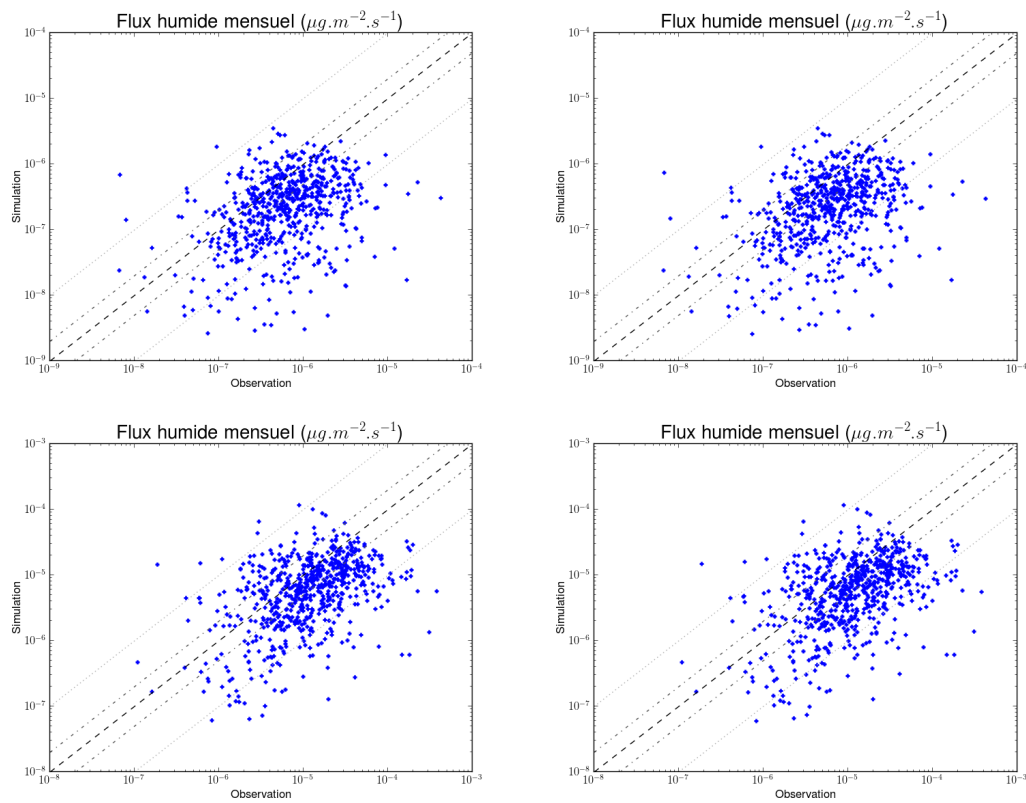


FIGURE 5.6 – Diagrammes de dispersion modèle / mesure pour le cadmium (en haut) et le plomb (en bas) obtenus avec le modèle urbain (à gauche) et le modèle rugueux (à droite).

les zones urbaines, assez éloignées, leur impact est donc limité.

### 5.4.3 Mesures du projet INOGEV

La seconde comparaison effectuée à une échelle spatiale plus fine est permise grâce aux données expérimentales d'INOGEV fournies par Percot (2012). Ces données sont disponibles sur le bassin versant du Pin Sec sur une unique station. Nous allons donc comparer les moyennes temporelles sur cette unique station avec les deux jeux de données décrits précédemment.

#### 5.4.3.1 Concentrations atmosphériques

Les comparaisons statistiques des mesures de concentrations de plomb dans l'air sont présentées dans le Tableau 5.7. La comparaison ne peut-être menée pour le cadmium. En effet, celui-ci était très souvent en dessous de la limite de quantification.

Tableau 5.7 – Indicateurs statistiques obtenus pour la comparaison avec les observations de concentrations mensuelles dans l'air.

| Modèle   | Pb (11 observations)                                   |  |  |
|--|--|--|--|
|  | “rugeux”   | urbain   | urbain modifié   |
| Moyenne et STD (en $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) |  |  |  |
| des observations                                     |  | $5,14 \times 10^{-3}$<br>( $\pm 2,66 \times 10^{-3}$ ) |  |
| des simulations                                      | $2,47 \times 10^{-3}$<br>( $\pm 0,42 \times 10^{-3}$ ) | $2,45 \times 10^{-3}$<br>( $\pm 0,36 \times 10^{-3}$ ) | $2,48 \times 10^{-3}$<br>( $\pm 0,38 \times 10^{-3}$ ) |
| corrélations temporelles                             | 0,64   | 0,60   | 0,60   |
| Fraction des écarts mensuels                         |  |  |  |
| dans un rapport 2                                    | 55%  | 45%  | 45%  |
| dans un rapport 10                                   | 100%   | 100%   | 100%   |

Pour les trois modèles l'ordre de grandeur des concentrations est mieux respecté que pour les stations du réseau EMEP, on conserve cependant une sous-estimation relativement importante des niveaux de pollution, en particulier sur la première partie de la période de comparaison (cf. Figure 5.7). La variabilité des concentrations simulées est nettement inférieure à celle des observations.

Cette différence peut en partie être expliquée par la localisation de la station. En effet, celle-ci se situe en milieu péri-urbain (un immeuble résidentiel d'un quartier nantais), donc proche de sources de polluants. La cadastralisation, même sur une maille d'une résolution d'un  $\text{km}^2$ , induit des phénomènes de dilution de la source sur la totalité de la maille. Ceci peut être une explication de la forte disparité existante entre modélisation et observation. La seconde explication porte sur la résolution des données d'émissions originales extrêmement grossières ( $50 \times 50 \text{ km}^2$ ). La méthode de désagrégation utilisée sur les données d'émissions montre donc ses limites au niveau des zones urbaines. Cette supposition est en accord avec la conclusion de Percot (2012) qui met en avant (pour le plomb particulièrement) les sources locales comme apport important.

L'ensemble des indicateurs statistiques issus de la simulation s'appuyant sur le modèle de dépôt rugeux sont légèrement meilleurs que ceux des simulations utilisant le modèle de dépôt urbain, à l'exception du biais pour le modèle urbain modifié (utilisant une résistance de surface recalibrée à partir des données d'observations de Roupsard, 2013). Néanmoins comme à l'échelle continentale l'utilisation des différents modèles n'a qu'un faible impact sur les concentrations simulées.

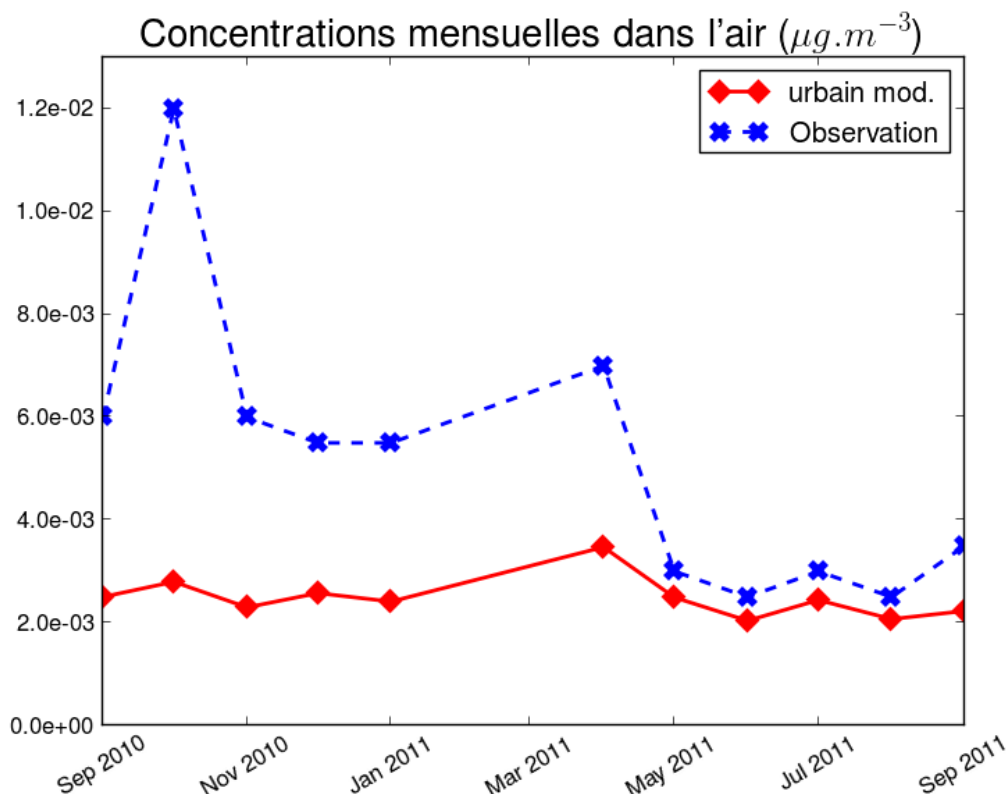


FIGURE 5.7 – Évolution temporelle des observations et simulations avec le modèle urbain modifié des concentrations de plomb dans l'air au Pin Sec (en  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ).

#### 5.4.3.2 Dépôt sec

Dans l'étude de Percot (2012), les flux de dépôt sec sont obtenus en multipliant des vitesses de dépôt sec calculées à partir des observations de Roupsard *et al.* (2013), dépendantes d'un type de surface urbaine (verre, enduit, bitume, ardoise, herbe, etc...), par la concentration de polluants dans l'atmosphère. Les résultats statistiques des comparaisons avec les résultats des différents modèles sont présentés dans le Tableau 5.8.

Les trois modèles surestiment les flux secs déduits des observations de Percot (2012). Il est donc possible qu'une partie de la sous-estimation des concentrations dans l'air soit imputable à une surestimation des vitesses de dépôt sec.

La Figure 5.8 retrace l'évolution temporelle des observations et simulations (utilisant le modèle de dépôt sec de type urbain) des flux de dépôt sec de plomb. Les corrélations temporelles pour les trois modèles sont plus faibles que pour les concentrations dans l'air. La tendance à la décroissance dans les estimations de Percot (2012), qui semble cohérente avec la décroissance observée pour les concentrations dans l'air n'est pas reproduite dans les simulations. On peut penser que contrairement à la modélisation des données d'émissions, cycliques car s'appuyant sur des données évoluant peu d'années en années, les émissions réelles semblent varier grandement. On retrouve cet état de fait avec un flux de dépôt simulé de septembre 2010 proche de celui simulé en août 2011 (aux conditions météorologiques près), alors que les données d'observations

Tableau 5.8 – Indicateurs statistiques obtenus pour la comparaison entre les estimations de Percot (2012) et les flux sec mensuels simulés.

| Modèle   | Pb (12 observations)                                  |  |  |
|--|---|--|--|
|  | “rugeux”  | urbain   | urbain modifié   |
| Moyenne et STD (en $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ) |   |  |  |
| des estimations  |   | $0,96 \times 10^{-5}$<br>( $\pm 0,41 \times 10^{-5}$ ) |  |
| des simulations  | $2,02 \times 10^{-5}$<br>( $\pm 0,5 \times 10^{-5}$ ) | $2,04 \times 10^{-5}$<br>( $\pm 0,47 \times 10^{-5}$ ) | $1,96 \times 10^{-5}$<br>( $\pm 0,46 \times 10^{-5}$ ) |
| corrélations temporelles   | 0,2   | 0,15   | 0,15   |
| Fraction des écarts mensuels   |   |  |  |
| dans un rapport 2  | 33%   | 33%  | 50%  |
| dans un rapport 10   | 100%  | 100%   | 100%   |

durant la même période varie du simple au triple.

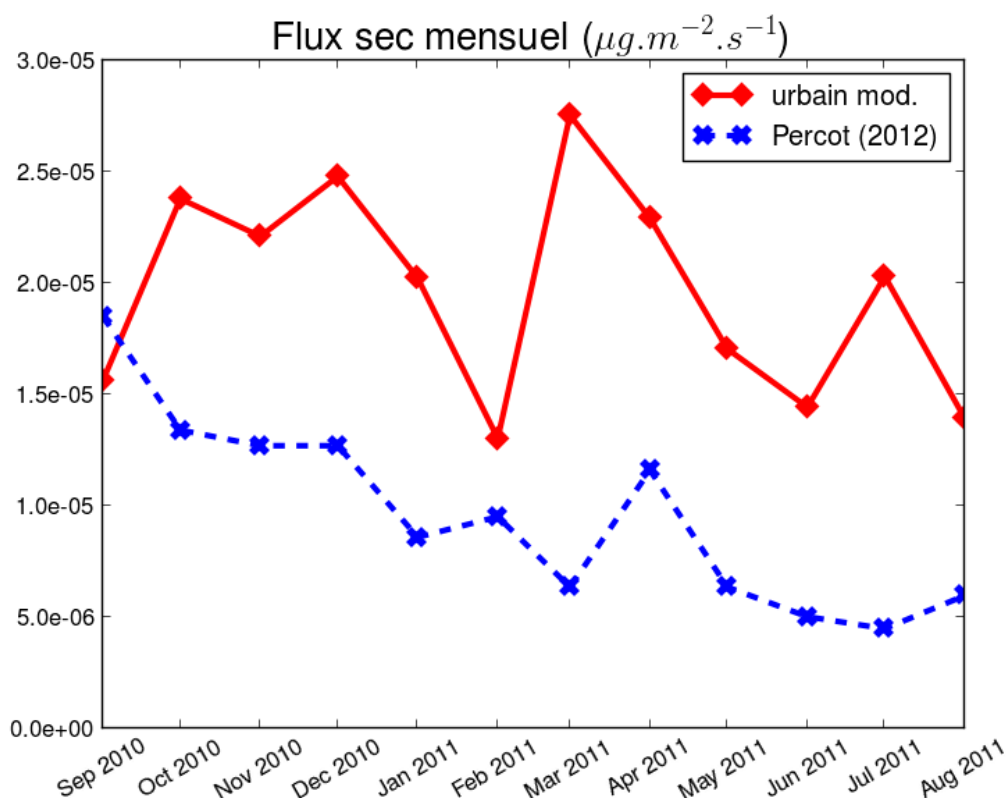


FIGURE 5.8 – Évolution temporelle des estimations de Percot (2012) et des simulations (modèle urbain modifié) des flux de dépôt sec de plomb au Pin Sec (en  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ).

Il semble difficile de conduire une fois de plus une comparaison définitive sur ces données, même si la simulation conduite avec le modèle urbain de dépôt sec modifié donne des résultats

légèrement meilleurs en terme de biais. On notera cependant que l'impact des différences de vitesses de dépôt est relativement moins important sur les flux. Ceci est à relier aux différences de distribution granulométrique entre les flux et les vitesses de dépôt. Les différences les plus importantes en terme de vitesse de dépôt correspondent à des classes de taille de particules qui se déposent assez peu.

### 5.4.3.3 Dépôt humide

Quand on considère le dépôt humide au travers les trois jeux de données de simulation, c'est l'impact indirect du dépôt sec qui est pris en compte, car le schéma de dépôt humide, lui, ne change pas. On voit à travers les statistiques présentées dans le Tableau 5.9 que cet impact est invisible à la précision retenue.

Tableau 5.9 – Indicateurs statistiques obtenus pour la comparaison entre les observations et les flux humides mensuels simulés.

| Modèle  | Pb (12 observations)                                   |  |  |
|---|--|--|--|
|   | “rugeux”   | urbain   | urbain modifié   |
| Moyenne et STD (en $\mu\text{g.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ) |  |  |  |
| des estimations   |  | $1,42 \times 10^{-5}$<br>( $\pm 0,76 \times 10^{-5}$ ) |  |
| des simulations   | $0,76 \times 10^{-5}$<br>( $\pm 0,26 \times 10^{-5}$ ) | $0,76 \times 10^{-5}$<br>( $\pm 0,26 \times 10^{-5}$ ) | $0,76 \times 10^{-5}$<br>( $\pm 0,26 \times 10^{-5}$ ) |
| corrélations temporelles                                | 0,5  | 0,5  | 0,5  |
| Fraction des écarts mensuels                            |  |  |  |
| dans un rapport 2                                       | 50%  | 50%  | 50%  |
| dans un rapport 10                                      | 100%   | 100%   | 100%   |

Les évolutions temporelles des données d'observation et des résultats de la simulation (utilisant le modèle urbain de dépôt sec modifié) sont quant à elles rapportées dans la Figure 5.9. Le cadmium n'a été détecté que 3 mois sur l'ensemble de la période (février, mars et avril 2011). Le nombre de mesures de cadmium n'étant pas suffisant pour mener une comparaison exploitable, seul le plomb a été étudié.

On retrouve ici une sous-estimation des flux de dépôt humide comme pour les concentrations dans l'air. Les coefficients de détermination sont un peu moins bons que pour les concentrations dans l'air. Ceci est à attribuer en partie à la modélisation des événements pluvieux. En effet, bien que la corrélation des événements pluvieux soit assez élevée (0,63) et l'erreur faible (erreur absolue moyenne de 15%), elle amoindrit d'autant les indicateurs statistiques des simulations (voir Figure 5.12 pour la comparaison observation/simulation des événements pluvieux).

Contrairement aux observations les flux humides simulés sont inférieurs aux flux secs. Cela nous laisse à penser que l'erreur est en partie à attribuer à la distribution verticale des concentrations atmosphériques (le dépôt humide correspond à un lessivage de toute la colonne atmosphérique alors que les mesures de concentrations dans l'air sont effectuées près du sol). La simulation gagnerait sans doute à être distribuée verticalement de manière moins grossière, surtout au dessus des centres urbains.

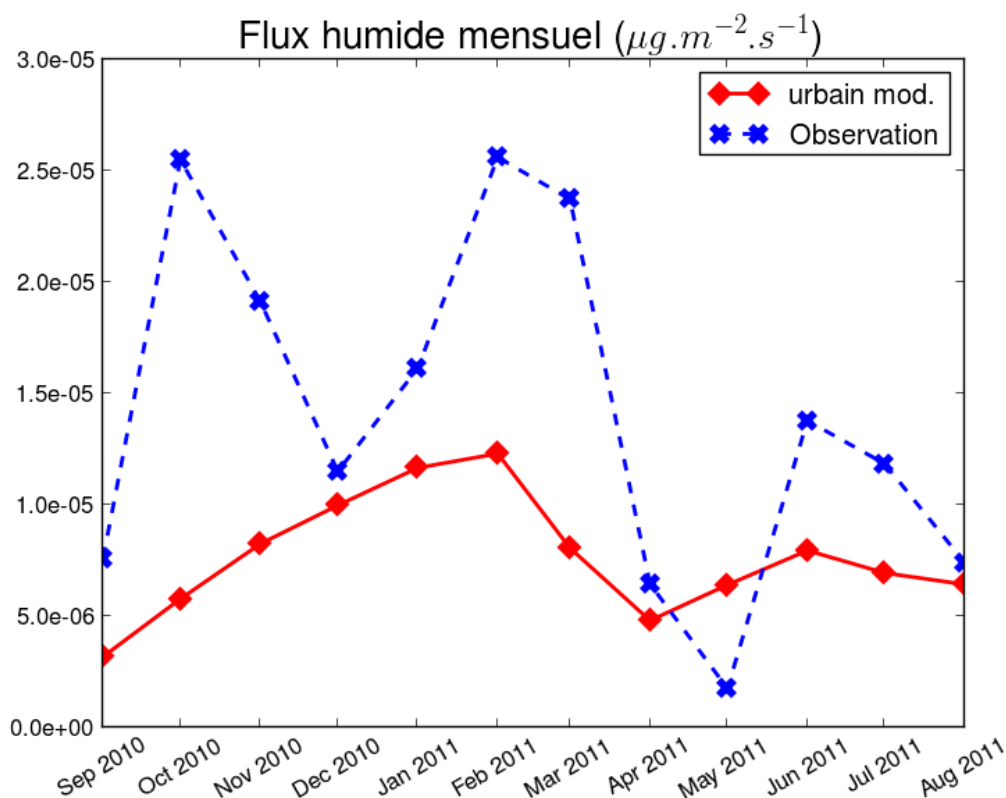


FIGURE 5.9 – Évolution temporelle des observations et simulations des flux de dépôt humide de plomb au Pin Sec (en  $\mu\text{g.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ).

#### 5.4.3.4 Conclusion

L'utilisation des différents modèles de dépôt sec considérés dans ces travaux n'a qu'un impact marginal sur les différents champs d'intérêt, y compris le flux de dépôt sec. On a pu noter que la dispersion verticale explique probablement en partie l'inadéquation des résultats des simulations avec les données observées. Mais l'hypothèse la plus plausible pour expliquer le fait que toutes les séries de simulation soient en deçà des mesures observées pour les concentrations et le dépôt humide est l'inadéquation du cadastre des émissions. En effet, on a vu que les sources locales, proches du bassin versant, semblent prépondérantes, et sont, de fait, mal reproduites par le cadastre développé dans ce travail.

## 5.5 Contributions locale/régionale

Un des objectifs du projet INOGEV dans lequel s'inscrit cette thèse était de discriminer l'origine géographique, locale ou régionale, des polluants. Par la suite, par "local" sera entendu que la source se trouve dans le domaine étudié (bassin du Pin Sec) tel que défini par la simulation. "National" signifie que les polluants proviennent du domaine France, et enfin "supra-national" correspond aux polluants émis dans le domaine Europe (domaine France exclu). "Supra-national"



Tableau 5.10 – Dépôts atmosphériques de plomb sur les trois bassins versants pour le modèle de dépôt urbain : contributions locales (“loc”) et régionales (“reg”).

| Bassin versant | Flux moyen<br>( $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{an}^{-1}$ ) | Contributions aux dépôt (en %) |      |      |      |        |      |
|----------------|--|--------------------------------|------|------|------|--------|------|
|                |  | total                          |      | sec  |      | humide |      |
|                |  | loc                            | reg  | loc  | reg  | loc    | reg  |
| Le Pin Sec     | <b>228</b>   | 80,4                           | 19,6 | 84,8 | 15,2 | 73,7   | 26,3 |
| Sucy-en-Brie   | <b>622</b>   | 86,1                           | 13,9 | 87,4 | 12,6 | 83,9   | 16,1 |
| Chassieu       | <b>948</b>   | 91,1                           | 8,9  | 92,1 | 7,9  | 88,8   | 11,2 |

Tableau 5.11 – Dépôts atmosphériques de cadmium sur les trois bassins versants pour le modèle de dépôt urbain : contributions locales (“loc”) et régionales (“reg”).

| Bassin versant | Flux moyen<br>( $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{an}^{-1}$ ) | Contributions aux dépôt (en %) |      |      |      |        |      |
|----------------|--|--------------------------------|------|------|------|--------|------|
|                |  | total                          |      | sec  |      | humide |      |
|                |  | loc                            | reg  | loc  | reg  | loc    | reg  |
| Le Pin Sec     | <b>13,0</b>  | 75,2                           | 24,8 | 81,3 | 18,7 | 65,6   | 34,4 |
| Sucy-en-Brie   | <b>14,1</b>  | 59,4                           | 40,6 | 53,2 | 46,8 | 66,2   | 33,8 |
| Chassieu       | <b>11,6</b>  | 73,4                           | 26,6 | 77,9 | 22,1 | 62,1   | 37,9 |

et “national” sont regroupés sous le terme “régional” par opposition aux contributions “locales”.

Avant toute chose, il est intéressant de noter que l’importance relative des flux sec et humide est assez similaire quel que soit le modèle de dépôt sec choisi. En effet, comme nous l’avons vu, les trois modèles de dépôt donnent, en moyennes, des résultats du même ordre de grandeur. Par la suite, les données issues du modèle s’appuyant sur le modèle de dépôt urbain seront présentées. Les contributions moyennes annuelles des dépôts totaux, humides et sec sont rapportées dans les Tableaux 5.10 et 5.11, et ce pour chaque bassin versant. Excepté le cas du bassin de Sucy-en-Brie pour le cadmium, l’ensemble des polluants dans tous les bassins sont en très grande majorité d’origine locale (entre 74% et 91% du dépôt total, et entre 80 et 92% du dépôt sec). C’est particulièrement le cas du bassin industriel de Chassieu, où les émissions de métaux lourds sont de fait plus importantes, et donc la fraction d’origine locale est très importante (plus de 90% de plomb notamment). On peut toutefois remarquer que la contribution locale des dépôts humides du cadmium est légèrement inférieure à celle des dépôts humides de plomb (de 8% à 16%). La tendance reste cependant la même, avec une contribution locale assez majoritaire par rapport à la contribution régionale.

Dans le cas du cadmium dans le bassin versant de Sucy-en-Brie, comme cela vient d’être noté, les dépôts humides sont très similaires à ceux des autres bassins versants, mais c’est dans le dépôt sec que se situe la différence. Là où la contribution locale du dépôt sec dans les autres bassins versants se situe autour de 80%, elle n’atteint à peine que 53% dans le bassin parisien.

Dans la suite, seules les données du plomb vont être présentées. Comme cela a été vu, les résultats pour le cadmium (hormis ceux pour le bassin de Sucy-en-Brie) sont semblables et seront donc omis. Sur les Figures 5.10 et 5.11 sont représentées les contributions locale, nationale et supra-nationale mensuelles des dépôts totaux (humide et sec) de plomb sur le bassin du Pin Sec.

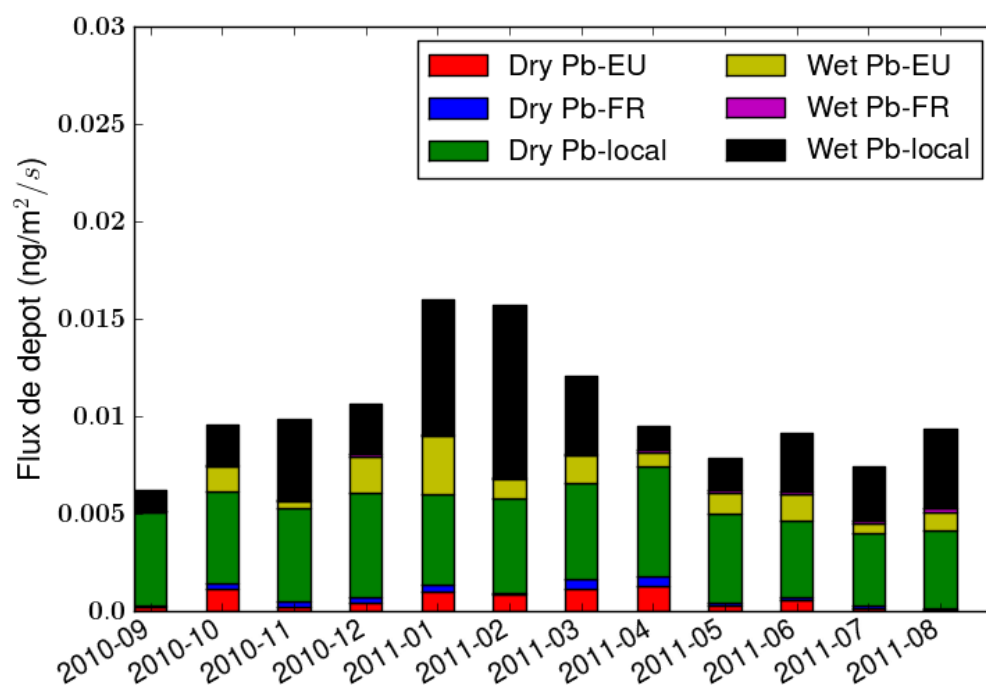


FIGURE 5.10 – Contribution des dépôts sec et humides au dépôt total de plomb selon leur origine sur le domaine du Pin Sec (modèle rugueux de dépôt sec).

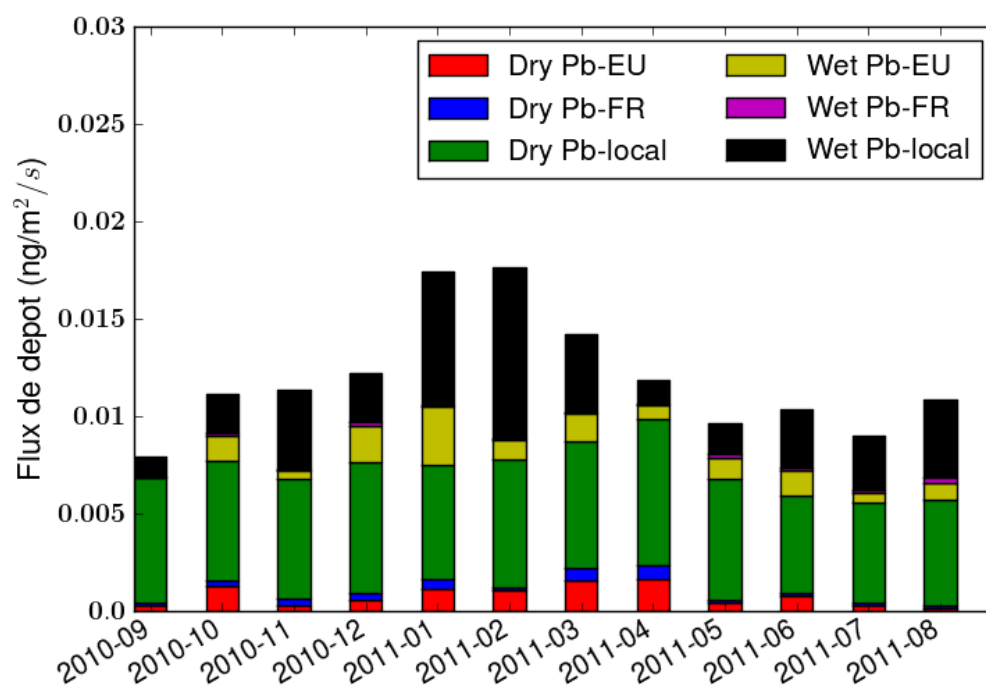


FIGURE 5.11 – Contribution des dépôts sec et humides au dépôt total de plomb selon leur origine sur le domaine du Pin Sec (modèle de dépôt sec urbain).

### 5.5.1 Dépôt humide

Les flux de dépôt humide dépendent fortement des précipitations. Le volume mensuel des retombées pluvieuses est représenté dans la Figure 5.12. Comme attendu, les flux de dépôt humide sont plus faibles lorsque le volume de pluie est moindre. Pour des raisons de lisibilité, les mêmes données (simulation s'appuyant sur le modèle de Zhang), ne distinguant que les dépôts sec et humide (sans distinction de leur origine), sont dépeintes dans la Figure 5.13.

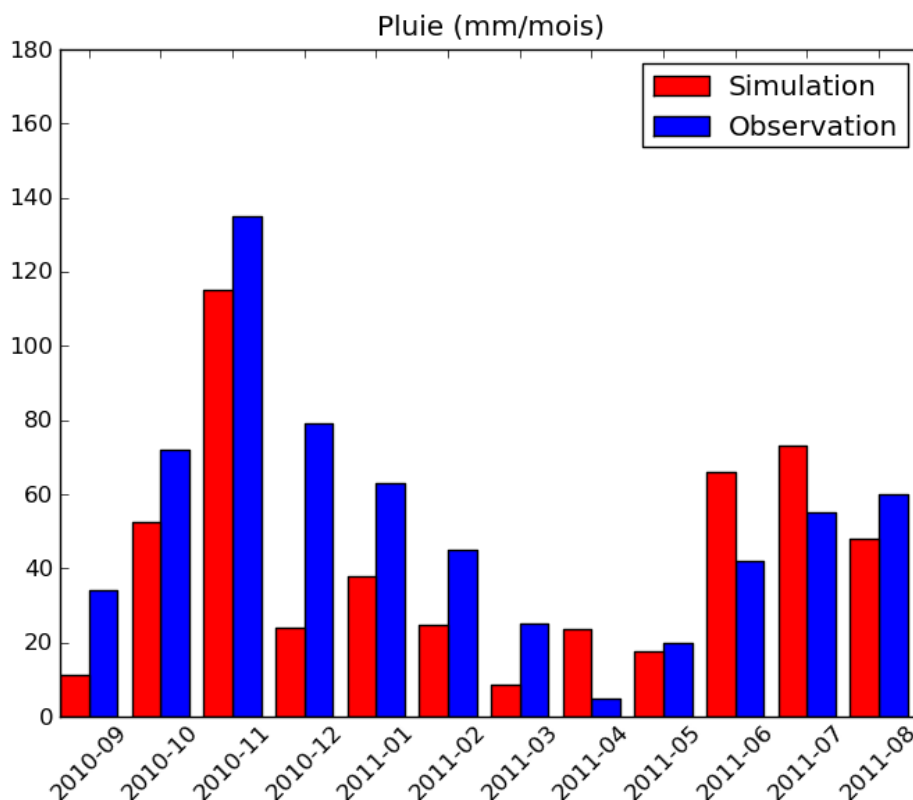


FIGURE 5.12 – Évolution temporelle des observations et simulations des retombées pluvieuses sur le bassin du Pin Sec.

On peut noter que les mois d'hiver (10/2010 à 03/2011) subissent une pluviométrie plus importante, et par voie de conséquence un flux de dépôt humide élevé. A contrario, le volume d'eau de pluie a été plus faible pendant les mois d'été (04/2011 à 05/2011, 07/2011), et il s'ensuit un flux de dépôt humide moindre en comparaison à la période précédente. Les mois de juin (06/2011) à août (08/2011) ont été particulièrement pluvieux en 2011, ce qui explique des retombées humides et des flux de dépôt humide particulièrement importants (proche de ceux atteints durant les mois d'octobre à décembre 2010), et un mois de septembre 2010 avec une pluviométrie extrêmement faible (et donc un dépôt humide de même très faible). La contribution au dépôt total du dépôt humide pour la simulation s'appuyant sur le modèle de dépôt urbain varie assez fortement entre 14% (septembre 2010) et 58% (février 2011), selon la quantité d'eau de pluie tombée, et la quantité de polluant disponible dans l'air. Cette fourchette reste en accord avec l'état de l'art.

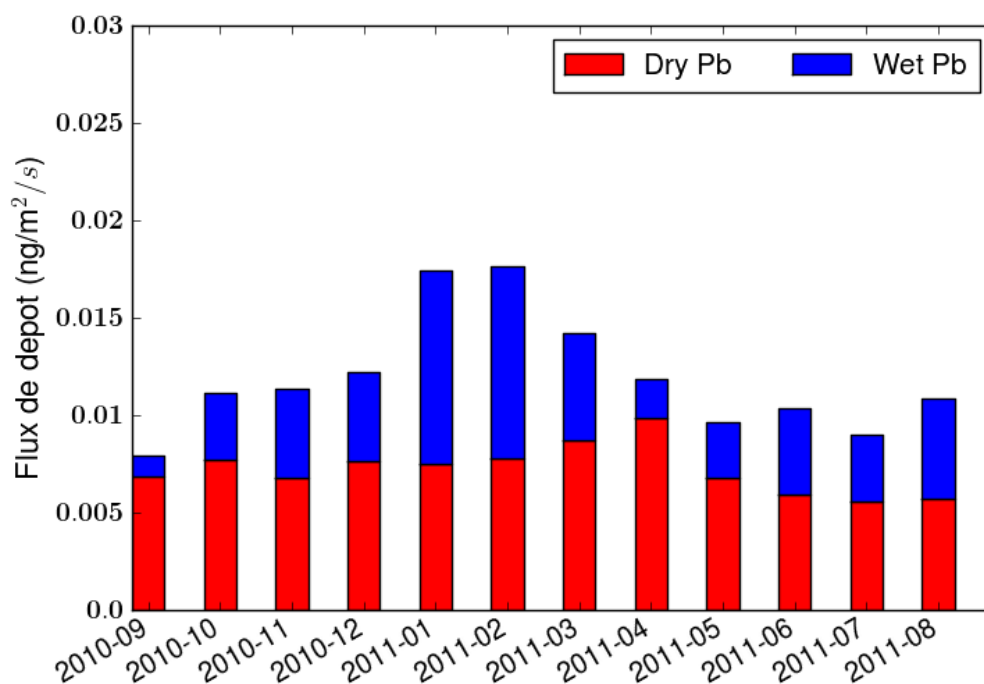


FIGURE 5.13 – Contribution des dépôts sec et humides au dépôt total de plomb sur le domaine du Pin Sec (modèle de dépôt sec urbain).

Enfin, l'origine des polluants est majoritairement d'origine locale ; entre 56% (décembre 2010 mai 2011) et 93% (septembre 2010). Il ne semble pas exister de corrélation entre la quantité de pluie tombée et la contribution des polluants d'origine locale au dépôt humide. En effet, les mois de décembre 2010 et mai 2011, avec une contribution locale dépassant à peine les 50%, sont deux mois relativement peu pluvieux (voir Figure 5.12). A contrario, les deux mois avec la contribution locale la plus élevée sont aussi les deux mois avec les retombées pluvieuses simulées les plus faibles (septembre 2010 et mars 2011).

Cependant, avec une moyenne de 73% des contributions du dépôt humide d'origine locale, et même si cette proportion varie beaucoup (entre 56% et 93% donc), la part des polluants déposés d'origine locale reste toujours majoritaire.

### 5.5.2 Dépôt sec

La contribution du dépôt sec varie essentiellement en fonction des émissions. Pour s'en apercevoir, il peut être intéressant de comparer l'évolution mensuelle du flux de dépôt sec avec le profil temporel des émissions proposé par l'EMEP (par SNAP). Pour connaître la distribution par SNAP, et en déduire la proportion de polluants émise mensuellement, la quantité émise en moyenne par secteur sur l'ensemble de la France peut être utilisée. Cela permettra d'avoir un point de comparaison. La Figure 5.14 présente donc la variation mensuelle du profil temporel

des émissions de plomb en France (en rouge). Cette figure présente en sus le flux de dépôt sec mensuel sur le bassin du Pin Sec (en bleu). Si on excepte les mois d'avril (04/2011) et décembre (12/2010), on peut voir que, qualitativement, l'évolution temporelle du dépôt sec suit plutôt bien les évolutions du profil temporel des émissions, ce qui corrobore notre hypothèse.

Quant à l'origine des polluants déposés par voie sèche, elle est massivement locale. En effet, elle varie entre 75% pour le mois mars (03/2011) et 95% pour le mois de d'août (08/2011). Dans 67% des mois (septembre, novembre, décembre, février, mai, juin, juillet et août), la contribution locale dépasse les 84%.

Ce résultat est plutôt raisonnable dans le sens où les mécanismes de dépôt sec sont assez sensibles à l'altitude du polluant à déposer. Il est donc raisonnable que les polluants qui se déposent soient majoritairement issus de sources proches, i.e. plus enclins à se trouver à faible altitude.

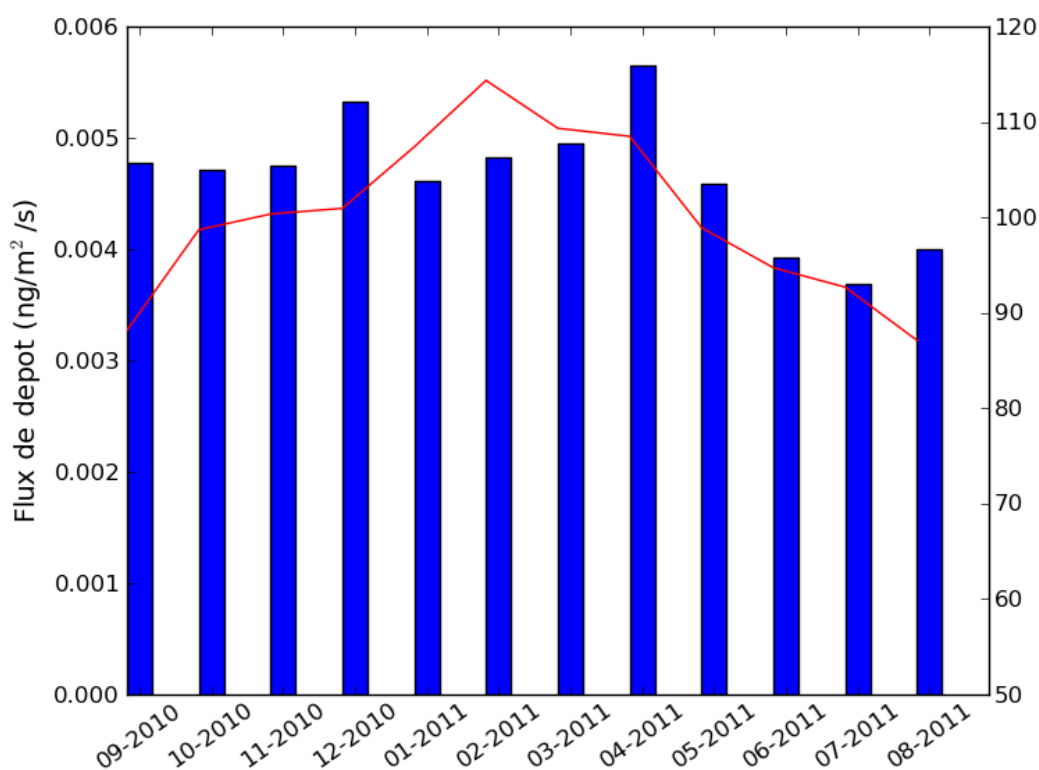


FIGURE 5.14 – Évolution temporelle du flux de dépôt sec mensuel de plomb sur le bassin du Pin sec (bleu), comparé aux variations mensuelles du profil temporel des émissions de plomb en France (en rouge).

### 5.5.3 Conclusion

Comme nous l'avons vu, l'origine des polluants métalliques étudiés ici (Pb et Cd) est massivement d'origine locale. Entre 94% du dépôt total pour le mois de septembre (09/2010) et 73%

pour les mois d'octobre (10/2010) et janvier (01/2011) est d'origine locale dans le bassin du Pin Sec. Bien que ces métaux lourds soient des espèces dont la durée de vie dans l'atmosphère peut excéder la semaine, et peuvent donc être détectées à plusieurs milliers de kilomètres de leur source d'émission, seulement 6% (février 2010) à 27% (octobre 2010) de la quantité totale de polluants déposés sont issus des domaines France et Europe.

On peut enfin remarquer que, les deux autres bassins versants, davantage soumis à la pollution atmosphérique (bassin parisien, et bassin industriel de Chassieu, comparé au bassin plutôt résidentiel du Pin Sec), présentent une contribution des polluants d'origine locale plus importante. De fait, il semble y avoir une forte corrélation entre l'existence de sources d'émissions proches importantes, et une contribution des polluants d'origine locale importante. Ce résultat semble raisonnable, du fait notamment d'un dépôt sec plus important pour les raisons expliquées précédemment.

## 5.6 Conclusion

Malgré l'ensemble des limitations induites notamment par la résolution grossière du domaine européen et la non adéquation de la modélisation des sources d'émissions, le modèle de dépôt urbain a montré des résultats légèrement meilleurs que ceux du modèle classique par rugosité pour une grande partie des indicateurs statistiques.

Il semble cependant indispensable de mener une étude comparative plus complète pour tirer des conclusions définitives. Celle-ci s'appuyera nécessairement sur des cadastres d'émissions plus précis. On a vu en effet que cette données est indispensable, tout spécialement en milieu urbain, près des sources d'émissions. Or, le cadastre des émissions utilisé dans cette étude a en effet clairement montré ses limites en sous-estimant la quantité de polluants émise, tout spécialement au niveau des zones urbaines, particulièrement difficile à rendre compte avec une approche descendante, ce qui explique la constante sous-estimation des concentrations de polluants et des flux de dépôt (sec et humide).

La seconde voie d'amélioration porte sur la distribution verticale. Comme cela a pu être noté précédemment, les résultats de la simulation sont fortement impactés par la résolution de la distribution verticale. Les simulations gagneraient donc à être distribuées verticalement de manière moins grossière.

Enfin, la troisième voie d'amélioration porte sur les méthodes de mesures du dépôt sec, en particulier en milieu urbain. En effet, celles-ci ne rendent pas compte des phénomènes inhérents aux zones urbaines, comme cela a été décrit dans le chapitre 4. Actuellement, seul son impact indirect sur la concentration dans l'air peut être mesuré suffisamment précisément.

# Chapitre 6

## Conclusion

Ce travail s'est inscrit dans le cadre du projet INOGEV qui visait à améliorer la connaissance des flux de polluants en zone urbaine, afin de réduire leur impact sur l'environnement. En effet, les rejets urbains sont considérés comme l'une des principales causes de dégradation de la qualité du milieu récepteur et le contexte réglementaire est de plus en plus contraignant. Il y a donc un besoin d'avoir accès à une quantification aussi précise que possible des dépôts en milieu urbain, ainsi qu'à une connaissance de leur origine. Pour satisfaire cet objectif visé par cette thèse, il a été nécessaire de réaliser un inventaire d'émissions compatible avec les échelles de temps et d'espace des processus à étudier. Puis, un modèle de dépôt sec a été développé, en tenant compte des spécificités du milieu urbain.

Cette conclusion reprend les principaux résultats de cette thèse portant donc sur la modélisation du dépôt sec de polluants en milieu urbain et sur la réalisation du cadastre d'émissions, et donne un aperçu des perspectives envisageables suite à ce travail et des voies d'amélioration possibles.

### 6.1 Inventaire d'émissions

La première partie de ce travail a consisté en la réalisation d'un inventaire d'émissions spatialisé à une échelle fine, cohérente avec l'échelle urbaine. Cet inventaire a été réalisé à l'aide d'une approche descendante dite « top-down », qui s'appuie sur des données agrégées qui ont ensuite été décomposées en utilisant des clés de répartition (temporelles et spatiales). Comme nous l'avons vu, la réalisation de cet inventaire s'est confrontée à deux objectifs en pratique contradictoires :

- la volonté de connaître l'origine des polluants, nécessitant un inventaire disponible sur une zone très étendue
- la nécessité d'avoir un inventaire à une échelle fine, cohérente avec l'échelle urbaine.

L'approche descendante nous a permis de réaliser un inventaire disponible sur une étendue très large couvrant l'Europe entière à l'aide des données mises à disposition par l'EMEP (sur la grille éponyme). Par contre la fiabilité de cet inventaire sur une échelle fine est questionable, comme l'a montrée la comparaison aux données fournies par Airparif. La comparaison sur le secteur de l'industrie manufacturière a notamment montré que l'inventaire issu des données de l'EMEP n'était pas en parfaite adéquation avec les données des Grandes Sources Ponctuelles fournies par l'iREP. Cela peut s'expliquer par la méthodologie employée par le CEIP pour produire



cet inventaire, notamment le travail d’harmonisation du groupe d’experts chargé de livrer l’inventaire à partir des différentes données proposées par chacun des états participant à la réalisation de cet inventaire. Par ailleurs, la grande proportion des émissions attribuables à des sources diffuses peut poser question pour un tel secteur d’activité. En ce sens, les inventaires comme celui d’Airparif (utilisant une approche mixte, notamment ascendante) semblent plus à même de rendre compte des sources ponctuelles, souvent situées proches des centres urbains, et ayant donc un rôle prépondérant dans la compréhension du dépôt sec en milieu urbain. Par ailleurs, la comparaison aux données d’Airparif a permis aussi de mettre en exergue que, même si le choix des clés de répartition est pertinent (réseau routier et TMJA pour les données issues du trafic), l’approche descendante peut induire des erreurs assez élevées. Une des voies d’amélioration évidente est la production d’un inventaire utilisant l’approche ascendante sur un domaine suffisamment étendu pour satisfaire la volonté de connaître l’origine des polluants, ce qui peut s’avérer particulièrement ardu et complexe. Il n’en reste pas moins que l’approche descendante permet de bénéficier d’un inventaire cohérent tout le long de la descente d’échelle, ce qui est une condition sine qua non pour connaître l’origine des polluants, et suffisamment précis pour être valide à une échelle locale comme peut l’être une zone urbaine.

## 6.2 Modélisation de la résistance aérodynamique au sein de la canopée urbaine

Comme nous avons pu le voir précédemment, le dépôt sec est un mécanisme complexe dépendant de multiples paramètres, qu’ils soient liés au polluant qui se dépose, à la surface de dépôt ou encore aux conditions météorologiques. Cette complexité présente en milieu urbain comme dans les milieux naturels, n’a cependant fait l’objet jusqu’à présent que d’un nombre vraiment limité d’études théoriques et expérimentales comme cela est rapporté régulièrement par de nombreux auteurs (Underwood, 1987; Brown *et al.*, 2006; Jonsson *et al.*, 2008; Fowler *et al.*, 2009).

La seconde partie de ce travail s’est donc attelée à la description du modèle de dépôt sec développé dans cette thèse. Elle a fait l’objet d’une publication dans la revue à comité de lecture Geoscientific Model Development (Cherin *et al.*, 2015). Ce modèle a été développé au sein de la plateforme de modélisation de la qualité de l’air Polyphemus. Le modèle de dépôt a été basé sur une longueur de mélange (fermeture d’ordre 1) dépendant d’un certain nombre des caractéristiques morphologiques de la canopée urbaine (hauteur moyenne des bâtiments, largeur moyenne des rues, densité du bâti), ce qui permet de rendre compte des principaux processus dont la canopée urbaine est le siège. Il s’appuie sur une modélisation d’une rue canyon, bordée par deux bâtiments. Cette approche permet de discriminer trois types de surfaces (toits, murs et chaussées) et de prendre en compte l’orientation horizontale ou verticale de ces surfaces. Dans cette partie, l’évaluation du modèle s’appuie sur une étude de sensibilité et une comparaison des résultats de la simulation avec le modèle développé dans cette thèse, et d’une autre simulation utilisant le modèle classique de dépôt par rugosité. L’étude de sensibilité a montré que le modèle était relativement peu sensible aux paramètres clés de l’écoulement (vitesse du vent) ainsi qu’aux paramètres introduits dans ce nouveau modèle (densité du bâti, largeur des rues...). Les résultats de ce modèle de dépôt développé dans cette thèse semblent en accord avec ceux trouvés dans la littérature, notamment ceux présentés par Sofuoglu *et al.* (1998), Paode *et al.* (1998) ou encore Shahin *et al.* (2000), à Chicago et South Haven dans le cadre de l’étude Atmospheric Exchange Over Lakes and Oceans Study (AEOLOS), permettant une comparaison entre deux villes de densités différentes. Cette partie a néanmoins montré qu’une meilleure compréhension des caractéristiques des surfaces était nécessaire. Par ailleurs, les modèles de dépôt dépendant

notamment de la vitesse du vent, une meilleure modélisation de la micro-météorologie urbaine pourrait améliorer sensiblement la modélisation du dépôt. Une des voies possibles d'amélioration du modèle pourrait aussi venir d'une approche multi-couche (plutôt qu'intégrale sur l'ensemble de la canopée) en association avec une meilleure modélisation de la turbulence au sein de ces couches. Par ailleurs, il serait utile d'inclure la donnée des émissions à l'intérieur de la canopée et de mettre pleinement à profit les données d'émissions issues d'un cadastre s'appuyant sur une approche ascendante.

## 6.3 Comparaison aux mesures

La dernière partie de ce travail a consisté à comparer les résultats des simulations utilisant le modèle de dépôt sec développé dans ces pages, aux rares mesures disponibles, comme cela a été évoqué précédemment, ainsi que, pour référence, aux résultats issus des simulations utilisant le modèle de dépôt par rugosité. Ces comparaisons ont été, dans l'ensemble, extrêmement difficiles à conduire, de part la rareté des données, ainsi que leur adéquation à cette étude. En effet, très peu de jeux de données existent pour des zones urbaines.

### 6.3.1 Mesures du NILU

Dans un premier temps, les comparaisons ont été faites à l'aide des données d'observation proposées par le Chemical Co-ordinating Center (CCC) du Norwegian Institute for Air Research (NILU). Ces données sont disponibles sur le domaine européen. C'est pourquoi les comparaisons ont été réalisées à partir des données des simulations sur le domaine européen, dont la résolution des mailles est faible. Ceci explique en partie les scores plutôt faibles des indicateurs statistiques permettant la comparaison des modèles et des mesures (et ce, quel que soit le modèle de dépôt utilisé, que ce soit le modèle urbain ou le modèle rugueux). En effet, les comparaisons ont été menées entre des mesures réalisées au niveau d'une station précisément localisée et les résultats de simulations moyennées sur une maille de superficie de plusieurs kilomètres carrés.

Par ailleurs, les simulations sur le domaine européen ont été réalisées à l'aide de conditions aux limites nulles, en l'absence de données, ce qui peut mener à un biais particulièrement important pour les stations situées à proximité des limites du domaine, ce qui est le cas pour un certain nombre d'entre elles.

Enfin, la très grande majorité des stations référencées par le NILU sont situées loin des grands centres urbains. Par suite, il semble malaisé de mener des comparaisons robustes d'un modèle de dépôt urbain dans ces conditions, hormis à détecter un impact indirect de ce modèle.

Il est donc difficile de conclure sur ces seuls résultats, mais une solide majorité des indicateurs statistiques tendent à prouver que le modèle de dépôt urbain donne de meilleurs résultats que le modèle de dépôt rugueux.

### 6.3.2 Mesures du projet INOGEV

Dans un second temps, des comparaisons à une échelle spatiale plus fine ont été permises grâce aux données expérimentales d'INOGEV fournies par Percot (2012).

Une fois de plus, on regrettera l'absence de données exploitables de dépôt sec. Seuls les impacts indirects du modèle de dépôt sec urbain sur les résultats des simulations de la concentration moyenne dans l'air et du dépôt humide ont pu être relevés.

Bien que les scores des indicateurs statistiques soient meilleurs que ceux obtenus lors des comparaisons avec les données du NILU, ils restent pour certains relativement médiocres.

Parmi les deux voies d'amélioration envisagées, on peut citer avant tout la production d'un inventaire des émissions plus précis, étant donné l'importance des sources proches dans les dépôts secs, particulièrement au niveau urbain. La seconde voie d'amélioration serait une meilleure modélisation de la dispersion verticale, via une meilleure résolution des niveaux verticaux simulés du compartiment atmosphérique.

Cette seconde partie des comparaisons modèle/mesure semble abonder dans le sens de la première, avec de meilleurs scores, dans l'ensemble, attribués aux simulations utilisant le modèle de dépôt sec urbain. Mais, une fois de plus, ces résultats ne sont que des résultats indirects (sur les dépôts humides ou sur les concentrations moyennes dans l'air) et non des comparaisons directes. Il est donc crucial de mener des campagnes de mesures fiables et précises de quantification des dépôts sec, particulièrement en milieu urbain.

### 6.3.3 Conclusion

Cette dernière partie a finalement mis en exergue le besoin impérieux de campagnes de mesures fiables du dépôt atmosphérique, en milieu urbain notamment.

L'une des informations clé à retenir est la confirmation de la prégnance des sources proches d'émissions dans les dépôts secs. L'autre voie d'amélioration serait donc d'améliorer la connaissance des émissions au sein de la canopée, et de les ajouter de manière plus fine dans le modèle, comme cela a été proposé dans les sections précédentes (à l'aide d'une approche multi-couche, couplée à un cadastre des émissions réalisé à l'aide d'une approche ascendante par exemple).

# Annexe A

## Grille EMEP

La grille EMEP est basée sur une projection polaire-stéréographique avec la conservation de la surface à la latitude 60° Nord. L'axe des ordonnées (y) est orienté parallèlement au 32° Ouest, défini comme une longitude négative (car situé à l'ouest de Greenwich). Le domaine étendu EMEP 50x50 km<sup>2</sup> inclut 132x159 points (avec i variant de 1 à 132 et j variant de 1 à 159).

Dans la grille 50x50 km<sup>2</sup>, la longitude  $\lambda$  et la latitude  $\phi$  de tout point ( $x, y$ ) de la grille peuvent être calculées comme suit :

$$\phi = 90 - \frac{360}{\pi} \arctan \left[ \frac{r}{M} \right] \quad (\text{A.1})$$

$$\lambda = \lambda_0 + \frac{180}{\pi} \arctan \left[ \frac{x - xpol}{ypol - y} \right] \quad (\text{A.2})$$

avec :

- $xpol = 8$  ( $x$  coordonnée du pôle nord)
- $ypol = 110$  ( $y$  coordonnée du pôle nord)
- $d = 50\text{km}$  (longueur de la grille à 60° N)
- $\phi_0 = 60^\circ N = \frac{\pi}{3}$
- $R = 6370$  km (rayon de la Terre)
- $M = R/d [1 + \sin(\phi_0)] = 237.73$  (nombre de points de la grille entre le pôle nord et l'équateur)
- $r = \sqrt{(x - xpol)^2 + (y - ypol)^2}$
- $\lambda_0 = -32$  (32° W) (angle de rotation, i.e. longitude parallèle à l'axe y)

Les coordonnées x et y de la grille EMEP de toute latitude  $\phi$  ou longitude  $\lambda$  peuvent être trouvées à l'aide des formules suivantes :

$$x = xpol + M \tan \left[ \frac{\pi}{4} - \frac{\phi}{2} \right] \sin(\lambda - \lambda_0) \quad (\text{A.3})$$

$$y = ypol - M \tan \left[ \frac{\pi}{4} - \frac{\phi}{2} \right] \cos(\lambda - \lambda_0) \quad (\text{A.4})$$

Il est à signaler que les coordonnées  $x$  et  $y$  calculées avec les équations ci-dessus coïncident avec le centre des carrés. Donc, si un carré de la grille possède des coordonnées centrales  $(x,y)$ , les coordonnées de ses coins inférieurs gauche et droit seront  $(x-0.5, y-0.5)$  et  $(x+0.5, y-0.5)$  respectivement, et les coordonnées  $(x,y)$  de ses coins supérieurs gauche et droit seront  $(x-0.5,y+0.5)$  et  $(x+0.5,y+0.5)$  respectivement. NB : En coordonnées géodésiques (latlon), la résolution de la grille EMEP est de 0.5 degré.

Voici la description proj.4 de la projection utilisée par la grille EMEP :

```
proj +ellps=sphere +a=127.4 +e=0 +proj=stere +lat_0=90 +lon_0=-32 +lat_ts=60 +x_0=8 +y_0=110
```

# Annexe B

## Liste des émissions suspectes

|   |   |
|---|---|
| Cell (86, 41)   Sector A: E = 3347792.9545  | Cell (85, 41)   Sector H: E = 55845275.0111 |
| Cell (86, 41)   Sector D: E = 3954332.91436 | Cell (85, 41)   Sector J: E = 1777979.56769 |
| Cell (86, 41)   Sector I: E = 26953656.4921 | Cell (81, 46)   Sector H: E = 8748672.06163 |
| Cell (86, 41)   Sector H: E = 352710606.219 | Cell (78, 43)   Sector H: E = 1653713.0427  |
| Cell (86, 41)   Sector J: E = 11291977.5721 | Cell (78, 43)   Sector J: E = 4162197.19738 |
| Cell (83, 42)   Sector H: E = 5510513.47795 | Cell (82, 48)   Sector H: E = 4195578.77845 |
| Cell (84, 47)   Sector I: E = 6048540.8815  | Cell (82, 43)   Sector H: E = 4190911.33499 |
| Cell (84, 47)   Sector H: E = 58615419.2514 | Cell (79, 44)   Sector H: E = 1937017.81266 |
| Cell (80, 42)   Sector H: E = 2805133.49206 | Cell (79, 44)   Sector J: E = 4799101.11722 |
| Cell (80, 42)   Sector J: E = 6997369.3339  | Cell (83, 41)   Sector G: E = 9081982.48907 |
| Cell (81, 48)   Sector I: E = 3384015.06829 | Cell (83, 41)   Sector I: E = 1427392.63832 |
| Cell (81, 48)   Sector H: E = 38156132.1901 | Cell (83, 41)   Sector H: E = 15180442.0246 |
| Cell (81, 48)   Sector J: E = 84089580.7282 | Cell (83, 41)   Sector J: E = 33455094.4199 |
| Cell (81, 41)   Sector I: E = 3066456.8643  | Cell (83, 46)   Sector I: E = 9795077.95874 |
| Cell (81, 41)   Sector H: E = 34368980.1613 | Cell (83, 46)   Sector H: E = 94922496.5822 |
| Cell (81, 41)   Sector J: E = 92781530.8715 | Cell (83, 46)   Sector J: E = 2091929.26041 |
| Cell (82, 44)   Sector G: E = 4985602.94229 | Cell (87, 42)   Sector J: E = 1140859.42199 |
| Cell (82, 44)   Sector I: E = 81570437.9814 | Cell (85, 49)   Sector I: E = 2804604.10271 |
| Cell (82, 44)   Sector H: E = 833338497.561 | Cell (85, 49)   Sector H: E = 23998240.6803 |
| Cell (82, 44)   Sector J: E = 18365353.3108 | Cell (85, 49)   Sector J: E = 52888012.5209 |
| Cell (80, 43)   Sector H: E = 5043642.57922 | Cell (86, 43)   Sector H: E = 5108545.58469 |
| Cell (85, 43)   Sector H: E = 7199614.90955 | Cell (82, 49)   Sector A: E = 2283230.69145 |
| Cell (79, 41)   Sector H: E = 2867932.03591 | Cell (82, 49)   Sector G: E = 1772715.20958 |
| Cell (81, 45)   Sector H: E = 5806863.64134 | Cell (82, 49)   Sector I: E = 35333000.6227 |
| Cell (82, 45)   Sector I: E = 2880163.79037 | Cell (82, 49)   Sector H: E = 296307557.272 |
| Cell (82, 45)   Sector H: E = 29406603.7686 | Cell (82, 49)   Sector J: E = 773005436.458 |
| Cell (82, 45)   Sector J: E = 64807118.5312 | Cell (83, 49)   Sector H: E = 4280858.90851 |
| Cell (79, 43)   Sector H: E = 9684346.65503 | Cell (88, 43)   Sector J: E = 7152944.42938 |
| Cell (84, 41)   Sector A: E = 1130784.52352 | Cell (81, 43)   Sector H: E = 2891302.83259 |
| Cell (84, 41)   Sector G: E = 1451280.50919 | Cell (81, 43)   Sector J: E = 6371936.27852 |
| Cell (84, 41)   Sector I: E = 22882975.1859 | Cell (85, 48)   Sector H: E = 1442648.37464 |
| Cell (84, 41)   Sector H: E = 242580071.672 | Cell (85, 48)   Sector J: E = 3179349.94976 |
| Cell (84, 41)   Sector J: E = 772316746.358 | Cell (81, 44)   Sector J: E = 4886194.45492 |
| Cell (84, 48)   Sector H: E = 8735234.6764  | Cell (78, 41)   Sector I: E = 9020472.79365 |
| Cell (89, 43)   Sector I: E = 4644778.54381 | Cell (78, 41)   Sector H: E = 1421609.48944 |
| Cell (89, 43)   Sector H: E = 60780720.2863 | Cell (78, 41)   Sector J: E = 3562559.91423 |
| Cell (89, 43)   Sector J: E = 1945885.71534 | Cell (82, 46)   Sector H: E = 6873822.21461 |
| Cell (85, 42)   Sector H: E = 3948722.0     | Cell (79, 42)   Sector H: E = 7772314.98593 |
| Cell (82, 42)   Sector H: E = 5477118.33709 | Cell (82, 41)   Sector I: E = 5541370.66779 |
| Cell (79, 45)   Sector H: E = 7031456.27173 | Cell (82, 41)   Sector H: E = 61411014.964  |
| Cell (79, 45)   Sector N: E = 1506772.089   | Cell (82, 41)   Sector J: E = 1594119.33698 |
| Cell (83, 47)   Sector H: E = 8958389.10042 | Cell (83, 43)   Sector H: E = 4685937.25758 |
| Cell (87, 43)   Sector H: E = 5104388.48076 | Cell (83, 48)   Sector H: E = 8134162.06453 |
| Cell (84, 42)   Sector H: E = 6133942.26836 | Cell (80, 41)   Sector I: E = 4415140.48966 |
| Cell (84, 49)   Sector H: E = 2048366.47073 | Cell (80, 41)   Sector J: E = 1277481.6156  |
| Cell (84, 49)   Sector J: E = 4668718.12661 | Cell (81, 42)   Sector H: E = 1931676.28811 |
| Cell (85, 41)   Sector I: E = 5267976.19244 | Cell (81, 42)   Sector J: E = 4714190.30445 |

## Annexe C

# Paramètres du modèle de Zhang et al. (2001)

Tableau C.1 – Valeurs des différents paramètres du modèle de dépôt sec de Zhang et al. (2001) étendu

| LUC           | 1    | 2    | 3    | 4    | 5    | 6    | 7    | 8    | 9    | 10   | 11   | 12   | 13    | 14    | 15   | 16   | 17   | 18   |
|---------------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|-------|-------|------|------|------|------|
| $z_0$         |      |      |      |      |      |      |      |      |      |      |      |      |       |       |      |      |      |      |
| Été           | 0.8  | 2.65 | 0.85 | 1.05 | 1.15 | 0.1  | 0.1  | 0.04 | 0.03 | 0.1  | 0.03 | 0.01 | 0.01  | 0.01  | 1.0  | 1.0  | 1.0  | 1.0  |
| Automne       | 0.9  | 2.65 | 0.85 | 1.05 | 1.15 | 0.1  | 0.1  | 0.04 | 0.03 | 0.1  | 0.03 | 0.01 | 0.01  | 0.01  | 1.0  | 1.0  | 1.0  | 1.0  |
| Fin d'automne | 0.9  | 2.65 | 0.80 | 0.95 | 1.15 | 0.05 | 0.02 | 0.04 | 0.03 | 0.1  | 0.02 | 0.01 | 0.01  | 0.01  | 1.0  | 1.0  | 1.0  | 1.0  |
| Hiver         | 0.9  | 2.65 | 0.55 | 0.55 | 1.15 | 0.02 | 0.02 | 0.04 | 0.03 | 0.1  | 0.02 | 0.01 | 0.01  | 0.01  | 1.0  | 1.0  | 1.0  | 1.0  |
| Printemps     | 0.8  | 2.65 | 0.60 | 0.75 | 1.15 | 0.05 | 0.05 | 0.04 | 0.03 | 0.1  | 0.03 | 0.01 | 0.01  | 0.01  | 1.0  | 1.0  | 1.0  | 1.0  |
| A (mm)        |      |      |      |      |      |      |      |      |      |      |      |      |       |       |      |      |      |      |
| Été           | 2    | 5    | 2    | 5    | 5    | 2    | 2    | 0    | 0    | 10   | 10   | 0    | 0     | 0     | 10   | 10   | 10   | 10   |
| Automne       | 2    | 5    | 2    | 5    | 5    | 2    | 2    | 0    | 0    | 10   | 10   | 0    | 0     | 0     | 10   | 10   | 10   | 10   |
| Fin d'automne | 2    | 5    | 5    | 10   | 5    | 5    | 5    | 0    | 0    | 10   | 10   | 0    | 0     | 0     | 10   | 10   | 10   | 10   |
| Hiver         | 2    | 5    | 5    | 10   | 5    | 5    | 5    | 0    | 0    | 10   | 10   | 0    | 0     | 0     | 10   | 10   | 10   | 10   |
| Printemps     | 2    | 5    | 2    | 5    | 5    | 2    | 2    | 0    | 0    | 10   | 10   | 0    | 0     | 0     | 10   | 10   | 10   | 10   |
| $\alpha$      | 1.0  | 0.6  | 1.1  | 0.8  | 0.8  | 1.2  | 1.2  | 50.0 | 50.0 | 1.3  | 2.0  | 50.0 | 100.0 | 100.0 | 1.5  | 1.5  | 1.5  | 1.5  |
| $\gamma$      | 0.56 | 0.58 | 0.56 | 0.56 | 0.56 | 0.54 | 0.54 | 0.54 | 0.54 | 0.54 | 0.54 | 0.54 | 0.50  | 0.50  | 0.56 | 0.56 | 0.56 | 0.56 |

## Annexe D

# Comparaisons des résultats du modèle aux données d'observations

113

### D.1 Comparaison aux données NILU pour les concentrations dans l'air

#### D.1.1 Statistiques pour le cadmium

Tableau D.1 – Statistiques des comparaisons modèle/mesure par station pour les concentrations mensuelles de cadmium dans l'air avec le modèle de dépôt urbain (en  $\mu\text{g.m}^{-3}$ ).

| Station | Nb obs. | Moy. obs.                | Moy. sim.                | MBE      | RMSE    | R <sup>2</sup> | NME | NMB  | F2  | F10  |
|---------|---------|--------------------------|--------------------------|----------|---------|----------------|-----|------|-----|------|
| BE0014R | 13      | 2.4e-04 ( $\pm$ 8.2e-05) | 7.1e-05 ( $\pm$ 2.3e-05) | -1.7e-04 | 1.8e-04 | 0.49           | 70% | -70% | 8%  | 100% |
| CZ0001R | 13      | 1.6e-04 ( $\pm$ 9.6e-05) | 2.1e-04 ( $\pm$ 5.8e-05) | 4.6e-05  | 1.1e-04 | 0.31           | 57% | 28%  | 54% | 100% |
| CZ0003R | 13      | 1.5e-04 ( $\pm$ 9.3e-05) | 1.2e-04 ( $\pm$ 4.2e-05) | -2.7e-05 | 9.6e-05 | 0.24           | 53% | -18% | 77% | 100% |
| DE0001R | 13      | 8.7e-05 ( $\pm$ 7.7e-05) | 1.9e-05 ( $\pm$ 8.7e-06) | -6.8e-05 | 9.8e-05 | 0.72           | 78% | -78% | 23% | 92%  |
| DE0002R | 13      | 1.4e-04 ( $\pm$ 1.0e-04) | 7.5e-05 ( $\pm$ 2.2e-05) | -7.0e-05 | 1.2e-04 | 0.16           | 56% | -48% | 62% | 100% |
| DE0003R | 13      | 4.7e-05 ( $\pm$ 3.2e-05) | 7.3e-05 ( $\pm$ 1.7e-05) | 2.6e-05  | 3.6e-05 | 0.65           | 72% | 56%  | 46% | 100% |
| DE0007R | 13      | 1.5e-04 ( $\pm$ 1.0e-04) | 8.1e-05 ( $\pm$ 4.0e-05) | -7.1e-05 | 1.0e-04 | 0.76           | 51% | -47% | 54% | 100% |

le Tableau D.1 continue page suivante



suite du Tableau D.1

| Station | Nb obs. | Moy. obs.           | Moy. sim.           | MBE      | RMSE    | R <sup>2</sup> | NME  | NMB  | F2   | F10  |
|---------|---------|---------------------|---------------------|----------|---------|----------------|------|------|------|------|
| DE0008R | 13      | 8.1e-05 (± 4.2e-05) | 9.7e-05 (± 2.9e-05) | 1.7e-05  | 4.5e-05 | 0.36           | 49%  | 21%  | 77%  | 100% |
| DE0009R | 4       | 1.3e-04 (± 6.2e-05) | 2.9e-05 (± 1.8e-05) | -9.9e-05 | 1.1e-04 | 0.96           | 77%  | -77% | 0%   | 100% |
| DK0008R | 13      | 3.4e-04 (± 1.4e-04) | 8.6e-06 (± 5.2e-06) | -3.3e-04 | 3.5e-04 | 0.70           | 97%  | -97% | 0%   | 0%   |
| DK0012R | 12      | 5.4e-04 (± 2.5e-04) | 3.1e-05 (± 1.0e-05) | -5.1e-04 | 5.7e-04 | 0.52           | 94%  | -94% | 0%   | 17%  |
| ES0006R | 3       | 1.1e-04 (± 9.6e-05) | 1.3e-05 (± 1.3e-06) | -9.3e-05 | 1.3e-04 | 0.59           | 88%  | -88% | 33%  | 67%  |
| ES0007R | 3       | 1.1e-04 (± 3.8e-05) | 3.4e-05 (± 3.8e-06) | -7.4e-05 | 8.1e-05 | 1.00           | 69%  | -69% | 0%   | 100% |
| ES0008R | 13      | 6.8e-05 (± 4.9e-05) | 3.9e-05 (± 6.2e-06) | -3.0e-05 | 5.5e-05 | 0.54           | 53%  | -43% | 62%  | 100% |
| ES0009R | 4       | 1.7e-05 (± 6.2e-06) | 3.3e-05 (± 8.9e-06) | 1.6e-05  | 1.6e-05 | 0.87           | 90%  | 90%  | 50%  | 100% |
| ES0014R | 1       | 4.3e-05 (± 0.0e+00) | 5.4e-05 (± 0.0e+00) | 1.1e-05  | 1.1e-05 | —              | 26%  | 26%  | 100% | 100% |
| ES1778R | 13      | 6.5e-05 (± 1.7e-05) | 1.9e-04 (± 2.1e-05) | 1.2e-04  | 1.2e-04 | 0.03           | 186% | 186% | 8%   | 100% |
| FI0017R | 13      | 1.1e-04 (± 4.8e-05) | 6.1e-06 (± 1.5e-06) | -1.0e-04 | 1.1e-04 | -0.29          | 94%  | -94% | 0%   | 15%  |
| FI0036R | 13      | 2.6e-05 (± 2.2e-05) | 1.5e-06 (± 1.1e-06) | -2.4e-05 | 3.2e-05 | 0.07           | 94%  | -94% | 0%   | 23%  |
| FI0037R | 13      | 6.4e-05 (± 2.9e-05) | 8.6e-06 (± 2.7e-06) | -5.6e-05 | 6.3e-05 | -0.35          | 87%  | -87% | 0%   | 69%  |
| FR0009R | 13      | 1.7e-04 (± 8.4e-05) | 2.0e-04 (± 4.5e-05) | 3.0e-05  | 1.1e-04 | -0.17          | 52%  | 17%  | 85%  | 100% |
| FR0013R | 13      | 7.0e-05 (± 2.1e-05) | 4.8e-05 (± 5.7e-06) | -2.2e-05 | 2.8e-05 | 0.69           | 35%  | -32% | 92%  | 100% |
| GB0013R | 13      | 6.0e-05 (± 3.3e-05) | 1.5e-05 (± 6.1e-06) | -4.4e-05 | 5.2e-05 | 0.86           | 74%  | -74% | 8%   | 100% |
| GB0017R | 13      | 1.2e-04 (± 4.5e-05) | 2.8e-05 (± 8.9e-06) | -8.7e-05 | 9.6e-05 | 0.55           | 75%  | -75% | 0%   | 100% |
| GB0036R | 9       | 8.9e-05 (± 4.3e-05) | 8.7e-05 (± 1.8e-05) | -1.4e-06 | 2.8e-05 | 0.88           | 28%  | -2%  | 100% | 100% |
| GB0048R | 13      | 2.9e-05 (± 1.1e-05) | 7.6e-06 (± 2.2e-06) | -2.2e-05 | 2.4e-05 | 0.60           | 74%  | -74% | 0%   | 100% |
| GB0091R | 13      | 3.8e-05 (± 2.0e-05) | 4.2e-06 (± 1.4e-06) | -3.4e-05 | 3.9e-05 | 0.21           | 89%  | -89% | 0%   | 62%  |
| HU0002R | 13      | 2.3e-04 (± 1.1e-04) | 1.2e-04 (± 2.3e-05) | -1.2e-04 | 1.7e-04 | -0.47          | 54%  | -50% | 54%  | 100% |
| LV0010R | 13      | 5.1e-05 (± 4.3e-05) | 2.2e-05 (± 7.9e-06) | -2.9e-05 | 5.3e-05 | -0.05          | 72%  | -57% | 38%  | 92%  |
| NL0008R | 13      | 2.2e-04 (± 8.9e-05) | 4.6e-04 (± 7.4e-05) | 2.4e-04  | 2.5e-04 | 0.31           | 107% | 107% | 46%  | 100% |
| NL0009R | 13      | 1.9e-04 (± 9.4e-05) | 4.2e-05 (± 1.3e-05) | -1.5e-04 | 1.7e-04 | 0.41           | 78%  | -78% | 8%   | 100% |
| NL0010R | 13      | 2.7e-04 (± 1.0e-04) | 3.5e-04 (± 6.7e-05) | 8.1e-05  | 1.2e-04 | 0.49           | 37%  | 30%  | 85%  | 100% |
| NO0002R | 13      | 4.4e-05 (± 2.1e-05) | 2.8e-06 (± 1.8e-06) | -4.2e-05 | 4.6e-05 | 0.66           | 94%  | -94% | 0%   | 15%  |
| NO0090R | 13      | 8.2e-06 (± 3.9e-06) | 4.2e-07 (± 1.4e-07) | -7.8e-06 | 8.7e-06 | 0.22           | 95%  | -95% | 0%   | 8%   |
| PL0005R | 13      | 2.0e-04 (± 1.2e-04) | 1.3e-04 (± 2.9e-05) | -6.9e-05 | 1.3e-04 | 0.17           | 48%  | -35% | 69%  | 100% |
| RO0008R | 13      | 2.5e-04 (± 6.6e-05) | 4.9e-05 (± 1.5e-05) | -2.0e-04 | 2.1e-04 | 0.24           | 80%  | -80% | 0%   | 100% |
| SE0005R | 13      | 1.1e-05 (± 1.2e-05) | 1.4e-06 (± 1.3e-06) | -9.3e-06 | 1.5e-05 | -0.33          | 88%  | -87% | 23%  | 46%  |
| SE0011R | 13      | 2.1e-05 (± 1.6e-05) | 2.3e-05 (± 7.9e-06) | 2.1e-06  | 1.6e-05 | 0.32           | 60%  | 10%  | 54%  | 92%  |

le Tableau D.1 continue page suivante

suite du Tableau D.1

| Station | Nb obs. | Moy. obs.           | Moy. sim.           | MBE      | RMSE    | R <sup>2</sup> | NME  | NMB  | F2   | F10  |
|---------|---------|---------------------|---------------------|----------|---------|----------------|------|------|------|------|
| SE0012R | 13      | 5.2e-05 (± 2.1e-05) | 7.2e-06 (± 1.9e-06) | -4.5e-05 | 4.9e-05 | 0.21           | 86%  | -86% | 0%   | 85%  |
| SE0014R | 13      | 4.3e-05 (± 3.6e-05) | 1.3e-05 (± 5.3e-06) | -3.0e-05 | 4.7e-05 | 0.14           | 79%  | -70% | 8%   | 92%  |
| SI0008R | 12      | 1.0e-04 (± 4.6e-05) | 9.8e-05 (± 2.1e-05) | -5.2e-06 | 3.3e-05 | 0.76           | 25%  | -5%  | 100% | 100% |
| SK0002R | 4       | 4.3e-05 (± 3.3e-05) | 2.0e-04 (± 4.5e-05) | 1.5e-04  | 1.6e-04 | 0.75           | 352% | 352% | 0%   | 75%  |
| SK0004R | 4       | 2.3e-04 (± 2.2e-05) | 1.7e-04 (± 3.9e-05) | -6.5e-05 | 6.8e-05 | 0.86           | 28%  | -28% | 100% | 100% |
| SK0006R | 4       | 1.9e-04 (± 4.4e-05) | 1.2e-04 (± 2.4e-05) | -7.0e-05 | 8.9e-05 | -0.23          | 37%  | -37% | 75%  | 100% |
| SK0007R | 4       | 2.6e-04 (± 5.6e-05) | 2.1e-04 (± 2.2e-05) | -5.3e-05 | 7.1e-05 | 0.56           | 25%  | -20% | 100% | 100% |
| Moyenne |         | 1.3e-04             | 8.0e-05             | -4.6e-05 | 1.0e-04 | 0.38           | 76%  | -28% | 38%  | 83%  |

Tableau D.2 – Statistiques des comparaisons modèle/mesure par mois pour les concentrations mensuelles de cadmium dans l'air avec le modèle de dépôt urbain (en  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ).

| Mois    | Nb obs. | Moy. obs.           | Moy. sim.           | MBE      | RMSE    | R <sup>2</sup> | NME | NMB | F2  | F10 |
|---------|---------|---------------------|---------------------|----------|---------|----------------|-----|-----|-----|-----|
| 2010-09 | 42      | 1.0e-04 (± 8.4e-05) | 8.1e-05 (± 9.8e-05) | -2.2e-05 | 1.1e-04 | 0.36           | 72% | 72% | 29% | 81% |
| 2010-10 | 42      | 1.6e-04 (± 1.5e-04) | 9.1e-05 (± 1.0e-04) | -6.9e-05 | 1.7e-04 | 0.27           | 68% | 68% | 36% | 79% |
| 2010-11 | 42      | 1.0e-04 (± 8.9e-05) | 6.7e-05 (± 8.6e-05) | -3.5e-05 | 9.5e-05 | 0.48           | 66% | 66% | 31% | 81% |
| 2010-12 | 42      | 1.3e-04 (± 1.1e-04) | 6.1e-05 (± 7.7e-05) | -7.0e-05 | 1.3e-04 | 0.38           | 71% | 71% | 29% | 71% |
| 2011-01 | 36      | 1.2e-04 (± 1.3e-04) | 5.3e-05 (± 7.1e-05) | -6.9e-05 | 1.5e-04 | 0.13           | 75% | 75% | 28% | 72% |
| 2011-02 | 36      | 2.3e-04 (± 1.9e-04) | 8.2e-05 (± 9.8e-05) | -1.5e-04 | 2.4e-04 | 0.36           | 70% | 70% | 25% | 69% |
| 2011-03 | 37      | 1.8e-04 (± 1.6e-04) | 8.5e-05 (± 1.1e-04) | -9.1e-05 | 1.8e-04 | 0.41           | 62% | 62% | 35% | 81% |
| 2011-04 | 37      | 1.6e-04 (± 1.6e-04) | 1.0e-04 (± 1.3e-04) | -6.4e-05 | 1.8e-04 | 0.33           | 62% | 62% | 38% | 86% |
| 2011-05 | 36      | 9.9e-05 (± 8.5e-05) | 8.5e-05 (± 1.2e-04) | -1.4e-05 | 1.1e-04 | 0.43           | 75% | 75% | 39% | 92% |
| 2011-06 | 36      | 7.7e-05 (± 7.8e-05) | 7.3e-05 (± 1.0e-04) | -3.9e-06 | 1.1e-04 | 0.23           | 88% | 88% | 39% | 89% |
| 2011-07 | 36      | 6.5e-05 (± 5.6e-05) | 6.6e-05 (± 8.7e-05) | 1.1e-06  | 9.6e-05 | 0.17           | 93% | 93% | 42% | 89% |
| 2011-08 | 35      | 9.5e-05 (± 1.0e-04) | 7.9e-05 (± 1.1e-04) | -1.6e-05 | 1.1e-04 | 0.46           | 71% | 71% | 43% | 86% |
| 2011-09 | 36      | 1.1e-04 (± 1.2e-04) | 8.4e-05 (± 1.1e-04) | -2.6e-05 | 1.5e-04 | 0.18           | 77% | 77% | 42% | 86% |

Tableau D.3 – Statistiques des comparaisons modèle/mesure par station pour les concentrations mensuelles de cadmium dans l'air avec le modèle de dépôt rugueux (en  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ).

| Station | Nb obs. | Moy. obs.                        | Moy. sim.                        | MBE      | RMSE    | R <sup>2</sup> | NME  | NMB  | F2   | F10  |
|---------|---------|----------------------------------|----------------------------------|----------|---------|----------------|------|------|------|------|
| BE0014R | 13      | 2.4e-04 ( $\pm 8.2\text{e-}05$ ) | 7.2e-05 ( $\pm 2.4\text{e-}05$ ) | -1.7e-04 | 1.8e-04 | 0.47           | 70%  | -70% | 8%   | 100% |
| CZ0001R | 13      | 1.6e-04 ( $\pm 9.6\text{e-}05$ ) | 2.1e-04 ( $\pm 5.9\text{e-}05$ ) | 4.7e-05  | 1.0e-04 | 0.37           | 55%  | 29%  | 54%  | 100% |
| CZ0003R | 13      | 1.5e-04 ( $\pm 9.3\text{e-}05$ ) | 1.2e-04 ( $\pm 4.3\text{e-}05$ ) | -2.6e-05 | 9.3e-05 | 0.31           | 50%  | -17% | 77%  | 100% |
| DE0001R | 13      | 8.7e-05 ( $\pm 7.7\text{e-}05$ ) | 1.9e-05 ( $\pm 9.4\text{e-}06$ ) | -6.7e-05 | 9.7e-05 | 0.76           | 78%  | -78% | 23%  | 92%  |
| DE0002R | 13      | 1.4e-04 ( $\pm 1.0\text{e-}04$ ) | 7.6e-05 ( $\pm 2.1\text{e-}05$ ) | -6.9e-05 | 1.2e-04 | 0.21           | 55%  | -48% | 62%  | 100% |
| DE0003R | 13      | 4.7e-05 ( $\pm 3.2\text{e-}05$ ) | 7.4e-05 ( $\pm 1.7\text{e-}05$ ) | 2.7e-05  | 3.6e-05 | 0.70           | 72%  | 58%  | 54%  | 100% |
| DE0007R | 13      | 1.5e-04 ( $\pm 1.0\text{e-}04$ ) | 8.1e-05 ( $\pm 3.9\text{e-}05$ ) | -7.0e-05 | 1.0e-04 | 0.79           | 50%  | -47% | 62%  | 100% |
| DE0008R | 13      | 8.1e-05 ( $\pm 4.2\text{e-}05$ ) | 9.8e-05 ( $\pm 2.8\text{e-}05$ ) | 1.7e-05  | 4.4e-05 | 0.39           | 48%  | 21%  | 77%  | 100% |
| DE0009R | 4       | 1.3e-04 ( $\pm 6.2\text{e-}05$ ) | 2.9e-05 ( $\pm 1.9\text{e-}05$ ) | -9.9e-05 | 1.1e-04 | 0.96           | 77%  | -77% | 0%   | 100% |
| DK0008R | 13      | 3.4e-04 ( $\pm 1.4\text{e-}04$ ) | 8.8e-06 ( $\pm 5.6\text{e-}06$ ) | -3.3e-04 | 3.5e-04 | 0.68           | 97%  | -97% | 0%   | 0%   |
| DK0012R | 12      | 5.4e-04 ( $\pm 2.5\text{e-}04$ ) | 3.1e-05 ( $\pm 1.1\text{e-}05$ ) | -5.1e-04 | 5.7e-04 | 0.55           | 94%  | -94% | 0%   | 17%  |
| ES0006R | 3       | 1.1e-04 ( $\pm 9.6\text{e-}05$ ) | 1.3e-05 ( $\pm 8.7\text{e-}07$ ) | -9.4e-05 | 1.3e-04 | 0.93           | 88%  | -88% | 33%  | 67%  |
| ES0007R | 3       | 1.1e-04 ( $\pm 3.8\text{e-}05$ ) | 3.5e-05 ( $\pm 3.8\text{e-}06$ ) | -7.3e-05 | 8.1e-05 | 1.00           | 68%  | -68% | 0%   | 100% |
| ES0008R | 13      | 6.8e-05 ( $\pm 4.9\text{e-}05$ ) | 3.9e-05 ( $\pm 6.1\text{e-}06$ ) | -3.0e-05 | 5.5e-05 | 0.59           | 53%  | -44% | 62%  | 100% |
| ES0009R | 4       | 1.7e-05 ( $\pm 6.2\text{e-}06$ ) | 3.3e-05 ( $\pm 8.7\text{e-}06$ ) | 1.6e-05  | 1.7e-05 | 0.87           | 93%  | 93%  | 50%  | 100% |
| ES0014R | 1       | 4.3e-05 ( $\pm 0.0\text{e+}00$ ) | 5.4e-05 ( $\pm 0.0\text{e+}00$ ) | 1.1e-05  | 1.1e-05 | —              | 27%  | 27%  | 100% | 100% |
| ES1778R | 13      | 6.5e-05 ( $\pm 1.7\text{e-}05$ ) | 1.9e-04 ( $\pm 2.1\text{e-}05$ ) | 1.2e-04  | 1.3e-04 | 0.10           | 188% | 188% | 8%   | 100% |
| FI0017R | 13      | 1.1e-04 ( $\pm 4.8\text{e-}05$ ) | 6.0e-06 ( $\pm 1.4\text{e-}06$ ) | -1.0e-04 | 1.1e-04 | -0.24          | 94%  | -94% | 0%   | 15%  |
| FI0036R | 13      | 2.6e-05 ( $\pm 2.2\text{e-}05$ ) | 1.5e-06 ( $\pm 1.0\text{e-}06$ ) | -2.4e-05 | 3.2e-05 | 0.07           | 94%  | -94% | 0%   | 23%  |
| FI0037R | 13      | 6.4e-05 ( $\pm 2.9\text{e-}05$ ) | 8.6e-06 ( $\pm 2.6\text{e-}06$ ) | -5.6e-05 | 6.3e-05 | -0.31          | 87%  | -87% | 0%   | 69%  |
| FR0009R | 13      | 1.7e-04 ( $\pm 8.4\text{e-}05$ ) | 2.0e-04 ( $\pm 4.5\text{e-}05$ ) | 3.2e-05  | 1.1e-04 | -0.14          | 53%  | 19%  | 92%  | 100% |
| FR0013R | 13      | 7.0e-05 ( $\pm 2.1\text{e-}05$ ) | 4.8e-05 ( $\pm 7.4\text{e-}06$ ) | -2.2e-05 | 2.8e-05 | 0.63           | 35%  | -31% | 100% | 100% |
| GB0013R | 13      | 6.0e-05 ( $\pm 3.3\text{e-}05$ ) | 1.6e-05 ( $\pm 6.5\text{e-}06$ ) | -4.4e-05 | 5.2e-05 | 0.84           | 74%  | -74% | 8%   | 100% |
| GB0017R | 13      | 1.2e-04 ( $\pm 4.5\text{e-}05$ ) | 2.9e-05 ( $\pm 9.2\text{e-}06$ ) | -8.7e-05 | 9.6e-05 | 0.58           | 75%  | -75% | 0%   | 100% |
| GB0036R | 9       | 8.9e-05 ( $\pm 4.3\text{e-}05$ ) | 8.8e-05 ( $\pm 2.0\text{e-}05$ ) | -1.1e-06 | 2.6e-05 | 0.90           | 25%  | -1%  | 100% | 100% |
| GB0048R | 13      | 2.9e-05 ( $\pm 1.1\text{e-}05$ ) | 7.6e-06 ( $\pm 2.2\text{e-}06$ ) | -2.2e-05 | 2.4e-05 | 0.62           | 74%  | -74% | 0%   | 100% |
| GB0091R | 13      | 3.8e-05 ( $\pm 2.0\text{e-}05$ ) | 4.2e-06 ( $\pm 1.4\text{e-}06$ ) | -3.4e-05 | 3.9e-05 | 0.23           | 89%  | -89% | 0%   | 62%  |
| HU0002R | 13      | 2.3e-04 ( $\pm 1.1\text{e-}04$ ) | 1.2e-04 ( $\pm 2.2\text{e-}05$ ) | -1.2e-04 | 1.6e-04 | -0.30          | 52%  | -49% | 54%  | 100% |
| LV0010R | 13      | 5.1e-05 ( $\pm 4.3\text{e-}05$ ) | 2.2e-05 ( $\pm 7.3\text{e-}06$ ) | -2.9e-05 | 5.3e-05 | -0.03          | 72%  | -57% | 38%  | 92%  |

le Tableau D.3 continue page suivante

suite du Tableau D.3

| Station | Nb obs. | Moy. obs.           | Moy. sim.           | MBE      | RMSE    | R <sup>2</sup> | NME  | NMB  | F2   | F10  |
|---------|---------|---------------------|---------------------|----------|---------|----------------|------|------|------|------|
| NL0008R | 13      | 2.2e-04 (± 8.9e-05) | 4.6e-04 (± 7.5e-05) | 2.4e-04  | 2.6e-04 | 0.34           | 111% | 111% | 46%  | 100% |
| NL0009R | 13      | 1.9e-04 (± 9.4e-05) | 4.2e-05 (± 1.3e-05) | -1.5e-04 | 1.7e-04 | 0.42           | 78%  | -78% | 8%   | 100% |
| NL0010R | 13      | 2.7e-04 (± 1.0e-04) | 3.6e-04 (± 6.9e-05) | 8.9e-05  | 1.2e-04 | 0.52           | 38%  | 33%  | 85%  | 100% |
| NO0002R | 13      | 4.4e-05 (± 2.1e-05) | 2.8e-06 (± 1.9e-06) | -4.2e-05 | 4.6e-05 | 0.68           | 94%  | -94% | 0%   | 15%  |
| NO0090R | 13      | 8.2e-06 (± 3.9e-06) | 4.2e-07 (± 1.5e-07) | -7.8e-06 | 8.7e-06 | 0.27           | 95%  | -95% | 0%   | 8%   |
| PL0005R | 13      | 2.0e-04 (± 1.2e-04) | 1.3e-04 (± 3.3e-05) | -6.7e-05 | 1.3e-04 | 0.13           | 50%  | -34% | 69%  | 100% |
| RO0008R | 13      | 2.5e-04 (± 6.6e-05) | 4.9e-05 (± 1.5e-05) | -2.0e-04 | 2.1e-04 | 0.31           | 80%  | -80% | 0%   | 100% |
| SE0005R | 13      | 1.1e-05 (± 1.2e-05) | 1.4e-06 (± 1.2e-06) | -9.3e-06 | 1.5e-05 | -0.33          | 88%  | -87% | 23%  | 46%  |
| SE0011R | 13      | 2.1e-05 (± 1.6e-05) | 2.3e-05 (± 8.0e-06) | 2.2e-06  | 1.6e-05 | 0.32           | 61%  | 11%  | 54%  | 92%  |
| SE0012R | 13      | 5.2e-05 (± 2.1e-05) | 7.2e-06 (± 1.8e-06) | -4.5e-05 | 4.9e-05 | 0.28           | 86%  | -86% | 0%   | 85%  |
| SE0014R | 13      | 4.3e-05 (± 3.6e-05) | 1.3e-05 (± 5.3e-06) | -3.0e-05 | 4.7e-05 | 0.13           | 79%  | -70% | 8%   | 92%  |
| SI0008R | 12      | 1.0e-04 (± 4.6e-05) | 9.9e-05 (± 2.1e-05) | -4.5e-06 | 3.2e-05 | 0.80           | 24%  | -4%  | 100% | 100% |
| SK0002R | 4       | 4.3e-05 (± 3.3e-05) | 2.0e-04 (± 4.6e-05) | 1.6e-04  | 1.6e-04 | 0.73           | 360% | 360% | 0%   | 75%  |
| SK0004R | 4       | 2.3e-04 (± 2.2e-05) | 1.7e-04 (± 4.0e-05) | -6.1e-05 | 6.6e-05 | 0.85           | 26%  | -26% | 100% | 100% |
| SK0006R | 4       | 1.9e-04 (± 4.4e-05) | 1.2e-04 (± 2.5e-05) | -6.8e-05 | 8.7e-05 | -0.20          | 36%  | -36% | 75%  | 100% |
| SK0007R | 4       | 2.6e-04 (± 5.6e-05) | 2.2e-04 (± 2.5e-05) | -4.5e-05 | 6.3e-05 | 0.67           | 22%  | -17% | 100% | 100% |
| Moyenne |         | 1.3e-04             | 8.1e-05             | -4.5e-05 | 1.0e-04 | 0.42           | 76%  | -27% | 38%  | 83%  |

Tableau D.4 – Statistiques des comparaisons modèle/mesure par mois pour les concentrations mensuelles de cadmium dans l'air avec le modèle de dépôt rugueux (en  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ).

| Mois    | Nb obs. | Moy. obs.           | Moy. sim.           | MBE      | RMSE    | R <sup>2</sup> | NME | NMB | F2  | F10 |
|---------|---------|---------------------|---------------------|----------|---------|----------------|-----|-----|-----|-----|
| 2010-09 | 42      | 1.0e-04 (± 8.4e-05) | 8.2e-05 (± 9.9e-05) | -2.1e-05 | 1.1e-04 | 0.36           | 72% | 72% | 29% | 81% |
| 2010-10 | 42      | 1.6e-04 (± 1.5e-04) | 9.5e-05 (± 1.1e-04) | -6.5e-05 | 1.7e-04 | 0.28           | 67% | 67% | 36% | 79% |
| 2010-11 | 42      | 1.0e-04 (± 8.9e-05) | 6.9e-05 (± 8.8e-05) | -3.3e-05 | 9.6e-05 | 0.48           | 67% | 67% | 33% | 81% |
| 2010-12 | 42      | 1.3e-04 (± 1.1e-04) | 6.3e-05 (± 8.0e-05) | -6.8e-05 | 1.3e-04 | 0.38           | 71% | 71% | 31% | 71% |
| 2011-01 | 36      | 1.2e-04 (± 1.3e-04) | 5.6e-05 (± 7.5e-05) | -6.6e-05 | 1.5e-04 | 0.13           | 75% | 75% | 28% | 72% |
| 2011-02 | 36      | 2.3e-04 (± 1.9e-04) | 8.3e-05 (± 1.0e-04) | -1.5e-04 | 2.4e-04 | 0.36           | 70% | 70% | 28% | 69% |
| 2011-03 | 37      | 1.8e-04 (± 1.6e-04) | 8.6e-05 (± 1.2e-04) | -9.0e-05 | 1.8e-04 | 0.41           | 62% | 62% | 35% | 81% |

le Tableau D.4 continue page suivante

suite du Tableau D.4

| Mois    | Nb obs. | Moy. obs.                | Moy. sim.                | MBE      | RMSE    | R <sup>2</sup> | NME | NMB | F2  | F10 |
|---------|---------|--------------------------|--------------------------|----------|---------|----------------|-----|-----|-----|-----|
| 2011-04 | 37      | 1.6e-04 ( $\pm$ 1.6e-04) | 1.0e-04 ( $\pm$ 1.3e-04) | -6.3e-05 | 1.8e-04 | 0.33           | 63% | 63% | 38% | 86% |
| 2011-05 | 36      | 9.9e-05 ( $\pm$ 8.5e-05) | 8.6e-05 ( $\pm$ 1.2e-04) | -1.3e-05 | 1.1e-04 | 0.43           | 75% | 75% | 39% | 92% |
| 2011-06 | 36      | 7.7e-05 ( $\pm$ 7.8e-05) | 7.2e-05 ( $\pm$ 1.0e-04) | -5.3e-06 | 1.1e-04 | 0.23           | 87% | 87% | 42% | 89% |
| 2011-07 | 36      | 6.5e-05 ( $\pm$ 5.6e-05) | 6.4e-05 ( $\pm$ 8.6e-05) | -1.5e-06 | 9.5e-05 | 0.16           | 92% | 92% | 42% | 89% |
| 2011-08 | 35      | 9.5e-05 ( $\pm$ 1.0e-04) | 7.7e-05 ( $\pm$ 1.1e-04) | -1.8e-05 | 1.1e-04 | 0.46           | 70% | 70% | 43% | 86% |
| 2011-09 | 36      | 1.1e-04 ( $\pm$ 1.2e-04) | 8.5e-05 ( $\pm$ 1.1e-04) | -2.4e-05 | 1.5e-04 | 0.17           | 79% | 79% | 42% | 86% |

## D.1.2 Statistiques pour le plomb

Tableau D.5 – Statistiques des comparaisons modèle/mesure par station pour les concentrations mensuelles de plomb dans l'air avec le modèle de dépôt urbain (en  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ).

| Station | Nb obs. | Moy. obs.                | Moy. sim.                | MBE      | RMSE    | R <sup>2</sup> | NME  | NMB  | F2   | F10  |
|---------|---------|--------------------------|--------------------------|----------|---------|----------------|------|------|------|------|
| BE0014R | 13      | 7.8e-03 ( $\pm$ 3.3e-03) | 1.8e-03 ( $\pm$ 5.9e-04) | -6.0e-03 | 6.8e-03 | 0.47           | 77%  | -77% | 0%   | 100% |
| CZ0001R | 13      | 4.6e-03 ( $\pm$ 2.4e-03) | 4.5e-03 ( $\pm$ 1.1e-03) | -3.9e-05 | 2.4e-03 | 0.19           | 42%  | -1%  | 77%  | 100% |
| CZ0003R | 13      | 4.5e-03 ( $\pm$ 2.6e-03) | 3.6e-03 ( $\pm$ 8.7e-04) | -9.2e-04 | 3.0e-03 | -0.10          | 50%  | -20% | 77%  | 100% |
| DE0001R | 13      | 3.3e-03 ( $\pm$ 2.7e-03) | 5.5e-04 ( $\pm$ 1.8e-04) | -2.7e-03 | 3.8e-03 | 0.56           | 83%  | -83% | 0%   | 85%  |
| DE0002R | 13      | 5.3e-03 ( $\pm$ 3.3e-03) | 2.8e-03 ( $\pm$ 6.3e-04) | -2.5e-03 | 4.2e-03 | -0.03          | 51%  | -47% | 62%  | 100% |
| DE0003R | 13      | 1.8e-03 ( $\pm$ 5.9e-04) | 4.7e-03 ( $\pm$ 7.8e-04) | 2.9e-03  | 3.0e-03 | 0.77           | 163% | 163% | 15%  | 100% |
| DE0007R | 13      | 5.1e-03 ( $\pm$ 3.5e-03) | 2.0e-03 ( $\pm$ 5.4e-04) | -3.1e-03 | 4.6e-03 | 0.32           | 62%  | -61% | 46%  | 100% |
| DE0008R | 13      | 2.8e-03 ( $\pm$ 1.3e-03) | 4.4e-03 ( $\pm$ 9.3e-04) | 1.6e-03  | 2.2e-03 | 0.14           | 70%  | 58%  | 54%  | 100% |
| DE0009R | 4       | 4.3e-03 ( $\pm$ 1.9e-03) | 7.0e-04 ( $\pm$ 3.5e-04) | -3.6e-03 | 4.0e-03 | 0.92           | 84%  | -84% | 0%   | 100% |
| DK0008R | 13      | 6.3e-04 ( $\pm$ 1.0e-03) | 2.7e-04 ( $\pm$ 9.7e-05) | -3.6e-04 | 1.1e-03 | 0.12           | 106% | -58% | 0%   | 85%  |
| DK0012R | 12      | 1.1e-03 ( $\pm$ 1.6e-03) | 1.3e-03 ( $\pm$ 2.9e-04) | 2.1e-04  | 1.7e-03 | -0.20          | 140% | 20%  | 8%   | 50%  |
| ES0006R | 3       | 4.3e-03 ( $\pm$ 2.9e-03) | 3.7e-04 ( $\pm$ 3.4e-05) | -3.9e-03 | 4.9e-03 | 0.45           | 91%  | -91% | 0%   | 67%  |
| ES0007R | 3       | 2.5e-03 ( $\pm$ 7.8e-04) | 1.3e-03 ( $\pm$ 1.4e-04) | -1.2e-03 | 1.4e-03 | 0.28           | 47%  | -47% | 67%  | 100% |
| ES0008R | 13      | 3.9e-03 ( $\pm$ 2.8e-03) | 8.5e-04 ( $\pm$ 1.5e-04) | -3.1e-03 | 4.1e-03 | 0.30           | 78%  | -78% | 15%  | 92%  |
| ES0009R | 4       | 1.1e-03 ( $\pm$ 7.4e-04) | 1.1e-03 ( $\pm$ 2.8e-04) | -5.8e-05 | 4.7e-04 | 0.99           | 40%  | -5%  | 75%  | 100% |
| ES0014R | 1       | 3.4e-03 ( $\pm$ 0.0e+00) | 1.8e-03 ( $\pm$ 0.0e+00) | -1.6e-03 | 1.6e-03 | —              | 47%  | -47% | 100% | 100% |
| ES1778R | 13      | 2.5e-03 ( $\pm$ 3.9e-04) | 5.6e-03 ( $\pm$ 5.9e-04) | 3.2e-03  | 3.2e-03 | 0.08           | 128% | 128% | 31%  | 100% |
| FI0017R | 13      | 3.0e-03 ( $\pm$ 1.3e-03) | 1.6e-04 ( $\pm$ 4.9e-05) | -2.9e-03 | 3.2e-03 | -0.27          | 95%  | -95% | 0%   | 8%   |
| FI0036R | 13      | 6.2e-04 ( $\pm$ 3.8e-04) | 3.5e-05 ( $\pm$ 2.6e-05) | -5.8e-04 | 7.0e-04 | -0.16          | 94%  | -94% | 0%   | 23%  |
| FI0037R | 4       | 1.5e-03 ( $\pm$ 8.5e-04) | 1.1e-04 ( $\pm$ 4.6e-05) | -1.4e-03 | 1.7e-03 | -0.27          | 93%  | -93% | 0%   | 25%  |
| FR0009R | 13      | 5.8e-03 ( $\pm$ 2.8e-03) | 6.7e-03 ( $\pm$ 1.2e-03) | 9.2e-04  | 3.1e-03 | 0.02           | 45%  | 16%  | 77%  | 100% |
| FR0013R | 13      | 3.1e-03 ( $\pm$ 9.2e-04) | 2.0e-03 ( $\pm$ 2.3e-04) | -1.1e-03 | 1.4e-03 | 0.65           | 35%  | -35% | 92%  | 100% |
| GB0013R | 13      | 2.7e-03 ( $\pm$ 1.3e-03) | 6.4e-04 ( $\pm$ 2.5e-04) | -2.0e-03 | 2.3e-03 | 0.86           | 76%  | -76% | 0%   | 100% |
| GB0017R | 13      | 5.9e-03 ( $\pm$ 2.4e-03) | 1.2e-03 ( $\pm$ 3.2e-04) | -4.7e-03 | 5.3e-03 | -0.27          | 80%  | -80% | 0%   | 85%  |
| GB0036R | 9       | 5.6e-03 ( $\pm$ 2.6e-03) | 5.4e-03 ( $\pm$ 8.8e-04) | -2.8e-04 | 1.8e-03 | 0.95           | 25%  | -5%  | 100% | 100% |
| GB0048R | 13      | 1.7e-03 ( $\pm$ 6.2e-04) | 2.3e-04 ( $\pm$ 6.0e-05) | -1.5e-03 | 1.6e-03 | 0.35           | 86%  | -86% | 0%   | 85%  |
| GB0091R | 13      | 1.7e-03 ( $\pm$ 1.5e-03) | 1.1e-04 ( $\pm$ 3.5e-05) | -1.6e-03 | 2.2e-03 | 0.09           | 94%  | -94% | 0%   | 38%  |

le Tableau D.5 continue page suivante

suite du Tableau D.5

| Station | Nb obs. | Moy. obs.           | Moy. sim.           | MBE      | RMSE    | R <sup>2</sup> | NME  | NMB  | F2  | F10  |
|---------|---------|---------------------|---------------------|----------|---------|----------------|------|------|-----|------|
| HU0002R | 13      | 7.3e-03 (± 2.9e-03) | 3.6e-03 (± 5.8e-04) | -3.7e-03 | 5.0e-03 | -0.49          | 51%  | -51% | 54% | 100% |
| LV0010R | 13      | 3.5e-03 (± 2.2e-03) | 3.5e-04 (± 1.2e-04) | -3.2e-03 | 3.9e-03 | -0.24          | 90%  | -90% | 0%  | 69%  |
| NL0008R | 13      | 7.4e-03 (± 3.0e-03) | 1.7e-02 (± 2.7e-03) | 9.5e-03  | 1.0e-02 | -0.23          | 129% | 129% | 38% | 100% |
| NL0009R | 13      | 5.6e-03 (± 2.7e-03) | 1.5e-03 (± 4.2e-04) | -4.1e-03 | 4.9e-03 | 0.27           | 73%  | -73% | 15% | 100% |
| NL0010R | 13      | 8.7e-03 (± 3.2e-03) | 6.5e-03 (± 1.3e-03) | -2.3e-03 | 3.8e-03 | 0.30           | 37%  | -26% | 92% | 100% |
| NO0002R | 13      | 2.2e-03 (± 1.6e-03) | 7.7e-05 (± 3.8e-05) | -2.1e-03 | 2.7e-03 | 0.10           | 96%  | -96% | 0%  | 15%  |
| NO0090R | 13      | 2.3e-04 (± 1.0e-04) | 1.2e-05 (± 3.7e-06) | -2.2e-04 | 2.4e-04 | 0.36           | 95%  | -95% | 0%  | 8%   |
| PL0005R | 13      | 4.9e-03 (± 1.8e-03) | 1.3e-03 (± 3.0e-04) | -3.6e-03 | 4.1e-03 | -0.19          | 74%  | -74% | 15% | 100% |
| RO0008R | 13      | 2.9e-03 (± 1.7e-03) | 1.2e-03 (± 3.6e-04) | -1.7e-03 | 2.4e-03 | 0.03           | 58%  | -58% | 54% | 100% |
| SE0005R | 13      | 3.9e-04 (± 2.9e-04) | 3.1e-05 (± 2.8e-05) | -3.5e-04 | 4.6e-04 | 0.06           | 92%  | -92% | 0%  | 46%  |
| SE0011R | 13      | 5.7e-04 (± 4.0e-04) | 8.5e-04 (± 2.1e-04) | 2.9e-04  | 5.6e-04 | -0.21          | 89%  | 50%  | 54% | 100% |
| SE0012R | 13      | 1.4e-03 (± 6.3e-04) | 2.5e-04 (± 4.5e-05) | -1.1e-03 | 1.3e-03 | -0.03          | 82%  | -82% | 0%  | 85%  |
| SE0014R | 13      | 1.6e-03 (± 9.4e-04) | 4.1e-04 (± 1.3e-04) | -1.2e-03 | 1.6e-03 | -0.01          | 75%  | -75% | 8%  | 92%  |
| SI0008R | 13      | 3.0e-03 (± 1.2e-03) | 2.9e-03 (± 5.1e-04) | -1.6e-04 | 1.2e-03 | 0.25           | 32%  | -5%  | 92% | 100% |
| SK0002R | 4       | 1.1e-03 (± 3.4e-04) | 4.7e-03 (± 8.2e-04) | 3.6e-03  | 3.6e-03 | 0.99           | 340% | 340% | 0%  | 100% |
| SK0004R | 4       | 8.5e-03 (± 1.8e-03) | 3.9e-03 (± 6.7e-04) | -4.7e-03 | 5.2e-03 | -0.58          | 55%  | -55% | 50% | 100% |
| SK0006R | 4       | 6.4e-03 (± 2.4e-03) | 2.1e-03 (± 4.0e-04) | -4.3e-03 | 5.1e-03 | -0.98          | 67%  | -67% | 25% | 100% |
| SK0007R | 4       | 9.2e-03 (± 2.3e-03) | 5.6e-03 (± 6.8e-04) | -3.6e-03 | 4.3e-03 | 0.22           | 39%  | -39% | 75% | 100% |
| Moyenne |         | 3.7e-03             | 2.4e-03             | -1.3e-03 | 3.0e-03 | 0.16           | 81%  | -32% | 33% | 83%  |

Tableau D.6 – Statistiques des comparaisons modèle/mesure par mois pour les concentrations mensuelles de plomb dans l'air avec le modèle de dépôt urbain (en  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ).

| Mois    | Nb obs. | Moy. obs.           | Moy. sim.           | MBE      | RMSE    | R <sup>2</sup> | NME | NMB | F2  | F10 |
|---------|---------|---------------------|---------------------|----------|---------|----------------|-----|-----|-----|-----|
| 2010-09 | 42      | 3.0e-03 (± 2.0e-03) | 2.4e-03 (± 2.9e-03) | -6.6e-04 | 2.8e-03 | 0.44           | 70% | 70% | 33% | 86% |
| 2010-10 | 42      | 4.5e-03 (± 3.0e-03) | 2.5e-03 (± 3.0e-03) | -2.0e-03 | 3.6e-03 | 0.51           | 66% | 66% | 31% | 83% |
| 2010-11 | 42      | 3.7e-03 (± 3.3e-03) | 2.0e-03 (± 2.7e-03) | -1.6e-03 | 3.5e-03 | 0.46           | 67% | 67% | 33% | 81% |
| 2010-12 | 42      | 4.5e-03 (± 3.6e-03) | 1.7e-03 (± 2.3e-03) | -2.8e-03 | 4.3e-03 | 0.47           | 71% | 71% | 24% | 71% |
| 2011-01 | 35      | 3.5e-03 (± 2.6e-03) | 1.8e-03 (± 2.4e-03) | -1.7e-03 | 3.2e-03 | 0.42           | 72% | 72% | 23% | 80% |

le Tableau D.6 continue page suivante

suite du Tableau D.6

| Mois    | Nb obs. | Moy. obs.                | Moy. sim.                | MBE      | RMSE    | R <sup>2</sup> | NME | NMB | F2  | F10 |
|---------|---------|--------------------------|--------------------------|----------|---------|----------------|-----|-----|-----|-----|
| 2011-02 | 35      | 6.5e-03 ( $\pm$ 4.9e-03) | 2.4e-03 ( $\pm$ 2.9e-03) | -4.1e-03 | 6.0e-03 | 0.48           | 72% | 72% | 20% | 71% |
| 2011-03 | 36      | 4.6e-03 ( $\pm$ 3.5e-03) | 2.6e-03 ( $\pm$ 3.5e-03) | -2.1e-03 | 4.1e-03 | 0.50           | 64% | 64% | 33% | 75% |
| 2011-04 | 36      | 4.1e-03 ( $\pm$ 3.2e-03) | 3.0e-03 ( $\pm$ 4.1e-03) | -1.1e-03 | 3.5e-03 | 0.60           | 61% | 61% | 36% | 86% |
| 2011-05 | 36      | 2.6e-03 ( $\pm$ 1.7e-03) | 2.7e-03 ( $\pm$ 3.6e-03) | 6.5e-05  | 2.9e-03 | 0.62           | 70% | 70% | 33% | 89% |
| 2011-06 | 35      | 1.9e-03 ( $\pm$ 1.2e-03) | 2.4e-03 ( $\pm$ 3.4e-03) | 5.2e-04  | 3.1e-03 | 0.49           | 89% | 89% | 31% | 89% |
| 2011-07 | 35      | 2.0e-03 ( $\pm$ 1.3e-03) | 2.3e-03 ( $\pm$ 3.0e-03) | 2.5e-04  | 2.9e-03 | 0.29           | 83% | 83% | 31% | 89% |
| 2011-08 | 34      | 2.4e-03 ( $\pm$ 1.9e-03) | 2.6e-03 ( $\pm$ 3.5e-03) | 1.8e-04  | 2.8e-03 | 0.59           | 76% | 76% | 29% | 85% |
| 2011-09 | 35      | 2.6e-03 ( $\pm$ 1.8e-03) | 2.8e-03 ( $\pm$ 3.4e-03) | 2.1e-04  | 2.9e-03 | 0.53           | 72% | 72% | 37% | 86% |



Tableau D.7 – Statistiques des comparaisons modèle/mesure par station pour les concentrations mensuelles de plomb dans l'air avec le modèle de dépôt rugueux (en  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ).

| Station | Nb obs. | Moy. obs.                | Moy. sim.                | MBE      | RMSE    | R <sup>2</sup> | NME  | NMB  | F2   | F10  |
|---------|---------|--------------------------|--------------------------|----------|---------|----------------|------|------|------|------|
| BE0014R | 13      | 7.8e-03 ( $\pm$ 3.3e-03) | 1.8e-03 ( $\pm$ 6.1e-04) | -6.0e-03 | 6.7e-03 | 0.48           | 77%  | -77% | 0%   | 100% |
| CZ0001R | 13      | 4.6e-03 ( $\pm$ 2.4e-03) | 4.5e-03 ( $\pm$ 1.1e-03) | -8.1e-06 | 2.3e-03 | 0.26           | 40%  | -0%  | 85%  | 100% |
| CZ0003R | 13      | 4.5e-03 ( $\pm$ 2.6e-03) | 3.6e-03 ( $\pm$ 8.8e-04) | -9.0e-04 | 2.9e-03 | -0.01          | 48%  | -20% | 77%  | 100% |
| DE0001R | 13      | 3.3e-03 ( $\pm$ 2.7e-03) | 5.6e-04 ( $\pm$ 1.8e-04) | -2.7e-03 | 3.7e-03 | 0.63           | 83%  | -83% | 0%   | 85%  |
| DE0002R | 13      | 5.3e-03 ( $\pm$ 3.3e-03) | 2.9e-03 ( $\pm$ 6.4e-04) | -2.4e-03 | 4.2e-03 | 0.06           | 50%  | -46% | 62%  | 100% |
| DE0003R | 13      | 1.8e-03 ( $\pm$ 5.9e-04) | 4.8e-03 ( $\pm$ 7.9e-04) | 3.0e-03  | 3.0e-03 | 0.77           | 167% | 167% | 15%  | 100% |
| DE0007R | 13      | 5.1e-03 ( $\pm$ 3.5e-03) | 2.0e-03 ( $\pm$ 5.5e-04) | -3.1e-03 | 4.6e-03 | 0.37           | 61%  | -61% | 46%  | 100% |
| DE0008R | 13      | 2.8e-03 ( $\pm$ 1.3e-03) | 4.5e-03 ( $\pm$ 9.1e-04) | 1.7e-03  | 2.2e-03 | 0.20           | 70%  | 59%  | 54%  | 100% |
| DE0009R | 4       | 4.3e-03 ( $\pm$ 1.9e-03) | 7.0e-04 ( $\pm$ 3.6e-04) | -3.6e-03 | 3.9e-03 | 0.93           | 84%  | -84% | 0%   | 100% |
| DK0008R | 13      | 6.3e-04 ( $\pm$ 1.0e-03) | 2.7e-04 ( $\pm$ 9.8e-05) | -3.6e-04 | 1.1e-03 | 0.16           | 106% | -57% | 0%   | 85%  |
| DK0012R | 12      | 1.1e-03 ( $\pm$ 1.6e-03) | 1.3e-03 ( $\pm$ 2.9e-04) | 2.2e-04  | 1.7e-03 | -0.16          | 140% | 21%  | 8%   | 50%  |
| ES0006R | 3       | 4.3e-03 ( $\pm$ 2.9e-03) | 3.6e-04 ( $\pm$ 2.4e-05) | -3.9e-03 | 4.9e-03 | 0.91           | 92%  | -92% | 0%   | 67%  |
| ES0007R | 3       | 2.5e-03 ( $\pm$ 7.8e-04) | 1.3e-03 ( $\pm$ 1.4e-04) | -1.1e-03 | 1.4e-03 | 0.31           | 46%  | -46% | 67%  | 100% |
| ES0008R | 13      | 3.9e-03 ( $\pm$ 2.8e-03) | 8.4e-04 ( $\pm$ 1.5e-04) | -3.1e-03 | 4.1e-03 | 0.32           | 79%  | -78% | 15%  | 92%  |
| ES0009R | 4       | 1.1e-03 ( $\pm$ 7.4e-04) | 1.1e-03 ( $\pm$ 2.7e-04) | -4.4e-05 | 4.8e-04 | 0.99           | 41%  | -4%  | 75%  | 100% |
| ES0014R | 1       | 3.4e-03 ( $\pm$ 0.0e+00) | 1.8e-03 ( $\pm$ 0.0e+00) | -1.6e-03 | 1.6e-03 | —              | 47%  | -47% | 100% | 100% |
| ES1778R | 13      | 2.5e-03 ( $\pm$ 3.9e-04) | 5.6e-03 ( $\pm$ 5.8e-04) | 3.2e-03  | 3.3e-03 | 0.13           | 129% | 129% | 23%  | 100% |
| FI0017R | 13      | 3.0e-03 ( $\pm$ 1.3e-03) | 1.6e-04 ( $\pm$ 4.6e-05) | -2.9e-03 | 3.2e-03 | -0.22          | 95%  | -95% | 0%   | 8%   |
| FI0036R | 13      | 6.2e-04 ( $\pm$ 3.8e-04) | 3.5e-05 ( $\pm$ 2.6e-05) | -5.8e-04 | 7.0e-04 | -0.16          | 94%  | -94% | 0%   | 23%  |
| FI0037R | 4       | 1.5e-03 ( $\pm$ 8.5e-04) | 1.1e-04 ( $\pm$ 4.6e-05) | -1.4e-03 | 1.7e-03 | -0.27          | 93%  | -93% | 0%   | 25%  |
| FR0009R | 13      | 5.8e-03 ( $\pm$ 2.8e-03) | 6.7e-03 ( $\pm$ 1.2e-03) | 9.8e-04  | 3.1e-03 | 0.06           | 44%  | 17%  | 77%  | 100% |
| FR0013R | 13      | 3.1e-03 ( $\pm$ 9.2e-04) | 2.1e-03 ( $\pm$ 3.1e-04) | -1.1e-03 | 1.3e-03 | 0.69           | 34%  | -34% | 92%  | 100% |
| GB0013R | 13      | 2.7e-03 ( $\pm$ 1.3e-03) | 6.5e-04 ( $\pm$ 2.7e-04) | -2.0e-03 | 2.3e-03 | 0.84           | 76%  | -76% | 0%   | 100% |
| GB0017R | 13      | 5.9e-03 ( $\pm$ 2.4e-03) | 1.2e-03 ( $\pm$ 3.2e-04) | -4.7e-03 | 5.3e-03 | -0.22          | 80%  | -80% | 0%   | 85%  |
| GB0036R | 9       | 5.6e-03 ( $\pm$ 2.6e-03) | 5.4e-03 ( $\pm$ 1.0e-03) | -2.6e-04 | 1.7e-03 | 0.95           | 22%  | -5%  | 100% | 100% |
| GB0048R | 13      | 1.7e-03 ( $\pm$ 6.2e-04) | 2.3e-04 ( $\pm$ 6.2e-05) | -1.5e-03 | 1.6e-03 | 0.37           | 86%  | -86% | 0%   | 85%  |
| GB0091R | 13      | 1.7e-03 ( $\pm$ 1.5e-03) | 1.0e-04 ( $\pm$ 3.7e-05) | -1.6e-03 | 2.2e-03 | 0.08           | 94%  | -94% | 0%   | 38%  |
| HU0002R | 13      | 7.3e-03 ( $\pm$ 2.9e-03) | 3.6e-03 ( $\pm$ 5.5e-04) | -3.7e-03 | 4.9e-03 | -0.33          | 51%  | -51% | 54%  | 100% |
| LV0010R | 13      | 3.5e-03 ( $\pm$ 2.2e-03) | 3.5e-04 ( $\pm$ 1.1e-04) | -3.2e-03 | 3.9e-03 | -0.24          | 90%  | -90% | 0%   | 77%  |

le Tableau D.7 continue page suivante

suite du Tableau D.7

| Station | Nb obs. | Moy. obs.           | Moy. sim.           | MBE      | RMSE    | R <sup>2</sup> | NME  | NMB  | F2   | F10  |
|---------|---------|---------------------|---------------------|----------|---------|----------------|------|------|------|------|
| NL0008R | 13      | 7.4e-03 (± 3.0e-03) | 1.7e-02 (± 2.7e-03) | 9.8e-03  | 1.1e-02 | -0.19          | 133% | 133% | 31%  | 100% |
| NL0009R | 13      | 5.6e-03 (± 2.7e-03) | 1.5e-03 (± 4.0e-04) | -4.1e-03 | 4.9e-03 | 0.27           | 73%  | -73% | 15%  | 100% |
| NL0010R | 13      | 8.7e-03 (± 3.2e-03) | 6.6e-03 (± 1.4e-03) | -2.1e-03 | 3.7e-03 | 0.36           | 35%  | -24% | 92%  | 100% |
| NO0002R | 13      | 2.2e-03 (± 1.6e-03) | 7.8e-05 (± 4.0e-05) | -2.1e-03 | 2.7e-03 | 0.11           | 96%  | -96% | 0%   | 15%  |
| NO0090R | 13      | 2.3e-04 (± 1.0e-04) | 1.2e-05 (± 3.9e-06) | -2.2e-04 | 2.4e-04 | 0.40           | 95%  | -95% | 0%   | 8%   |
| PL0005R | 13      | 4.9e-03 (± 1.8e-03) | 1.3e-03 (± 3.1e-04) | -3.6e-03 | 4.1e-03 | -0.11          | 74%  | -74% | 15%  | 100% |
| RO0008R | 13      | 2.9e-03 (± 1.7e-03) | 1.2e-03 (± 3.6e-04) | -1.7e-03 | 2.4e-03 | 0.07           | 58%  | -58% | 54%  | 100% |
| SE0005R | 13      | 3.9e-04 (± 2.9e-04) | 3.1e-05 (± 2.7e-05) | -3.5e-04 | 4.6e-04 | 0.06           | 92%  | -92% | 0%   | 46%  |
| SE0011R | 13      | 5.7e-04 (± 4.0e-04) | 8.6e-04 (± 2.0e-04) | 2.9e-04  | 5.6e-04 | -0.21          | 88%  | 50%  | 54%  | 100% |
| SE0012R | 13      | 1.4e-03 (± 6.3e-04) | 2.5e-04 (± 4.4e-05) | -1.2e-03 | 1.3e-03 | 0.02           | 82%  | -82% | 0%   | 85%  |
| SE0014R | 13      | 1.6e-03 (± 9.4e-04) | 4.1e-04 (± 1.3e-04) | -1.2e-03 | 1.5e-03 | -0.00          | 75%  | -75% | 8%   | 92%  |
| SI0008R | 13      | 3.0e-03 (± 1.2e-03) | 2.9e-03 (± 5.0e-04) | -1.4e-04 | 1.1e-03 | 0.36           | 31%  | -5%  | 100% | 100% |
| SK0002R | 4       | 1.1e-03 (± 3.4e-04) | 4.7e-03 (± 8.0e-04) | 3.7e-03  | 3.7e-03 | 0.99           | 347% | 347% | 0%   | 100% |
| SK0004R | 4       | 8.5e-03 (± 1.8e-03) | 3.9e-03 (± 6.6e-04) | -4.6e-03 | 5.1e-03 | -0.56          | 54%  | -54% | 50%  | 100% |
| SK0006R | 4       | 6.4e-03 (± 2.4e-03) | 2.2e-03 (± 3.9e-04) | -4.3e-03 | 5.1e-03 | -0.98          | 66%  | -66% | 25%  | 100% |
| SK0007R | 4       | 9.2e-03 (± 2.3e-03) | 5.8e-03 (± 7.6e-04) | -3.4e-03 | 4.0e-03 | 0.34           | 37%  | -37% | 75%  | 100% |
| Moyenne |         | 3.7e-03             | 2.4e-03             | -1.3e-03 | 3.0e-03 | 0.20           | 81%  | -31% | 33%  | 84%  |

Tableau D.8 – Statistiques des comparaisons modèle/mesure par mois pour les concentrations mensuelles de plomb dans l'air avec le modèle de dépôt rugueux (en  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ).

| Mois    | Nb obs. | Moy. obs.           | Moy. sim.           | MBE      | RMSE    | R <sup>2</sup> | NME | NMB | F2  | F10 |
|---------|---------|---------------------|---------------------|----------|---------|----------------|-----|-----|-----|-----|
| 2010-09 | 42      | 3.0e-03 (± 2.0e-03) | 2.4e-03 (± 3.0e-03) | -6.3e-04 | 2.8e-03 | 0.44           | 70% | 70% | 33% | 86% |
| 2010-10 | 42      | 4.5e-03 (± 3.0e-03) | 2.6e-03 (± 3.1e-03) | -1.9e-03 | 3.5e-03 | 0.52           | 65% | 65% | 31% | 83% |
| 2010-11 | 42      | 3.7e-03 (± 3.3e-03) | 2.1e-03 (± 2.7e-03) | -1.6e-03 | 3.5e-03 | 0.46           | 67% | 67% | 33% | 81% |
| 2010-12 | 42      | 4.5e-03 (± 3.6e-03) | 1.8e-03 (± 2.4e-03) | -2.8e-03 | 4.3e-03 | 0.48           | 70% | 70% | 24% | 71% |
| 2011-01 | 35      | 3.5e-03 (± 2.6e-03) | 1.9e-03 (± 2.5e-03) | -1.6e-03 | 3.1e-03 | 0.43           | 71% | 71% | 23% | 80% |
| 2011-02 | 35      | 6.5e-03 (± 4.9e-03) | 2.4e-03 (± 3.0e-03) | -4.0e-03 | 5.9e-03 | 0.48           | 72% | 72% | 20% | 71% |
| 2011-03 | 36      | 4.6e-03 (± 3.5e-03) | 2.6e-03 (± 3.6e-03) | -2.0e-03 | 4.1e-03 | 0.50           | 64% | 64% | 31% | 78% |

le Tableau D.8 continue page suivante

suite du Tableau D.8

| Mois    | Nb obs. | Moy. obs.                | Moy. sim.                | MBE      | RMSE    | R <sup>2</sup> | NME | NMB | F2  | F10 |
|---------|---------|--------------------------|--------------------------|----------|---------|----------------|-----|-----|-----|-----|
| 2011-04 | 36      | 4.1e-03 ( $\pm$ 3.2e-03) | 3.1e-03 ( $\pm$ 4.2e-03) | -1.0e-03 | 3.5e-03 | 0.61           | 61% | 61% | 36% | 86% |
| 2011-05 | 36      | 2.6e-03 ( $\pm$ 1.7e-03) | 2.7e-03 ( $\pm$ 3.7e-03) | 9.0e-05  | 3.0e-03 | 0.62           | 71% | 71% | 33% | 89% |
| 2011-06 | 35      | 1.9e-03 ( $\pm$ 1.2e-03) | 2.4e-03 ( $\pm$ 3.4e-03) | 4.8e-04  | 3.1e-03 | 0.48           | 88% | 88% | 31% | 89% |
| 2011-07 | 35      | 2.0e-03 ( $\pm$ 1.3e-03) | 2.2e-03 ( $\pm$ 3.0e-03) | 1.7e-04  | 2.9e-03 | 0.28           | 81% | 81% | 34% | 89% |
| 2011-08 | 34      | 2.4e-03 ( $\pm$ 1.9e-03) | 2.5e-03 ( $\pm$ 3.5e-03) | 1.2e-04  | 2.8e-03 | 0.58           | 75% | 75% | 29% | 85% |
| 2011-09 | 35      | 2.6e-03 ( $\pm$ 1.8e-03) | 2.8e-03 ( $\pm$ 3.5e-03) | 2.5e-04  | 3.0e-03 | 0.53           | 74% | 74% | 37% | 86% |

## D.2 Comparaison aux données NILU pour les flux de dépôt humides

### D.2.1 Statistiques pour le cadmium

Tableau D.9 – Statistiques des comparaisons modèle/mesure par station pour les flux humides mensuels de cadmium avec le modèle de dépôt urbain (en  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ).

| Station | Nb obs. | Moy. obs.                | Moy. sim.                | MBE      | RMSE    | R <sup>2</sup> | NME  | NMB  | F2  | F10  |
|---------|---------|--------------------------|--------------------------|----------|---------|----------------|------|------|-----|------|
| BE0014R | 13      | 2.5e-06 ( $\pm$ 5.8e-06) | 6.9e-07 ( $\pm$ 4.7e-07) | -1.8e-06 | 6.1e-06 | -0.05          | 83%  | -73% | 38% | 92%  |
| CZ0001R | 13      | 8.8e-07 ( $\pm$ 3.4e-07) | 7.0e-07 ( $\pm$ 3.2e-07) | -1.8e-07 | 4.7e-07 | 0.14           | 45%  | -20% | 69% | 100% |
| CZ0003R | 12      | 1.4e-06 ( $\pm$ 1.1e-06) | 5.5e-07 ( $\pm$ 2.1e-07) | -8.1e-07 | 1.3e-06 | 0.22           | 66%  | -59% | 33% | 100% |
| DE0001R | 13      | 4.4e-07 ( $\pm$ 2.6e-07) | 3.0e-07 ( $\pm$ 1.6e-07) | -1.4e-07 | 2.8e-07 | 0.39           | 42%  | -32% | 77% | 100% |
| DE0002R | 13      | 5.8e-07 ( $\pm$ 4.2e-07) | 4.5e-07 ( $\pm$ 1.8e-07) | -1.4e-07 | 4.3e-07 | 0.29           | 46%  | -23% | 85% | 100% |
| DE0003R | 13      | 7.9e-07 ( $\pm$ 3.5e-07) | 2.8e-07 ( $\pm$ 1.4e-07) | -5.1e-07 | 6.1e-07 | 0.31           | 65%  | -65% | 23% | 100% |
| DE0007R | 13      | 7.3e-07 ( $\pm$ 4.6e-07) | 6.0e-07 ( $\pm$ 3.1e-07) | -1.3e-07 | 5.4e-07 | 0.13           | 61%  | -18% | 54% | 100% |
| DE0008R | 13      | 8.4e-07 ( $\pm$ 3.1e-07) | 4.7e-07 ( $\pm$ 1.9e-07) | -3.6e-07 | 4.6e-07 | 0.47           | 46%  | -44% | 54% | 100% |
| DK0005R | 13      | 1.9e-06 ( $\pm$ 1.9e-06) | 2.8e-07 ( $\pm$ 1.4e-07) | -1.6e-06 | 2.5e-06 | 0.01           | 87%  | -85% | 15% | 85%  |
| DK0008R | 12      | 8.2e-07 ( $\pm$ 8.3e-07) | 1.9e-07 ( $\pm$ 1.4e-07) | -6.3e-07 | 1.0e-06 | 0.03           | 86%  | -76% | 8%  | 83%  |
| DK0022R | 12      | 1.1e-06 ( $\pm$ 1.2e-06) | 3.0e-07 ( $\pm$ 1.5e-07) | -8.4e-07 | 1.6e-06 | -0.39          | 84%  | -74% | 33% | 75%  |
| DK0031R | 12      | 1.0e-06 ( $\pm$ 8.8e-07) | 2.6e-07 ( $\pm$ 2.3e-07) | -7.5e-07 | 1.2e-06 | -0.07          | 84%  | -74% | 25% | 83%  |
| EE0009R | 13      | 4.9e-07 ( $\pm$ 8.6e-07) | 1.7e-07 ( $\pm$ 9.0e-08) | -3.2e-07 | 8.9e-07 | 0.43           | 103% | -65% | 0%  | 23%  |
| EE0011R | 13      | 4.3e-06 ( $\pm$ 1.1e-05) | 2.3e-07 ( $\pm$ 1.4e-07) | -4.1e-06 | 1.2e-05 | 0.16           | 96%  | -95% | 23% | 69%  |
| ES0008R | 13      | 1.2e-06 ( $\pm$ 8.9e-07) | 6.6e-07 ( $\pm$ 2.0e-07) | -5.4e-07 | 1.0e-06 | 0.35           | 56%  | -45% | 54% | 100% |
| ES0009R | 13      | 1.8e-06 ( $\pm$ 2.0e-06) | 2.3e-07 ( $\pm$ 1.1e-07) | -1.5e-06 | 2.5e-06 | 0.24           | 87%  | -87% | 15% | 77%  |
| FI0008R | 11      | 8.9e-07 ( $\pm$ 1.0e-06) | 3.9e-08 ( $\pm$ 4.6e-08) | -8.5e-07 | 1.3e-06 | 0.12           | 96%  | -96% | 0%  | 45%  |
| FI0017R | 11      | 1.1e-06 ( $\pm$ 8.8e-07) | 2.4e-07 ( $\pm$ 1.2e-07) | -8.6e-07 | 1.2e-06 | 0.16           | 78%  | -78% | 36% | 73%  |
| FI0022R | 11      | 4.1e-07 ( $\pm$ 3.8e-07) | 5.3e-08 ( $\pm$ 3.5e-08) | -3.5e-07 | 5.1e-07 | 0.25           | 87%  | -87% | 0%  | 82%  |
| FI0036R | 9       | 6.1e-07 ( $\pm$ 9.7e-07) | 4.5e-08 ( $\pm$ 5.2e-08) | -5.6e-07 | 1.1e-06 | -0.11          | 93%  | -93% | 22% | 67%  |
| FI0053R | 11      | 7.5e-07 ( $\pm$ 7.7e-07) | 2.4e-07 ( $\pm$ 1.1e-07) | -5.1e-07 | 9.7e-07 | -0.47          | 81%  | -68% | 27% | 82%  |
| FI0092R | 11      | 1.1e-06 ( $\pm$ 1.6e-06) | 1.7e-07 ( $\pm$ 1.2e-07) | -9.8e-07 | 1.9e-06 | 0.50           | 86%  | -85% | 45% | 73%  |
| FI0093R | 11      | 7.5e-07 ( $\pm$ 4.3e-07) | 2.8e-07 ( $\pm$ 9.6e-08) | -4.7e-07 | 6.2e-07 | 0.42           | 63%  | -63% | 45% | 100% |
| FR0009R | 9       | 6.1e-07 ( $\pm$ 3.9e-07) | 8.5e-07 ( $\pm$ 4.5e-07) | 2.5e-07  | 3.8e-07 | 0.77           | 53%  | 41%  | 78% | 89%  |
| FR0013R | 9       | 3.4e-07 ( $\pm$ 2.1e-07) | 1.7e-07 ( $\pm$ 9.8e-08) | -1.7e-07 | 2.8e-07 | 0.15           | 67%  | -51% | 33% | 100% |

le Tableau D.9 continue page suivante

suite du Tableau D.9

| Station | Nb obs. | Moy. obs.           | Moy. sim.           | MBE      | RMSE    | R <sup>2</sup> | NME  | NMB  | F2  | F10  |
|---------|---------|---------------------|---------------------|----------|---------|----------------|------|------|-----|------|
| FR0090R | 13      | 6.0e-07 (± 5.0e-07) | 7.6e-08 (± 4.1e-08) | -5.3e-07 | 7.2e-07 | 0.31           | 87%  | -87% | 0%  | 69%  |
| GB0006R | 9       | 2.0e-07 (± 1.0e-07) | 7.7e-08 (± 1.2e-08) | -1.3e-07 | 1.6e-07 | 0.35           | 63%  | -62% | 44% | 100% |
| GB0013R | 12      | 2.0e-07 (± 1.2e-07) | 1.1e-07 (± 7.5e-08) | -9.1e-08 | 1.6e-07 | 0.20           | 64%  | -45% | 33% | 100% |
| GB0017R | 13      | 3.2e-07 (± 1.3e-07) | 2.6e-07 (± 2.4e-07) | -5.8e-08 | 2.3e-07 | 0.40           | 53%  | -18% | 54% | 100% |
| GB0036R | 9       | 2.8e-07 (± 1.5e-07) | 2.7e-07 (± 1.5e-07) | -6.0e-09 | 1.8e-07 | 0.24           | 56%  | -2%  | 44% | 100% |
| GB0048R | 13      | 1.6e-07 (± 7.3e-08) | 1.3e-07 (± 5.1e-08) | -3.3e-08 | 8.9e-08 | 0.15           | 47%  | -21% | 77% | 100% |
| GB0091R | 13      | 3.2e-07 (± 3.1e-07) | 1.1e-07 (± 8.9e-08) | -2.1e-07 | 3.6e-07 | 0.36           | 66%  | -65% | 46% | 100% |
| HU0002R | 12      | 1.0e-06 (± 9.9e-07) | 1.9e-07 (± 1.2e-07) | -8.0e-07 | 1.3e-06 | 0.02           | 85%  | -80% | 17% | 67%  |
| IE0001R | 11      | 2.8e-06 (± 3.1e-06) | 3.2e-08 (± 1.2e-08) | -2.7e-06 | 4.1e-06 | 0.51           | 99%  | -99% | 0%  | 0%   |
| LV0010R | 13      | 1.7e-06 (± 1.4e-06) | 4.8e-07 (± 2.7e-07) | -1.2e-06 | 1.7e-06 | 0.70           | 76%  | -72% | 15% | 100% |
| NL0009R | 13      | 4.5e-07 (± 3.0e-07) | 4.6e-07 (± 1.9e-07) | 1.4e-08  | 3.6e-07 | -0.07          | 74%  | 3%   | 38% | 100% |
| NL0091R | 13      | 5.2e-07 (± 2.3e-07) | 1.8e-06 (± 8.3e-07) | 1.3e-06  | 1.5e-06 | -0.07          | 245% | 245% | 31% | 92%  |
| NO0001R | 13      | 1.9e-06 (± 2.4e-06) | 3.5e-07 (± 4.4e-07) | -1.5e-06 | 2.5e-06 | 0.87           | 81%  | -81% | 0%  | 69%  |
| NO0039R | 13      | 5.2e-07 (± 7.9e-07) | 2.8e-08 (± 3.0e-08) | -4.9e-07 | 9.3e-07 | -0.05          | 95%  | -95% | 8%  | 38%  |
| NO0047R | 13      | 2.2e-06 (± 4.3e-06) | 3.2e-08 (± 4.4e-08) | -2.2e-06 | 4.8e-06 | -0.02          | 99%  | -99% | 0%  | 0%   |
| NO0056R | 13      | 8.5e-07 (± 8.3e-07) | 3.3e-07 (± 3.5e-07) | -5.2e-07 | 7.8e-07 | 0.81           | 61%  | -61% | 38% | 85%  |
| PL0004R | 13      | 1.0e-06 (± 7.4e-07) | 7.6e-07 (± 6.1e-07) | -2.6e-07 | 8.4e-07 | 0.31           | 67%  | -26% | 31% | 100% |
| PL0005R | 13      | 9.0e-07 (± 5.7e-07) | 9.5e-07 (± 5.8e-07) | 4.7e-08  | 8.8e-07 | -0.16          | 71%  | 5%   | 69% | 100% |
| PT0002R | 12      | 3.1e-06 (± 2.0e-06) | 1.5e-07 (± 1.6e-07) | -3.0e-06 | 3.6e-06 | 0.22           | 95%  | -95% | 0%  | 17%  |
| PT0004R | 5       | 1.8e-06 (± 7.9e-07) | 3.6e-07 (± 8.0e-08) | -1.4e-06 | 1.6e-06 | 0.64           | 80%  | -80% | 20% | 100% |
| RS0005R | 9       | 1.9e-06 (± 1.6e-06) | 2.2e-07 (± 1.4e-07) | -1.7e-06 | 2.3e-06 | 0.78           | 88%  | -88% | 0%  | 56%  |
| SE0005R | 13      | 3.4e-07 (± 3.6e-07) | 1.4e-07 (± 1.8e-07) | -2.0e-07 | 3.5e-07 | 0.63           | 69%  | -60% | 23% | 77%  |
| SE0011R | 13      | 3.3e-06 (± 4.7e-06) | 3.3e-07 (± 1.2e-07) | -3.0e-06 | 5.6e-06 | 0.17           | 91%  | -90% | 31% | 69%  |
| SE0014R | 13      | 1.4e-06 (± 1.3e-06) | 2.9e-07 (± 1.6e-07) | -1.1e-06 | 1.6e-06 | 0.55           | 81%  | -79% | 31% | 85%  |
| SI0008R | 13      | 8.6e-07 (± 3.8e-07) | 4.3e-07 (± 2.2e-07) | -4.2e-07 | 5.8e-07 | 0.23           | 58%  | -49% | 38% | 100% |
| SK0002R | 12      | 2.5e-06 (± 1.4e-06) | 1.0e-06 (± 4.5e-07) | -1.4e-06 | 2.1e-06 | -0.31          | 64%  | -58% | 50% | 100% |
| SK0004R | 12      | 2.4e-06 (± 1.2e-06) | 1.0e-06 (± 3.5e-07) | -1.3e-06 | 1.9e-06 | -0.26          | 61%  | -56% | 42% | 100% |
| SK0006R | 13      | 1.3e-06 (± 7.3e-07) | 6.0e-07 (± 3.7e-07) | -7.3e-07 | 9.5e-07 | 0.55           | 58%  | -55% | 23% | 100% |
| SK0007R | 13      | 8.3e-07 (± 4.9e-07) | 2.7e-07 (± 2.2e-07) | -5.6e-07 | 7.9e-07 | -0.08          | 80%  | -68% | 8%  | 85%  |
| global  | 647     | 1.2e-06 (± 2.4e-06) | 3.7e-07 (± 4.2e-07) | -8.0e-07 | 2.5e-06 | 0.07           | 81%  | -68% | 32% | 82%  |
| Moyenne |         | 1.2e-06             | 3.7e-07             | -8.0e-07 | 1.6e-06 | 0.23           | 77%  | -55% | 32% | 82%  |

Tableau D.10 – Statistiques des comparaisons modèle/mesure par mois pour les flux humides mensuels de cadmium avec le modèle de dépôt urbain (en  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ).

| Mois    | Nb obs. | Moy. obs.                        | Moy. sim.                        | MBE      | RMSE    | R <sup>2</sup> | NME | NMB | F2  | F10 |
|---------|---------|----------------------------------|----------------------------------|----------|---------|----------------|-----|-----|-----|-----|
| 2010-09 | 45      | 1.1e-06 ( $\pm 9.0\text{e-}07$ ) | 3.1e-07 ( $\pm 2.9\text{e-}07$ ) | -8.2e-07 | 1.2e-06 | 0.11           | 75% | 75% | 27% | 73% |
| 2010-10 | 43      | 2.5e-06 ( $\pm 6.6\text{e-}06$ ) | 3.3e-07 ( $\pm 2.8\text{e-}07$ ) | -2.2e-06 | 6.9e-06 | 0.10           | 89% | 89% | 35% | 79% |
| 2010-11 | 45      | 1.2e-06 ( $\pm 1.1\text{e-}06$ ) | 5.2e-07 ( $\pm 5.8\text{e-}07$ ) | -6.5e-07 | 1.2e-06 | 0.34           | 68% | 68% | 31% | 87% |
| 2010-12 | 48      | 7.7e-07 ( $\pm 9.5\text{e-}07$ ) | 5.4e-07 ( $\pm 6.2\text{e-}07$ ) | -2.3e-07 | 1.1e-06 | 0.19           | 72% | 72% | 46% | 88% |
| 2011-01 | 53      | 1.0e-06 ( $\pm 1.8\text{e-}06$ ) | 5.4e-07 ( $\pm 6.4\text{e-}07$ ) | -4.6e-07 | 2.0e-06 | -0.04          | 87% | 87% | 43% | 85% |
| 2011-02 | 54      | 8.1e-07 ( $\pm 1.1\text{e-}06$ ) | 4.9e-07 ( $\pm 4.8\text{e-}07$ ) | -3.1e-07 | 1.2e-06 | 0.06           | 83% | 83% | 37% | 83% |
| 2011-03 | 54      | 5.7e-07 ( $\pm 6.3\text{e-}07$ ) | 3.5e-07 ( $\pm 3.5\text{e-}07$ ) | -2.2e-07 | 6.8e-07 | 0.26           | 70% | 70% | 43% | 87% |
| 2011-04 | 49      | 7.0e-07 ( $\pm 8.1\text{e-}07$ ) | 2.4e-07 ( $\pm 2.7\text{e-}07$ ) | -4.6e-07 | 8.6e-07 | 0.47           | 79% | 79% | 20% | 86% |
| 2011-05 | 49      | 1.5e-06 ( $\pm 2.5\text{e-}06$ ) | 2.5e-07 ( $\pm 2.3\text{e-}07$ ) | -1.3e-06 | 2.9e-06 | -0.02          | 85% | 85% | 18% | 73% |
| 2011-06 | 52      | 1.6e-06 ( $\pm 2.6\text{e-}06$ ) | 3.5e-07 ( $\pm 3.1\text{e-}07$ ) | -1.2e-06 | 2.8e-06 | 0.15           | 80% | 80% | 27% | 85% |
| 2011-07 | 51      | 1.2e-06 ( $\pm 9.2\text{e-}07$ ) | 3.7e-07 ( $\pm 3.7\text{e-}07$ ) | -7.9e-07 | 1.2e-06 | 0.24           | 74% | 74% | 29% | 78% |
| 2011-08 | 53      | 1.8e-06 ( $\pm 3.2\text{e-}06$ ) | 2.7e-07 ( $\pm 2.4\text{e-}07$ ) | -1.5e-06 | 3.5e-06 | 0.26           | 87% | 87% | 19% | 75% |
| 2011-09 | 51      | 7.6e-07 ( $\pm 7.8\text{e-}07$ ) | 2.9e-07 ( $\pm 2.7\text{e-}07$ ) | -4.8e-07 | 9.0e-07 | 0.22           | 75% | 75% | 37% | 80% |

Tableau D.11 – Statistiques des comparaisons modèle/mesure par station pour les flux humides mensuels de cadmium avec le modèle de dépôt rugueux (en  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ).

| Station | Nb obs. | Moy. obs.                | Moy. sim.                | MBE      | RMSE    | R <sup>2</sup> | NME  | NMB  | F2  | F10  |
|---------|---------|--------------------------|--------------------------|----------|---------|----------------|------|------|-----|------|
| BE0014R | 13      | 2.5e-06 ( $\pm$ 5.8e-06) | 6.9e-07 ( $\pm$ 4.7e-07) | -1.8e-06 | 6.1e-06 | -0.04          | 83%  | -72% | 38% | 92%  |
| CZ0001R | 13      | 8.8e-07 ( $\pm$ 3.4e-07) | 7.1e-07 ( $\pm$ 3.4e-07) | -1.7e-07 | 4.7e-07 | 0.19           | 44%  | -20% | 69% | 100% |
| CZ0003R | 12      | 1.4e-06 ( $\pm$ 1.1e-06) | 5.6e-07 ( $\pm$ 2.2e-07) | -8.0e-07 | 1.3e-06 | 0.24           | 67%  | -59% | 33% | 100% |
| DE0001R | 13      | 4.4e-07 ( $\pm$ 2.6e-07) | 3.0e-07 ( $\pm$ 1.6e-07) | -1.4e-07 | 2.8e-07 | 0.38           | 43%  | -32% | 77% | 100% |
| DE0002R | 13      | 5.8e-07 ( $\pm$ 4.2e-07) | 4.5e-07 ( $\pm$ 1.8e-07) | -1.3e-07 | 4.3e-07 | 0.29           | 46%  | -22% | 85% | 100% |
| DE0003R | 13      | 7.9e-07 ( $\pm$ 3.5e-07) | 2.8e-07 ( $\pm$ 1.4e-07) | -5.1e-07 | 6.1e-07 | 0.30           | 65%  | -65% | 23% | 100% |
| DE0007R | 13      | 7.3e-07 ( $\pm$ 4.6e-07) | 6.1e-07 ( $\pm$ 3.2e-07) | -1.2e-07 | 5.4e-07 | 0.12           | 63%  | -16% | 46% | 100% |
| DE0008R | 13      | 8.4e-07 ( $\pm$ 3.1e-07) | 4.7e-07 ( $\pm$ 2.0e-07) | -3.6e-07 | 4.6e-07 | 0.46           | 46%  | -43% | 54% | 100% |
| DK0005R | 13      | 1.9e-06 ( $\pm$ 1.9e-06) | 2.8e-07 ( $\pm$ 1.4e-07) | -1.6e-06 | 2.5e-06 | -0.01          | 88%  | -85% | 15% | 85%  |
| DK0008R | 12      | 8.2e-07 ( $\pm$ 8.3e-07) | 1.9e-07 ( $\pm$ 1.4e-07) | -6.3e-07 | 1.1e-06 | 0.01           | 87%  | -76% | 17% | 83%  |
| DK0022R | 12      | 1.1e-06 ( $\pm$ 1.2e-06) | 3.0e-07 ( $\pm$ 1.6e-07) | -8.4e-07 | 1.6e-06 | -0.39          | 85%  | -73% | 33% | 75%  |
| DK0031R | 12      | 1.0e-06 ( $\pm$ 8.8e-07) | 2.6e-07 ( $\pm$ 2.4e-07) | -7.5e-07 | 1.2e-06 | -0.07          | 84%  | -74% | 25% | 83%  |
| EE0009R | 13      | 4.9e-07 ( $\pm$ 8.6e-07) | 1.7e-07 ( $\pm$ 9.1e-08) | -3.2e-07 | 8.9e-07 | 0.42           | 103% | -65% | 0%  | 23%  |
| EE0011R | 13      | 4.3e-06 ( $\pm$ 1.1e-05) | 2.3e-07 ( $\pm$ 1.4e-07) | -4.1e-06 | 1.2e-05 | 0.14           | 96%  | -95% | 8%  | 69%  |
| ES0008R | 13      | 1.2e-06 ( $\pm$ 8.9e-07) | 6.7e-07 ( $\pm$ 2.0e-07) | -5.4e-07 | 1.0e-06 | 0.34           | 56%  | -45% | 54% | 100% |
| ES0009R | 13      | 1.8e-06 ( $\pm$ 2.0e-06) | 2.3e-07 ( $\pm$ 1.1e-07) | -1.5e-06 | 2.5e-06 | 0.23           | 87%  | -87% | 15% | 77%  |
| FI0008R | 11      | 8.9e-07 ( $\pm$ 1.0e-06) | 3.9e-08 ( $\pm$ 4.5e-08) | -8.5e-07 | 1.3e-06 | 0.12           | 96%  | -96% | 0%  | 45%  |
| FI0017R | 11      | 1.1e-06 ( $\pm$ 8.8e-07) | 2.4e-07 ( $\pm$ 1.2e-07) | -8.6e-07 | 1.2e-06 | 0.16           | 78%  | -78% | 36% | 73%  |
| FI0022R | 11      | 4.1e-07 ( $\pm$ 3.8e-07) | 5.2e-08 ( $\pm$ 3.3e-08) | -3.6e-07 | 5.1e-07 | 0.24           | 87%  | -87% | 0%  | 82%  |
| FI0036R | 9       | 6.1e-07 ( $\pm$ 9.7e-07) | 4.4e-08 ( $\pm$ 4.9e-08) | -5.7e-07 | 1.1e-06 | -0.10          | 93%  | -93% | 22% | 67%  |
| FI0053R | 11      | 7.5e-07 ( $\pm$ 7.7e-07) | 2.4e-07 ( $\pm$ 1.1e-07) | -5.1e-07 | 9.7e-07 | -0.47          | 82%  | -68% | 27% | 82%  |
| FI0092R | 11      | 1.1e-06 ( $\pm$ 1.6e-06) | 1.7e-07 ( $\pm$ 1.2e-07) | -9.8e-07 | 1.9e-06 | 0.50           | 86%  | -85% | 45% | 73%  |
| FI0093R | 11      | 7.5e-07 ( $\pm$ 4.3e-07) | 2.8e-07 ( $\pm$ 9.6e-08) | -4.7e-07 | 6.2e-07 | 0.41           | 63%  | -63% | 45% | 100% |
| FR0009R | 9       | 6.1e-07 ( $\pm$ 3.9e-07) | 8.6e-07 ( $\pm$ 4.6e-07) | 2.5e-07  | 3.9e-07 | 0.77           | 53%  | 41%  | 78% | 89%  |
| FR0013R | 9       | 3.4e-07 ( $\pm$ 2.1e-07) | 1.7e-07 ( $\pm$ 1.0e-07) | -1.7e-07 | 2.8e-07 | 0.14           | 67%  | -51% | 33% | 100% |
| FR0090R | 13      | 6.0e-07 ( $\pm$ 5.0e-07) | 7.5e-08 ( $\pm$ 4.1e-08) | -5.3e-07 | 7.2e-07 | 0.30           | 87%  | -87% | 8%  | 69%  |
| GB0006R | 9       | 2.0e-07 ( $\pm$ 1.0e-07) | 7.7e-08 ( $\pm$ 1.1e-08) | -1.3e-07 | 1.6e-07 | 0.37           | 63%  | -62% | 44% | 100% |
| GB0013R | 12      | 2.0e-07 ( $\pm$ 1.2e-07) | 1.1e-07 ( $\pm$ 7.5e-08) | -9.0e-08 | 1.6e-07 | 0.20           | 63%  | -44% | 33% | 100% |
| GB0017R | 13      | 3.2e-07 ( $\pm$ 1.3e-07) | 2.7e-07 ( $\pm$ 2.5e-07) | -5.2e-08 | 2.4e-07 | 0.39           | 55%  | -16% | 54% | 100% |

le Tableau D.11 continue page suivante

suite du Tableau D.11

| Station | Nb obs. | Moy. obs.           | Moy. sim.           | MBE      | RMSE    | R <sup>2</sup> | NME  | NMB  | F2  | F10  |
|---------|---------|---------------------|---------------------|----------|---------|----------------|------|------|-----|------|
| GB0036R | 9       | 2.8e-07 (± 1.5e-07) | 2.7e-07 (± 1.5e-07) | -5.2e-09 | 1.8e-07 | 0.24           | 55%  | -2%  | 56% | 100% |
| GB0048R | 13      | 1.6e-07 (± 7.3e-08) | 1.3e-07 (± 5.1e-08) | -3.3e-08 | 8.9e-08 | 0.15           | 47%  | -20% | 77% | 100% |
| GB0091R | 13      | 3.2e-07 (± 3.1e-07) | 1.1e-07 (± 8.9e-08) | -2.1e-07 | 3.6e-07 | 0.35           | 66%  | -65% | 46% | 100% |
| HU0002R | 12      | 1.0e-06 (± 9.9e-07) | 2.0e-07 (± 1.2e-07) | -7.9e-07 | 1.3e-06 | -0.00          | 85%  | -80% | 17% | 67%  |
| IE0001R | 11      | 2.8e-06 (± 3.1e-06) | 3.2e-08 (± 1.3e-08) | -2.7e-06 | 4.1e-06 | 0.52           | 99%  | -99% | 0%  | 0%   |
| LV0010R | 13      | 1.7e-06 (± 1.4e-06) | 4.8e-07 (± 2.8e-07) | -1.2e-06 | 1.7e-06 | 0.70           | 76%  | -72% | 15% | 100% |
| NL0009R | 13      | 4.5e-07 (± 3.0e-07) | 4.6e-07 (± 1.8e-07) | 1.2e-08  | 3.6e-07 | -0.07          | 74%  | 3%   | 46% | 100% |
| NL0091R | 13      | 5.2e-07 (± 2.3e-07) | 1.8e-06 (± 8.2e-07) | 1.3e-06  | 1.6e-06 | -0.06          | 248% | 248% | 31% | 92%  |
| NO0001R | 13      | 1.9e-06 (± 2.4e-06) | 3.6e-07 (± 4.5e-07) | -1.5e-06 | 2.5e-06 | 0.88           | 81%  | -81% | 0%  | 69%  |
| NO0039R | 13      | 5.2e-07 (± 7.9e-07) | 2.8e-08 (± 2.9e-08) | -4.9e-07 | 9.3e-07 | -0.04          | 95%  | -95% | 8%  | 38%  |
| NO0047R | 13      | 2.2e-06 (± 4.3e-06) | 3.2e-08 (± 4.3e-08) | -2.2e-06 | 4.8e-06 | -0.02          | 99%  | -99% | 0%  | 0%   |
| NO0056R | 13      | 8.5e-07 (± 8.3e-07) | 3.3e-07 (± 3.5e-07) | -5.2e-07 | 7.8e-07 | 0.83           | 62%  | -61% | 38% | 85%  |
| PL0004R | 13      | 1.0e-06 (± 7.4e-07) | 7.6e-07 (± 6.2e-07) | -2.6e-07 | 8.5e-07 | 0.31           | 67%  | -25% | 31% | 100% |
| PL0005R | 13      | 9.0e-07 (± 5.7e-07) | 9.6e-07 (± 6.0e-07) | 5.8e-08  | 9.0e-07 | -0.18          | 73%  | 6%   | 69% | 100% |
| PT0002R | 12      | 3.1e-06 (± 2.0e-06) | 1.5e-07 (± 1.5e-07) | -3.0e-06 | 3.6e-06 | 0.23           | 95%  | -95% | 0%  | 17%  |
| PT0004R | 5       | 1.8e-06 (± 7.9e-07) | 3.6e-07 (± 8.2e-08) | -1.4e-06 | 1.6e-06 | 0.65           | 80%  | -80% | 20% | 100% |
| RS0005R | 9       | 1.9e-06 (± 1.6e-06) | 2.2e-07 (± 1.5e-07) | -1.7e-06 | 2.3e-06 | 0.80           | 88%  | -88% | 0%  | 56%  |
| SE0005R | 13      | 3.4e-07 (± 3.6e-07) | 1.3e-07 (± 1.7e-07) | -2.1e-07 | 3.5e-07 | 0.65           | 68%  | -61% | 23% | 77%  |
| SE0011R | 13      | 3.3e-06 (± 4.7e-06) | 3.3e-07 (± 1.3e-07) | -2.9e-06 | 5.6e-06 | 0.09           | 91%  | -90% | 31% | 69%  |
| SE0014R | 13      | 1.4e-06 (± 1.3e-06) | 2.8e-07 (± 1.6e-07) | -1.1e-06 | 1.6e-06 | 0.53           | 81%  | -79% | 31% | 85%  |
| SI0008R | 13      | 8.6e-07 (± 3.8e-07) | 4.4e-07 (± 2.3e-07) | -4.2e-07 | 5.8e-07 | 0.21           | 58%  | -49% | 38% | 100% |
| SK0002R | 12      | 2.5e-06 (± 1.4e-06) | 1.1e-06 (± 4.6e-07) | -1.4e-06 | 2.1e-06 | -0.32          | 64%  | -58% | 50% | 100% |
| SK0004R | 12      | 2.4e-06 (± 1.2e-06) | 1.0e-06 (± 3.6e-07) | -1.3e-06 | 1.9e-06 | -0.26          | 61%  | -56% | 42% | 100% |
| SK0006R | 13      | 1.3e-06 (± 7.3e-07) | 6.1e-07 (± 3.8e-07) | -7.2e-07 | 9.6e-07 | 0.52           | 58%  | -54% | 23% | 100% |
| SK0007R | 13      | 8.3e-07 (± 4.9e-07) | 2.7e-07 (± 2.3e-07) | -5.5e-07 | 7.8e-07 | -0.09          | 80%  | -67% | 8%  | 85%  |
| global  | 647     | 1.2e-06 (± 2.4e-06) | 3.8e-07 (± 4.3e-07) | -8.0e-07 | 2.5e-06 | 0.07           | 81%  | -68% | 32% | 82%  |
| Moyenne |         | 1.2e-06             | 3.7e-07             | -8.0e-07 | 1.6e-06 | 0.22           | 77%  | -55% | 32% | 82%  |



Tableau D.12 – Statistiques des comparaisons modèle/mesure par mois pour les flux humides mensuels de cadmium avec le modèle de dépôt rugueux (en  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ).

| Mois    | Nb obs. | Moy. obs.                        | Moy. sim.                        | MBE      | RMSE    | R <sup>2</sup> | NME | NMB | F2  | F10 |
|---------|---------|----------------------------------|----------------------------------|----------|---------|----------------|-----|-----|-----|-----|
| 2010-09 | 45      | 1.1e-06 ( $\pm 9.0\text{e-}07$ ) | 3.1e-07 ( $\pm 2.9\text{e-}07$ ) | -8.2e-07 | 1.2e-06 | 0.11           | 75% | 75% | 27% | 73% |
| 2010-10 | 43      | 2.5e-06 ( $\pm 6.6\text{e-}06$ ) | 3.3e-07 ( $\pm 2.9\text{e-}07$ ) | -2.2e-06 | 6.9e-06 | 0.10           | 89% | 89% | 35% | 79% |
| 2010-11 | 45      | 1.2e-06 ( $\pm 1.1\text{e-}06$ ) | 5.2e-07 ( $\pm 5.9\text{e-}07$ ) | -6.4e-07 | 1.2e-06 | 0.34           | 68% | 68% | 31% | 87% |
| 2010-12 | 48      | 7.7e-07 ( $\pm 9.5\text{e-}07$ ) | 5.5e-07 ( $\pm 6.3\text{e-}07$ ) | -2.2e-07 | 1.1e-06 | 0.19           | 72% | 72% | 44% | 88% |
| 2011-01 | 53      | 1.0e-06 ( $\pm 1.8\text{e-}06$ ) | 5.6e-07 ( $\pm 6.6\text{e-}07$ ) | -4.5e-07 | 2.0e-06 | -0.04          | 87% | 87% | 43% | 85% |
| 2011-02 | 54      | 8.1e-07 ( $\pm 1.1\text{e-}06$ ) | 5.0e-07 ( $\pm 4.9\text{e-}07$ ) | -3.1e-07 | 1.2e-06 | 0.06           | 83% | 83% | 35% | 83% |
| 2011-03 | 54      | 5.7e-07 ( $\pm 6.3\text{e-}07$ ) | 3.5e-07 ( $\pm 3.6\text{e-}07$ ) | -2.2e-07 | 6.8e-07 | 0.26           | 70% | 70% | 43% | 87% |
| 2011-04 | 49      | 7.0e-07 ( $\pm 8.1\text{e-}07$ ) | 2.4e-07 ( $\pm 2.7\text{e-}07$ ) | -4.6e-07 | 8.6e-07 | 0.47           | 79% | 79% | 22% | 86% |
| 2011-05 | 49      | 1.5e-06 ( $\pm 2.5\text{e-}06$ ) | 2.5e-07 ( $\pm 2.3\text{e-}07$ ) | -1.3e-06 | 2.9e-06 | -0.03          | 85% | 85% | 18% | 73% |
| 2011-06 | 52      | 1.6e-06 ( $\pm 2.6\text{e-}06$ ) | 3.5e-07 ( $\pm 3.1\text{e-}07$ ) | -1.2e-06 | 2.8e-06 | 0.15           | 80% | 80% | 29% | 85% |
| 2011-07 | 51      | 1.2e-06 ( $\pm 9.2\text{e-}07$ ) | 3.6e-07 ( $\pm 3.7\text{e-}07$ ) | -8.0e-07 | 1.2e-06 | 0.23           | 74% | 74% | 29% | 78% |
| 2011-08 | 53      | 1.8e-06 ( $\pm 3.2\text{e-}06$ ) | 2.7e-07 ( $\pm 2.4\text{e-}07$ ) | -1.5e-06 | 3.5e-06 | 0.26           | 87% | 87% | 21% | 75% |
| 2011-09 | 51      | 7.6e-07 ( $\pm 7.8\text{e-}07$ ) | 2.8e-07 ( $\pm 2.6\text{e-}07$ ) | -4.8e-07 | 9.0e-07 | 0.22           | 75% | 75% | 37% | 80% |

## D.2.2 Statistiques pour le plomb

Tableau D.13 – Statistiques des comparaisons modèle/mesure par station pour les flux humides mensuels de plomb avec le modèle de dépôt urbain (en  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ).

| Station | Nb obs. | Moy. obs.                        | Moy. sim.                        | MBE      | RMSE    | R <sup>2</sup> | NME  | NMB  | F2  | F10  |
|---------|---------|----------------------------------|----------------------------------|----------|---------|----------------|------|------|-----|------|
| BE0014R | 13      | 1.9e-05 ( $\pm 1.1\text{e-}05$ ) | 1.4e-05 ( $\pm 7.5\text{e-}06$ ) | -5.0e-06 | 1.1e-05 | 0.48           | 45%  | -27% | 62% | 100% |
| CZ0001R | 13      | 4.8e-05 ( $\pm 4.0\text{e-}05$ ) | 1.6e-05 ( $\pm 7.0\text{e-}06$ ) | -3.2e-05 | 5.0e-05 | 0.41           | 69%  | -67% | 38% | 100% |
| CZ0003R | 12      | 2.1e-05 ( $\pm 1.6\text{e-}05$ ) | 1.5e-05 ( $\pm 5.5\text{e-}06$ ) | -6.6e-06 | 2.0e-05 | -0.23          | 74%  | -31% | 42% | 100% |
| DE0001R | 13      | 1.6e-05 ( $\pm 9.1\text{e-}06$ ) | 7.8e-06 ( $\pm 3.3\text{e-}06$ ) | -8.6e-06 | 1.1e-05 | 0.66           | 55%  | -52% | 62% | 100% |
| DE0002R | 13      | 1.6e-05 ( $\pm 9.3\text{e-}06$ ) | 1.3e-05 ( $\pm 5.0\text{e-}06$ ) | -2.8e-06 | 8.4e-06 | 0.52           | 43%  | -18% | 77% | 100% |
| DE0003R | 13      | 2.2e-05 ( $\pm 1.0\text{e-}05$ ) | 1.2e-05 ( $\pm 6.3\text{e-}06$ ) | -9.5e-06 | 1.2e-05 | 0.72           | 43%  | -43% | 54% | 100% |
| DE0007R | 13      | 2.3e-05 ( $\pm 1.9\text{e-}05$ ) | 1.3e-05 ( $\pm 5.8\text{e-}06$ ) | -9.7e-06 | 2.0e-05 | 0.32           | 63%  | -43% | 46% | 100% |
| DE0008R | 13      | 2.2e-05 ( $\pm 1.2\text{e-}05$ ) | 1.9e-05 ( $\pm 8.6\text{e-}06$ ) | -3.3e-06 | 1.0e-05 | 0.55           | 39%  | -15% | 92% | 100% |
| DK0005R | 13      | 1.0e-04 ( $\pm 6.1\text{e-}05$ ) | 6.7e-06 ( $\pm 2.8\text{e-}06$ ) | -9.7e-05 | 1.1e-04 | 0.43           | 94%  | -94% | 0%  | 31%  |
| DK0008R | 12      | 2.5e-05 ( $\pm 2.2\text{e-}05$ ) | 4.7e-06 ( $\pm 2.5\text{e-}06$ ) | -2.0e-05 | 3.0e-05 | 0.00           | 86%  | -81% | 8%  | 75%  |
| DK0022R | 12      | 3.2e-05 ( $\pm 2.8\text{e-}05$ ) | 7.9e-06 ( $\pm 3.2\text{e-}06$ ) | -2.5e-05 | 3.8e-05 | -0.33          | 83%  | -76% | 17% | 75%  |
| DK0031R | 12      | 2.6e-05 ( $\pm 2.3\text{e-}05$ ) | 7.2e-06 ( $\pm 4.9\text{e-}06$ ) | -1.9e-05 | 3.0e-05 | -0.12          | 80%  | -72% | 25% | 92%  |
| EE0009R | 13      | 5.7e-06 ( $\pm 5.8\text{e-}06$ ) | 4.8e-06 ( $\pm 3.2\text{e-}06$ ) | -9.5e-07 | 4.7e-06 | 0.60           | 62%  | -17% | 38% | 85%  |
| EE0011R | 13      | 3.7e-05 ( $\pm 1.0\text{e-}04$ ) | 4.6e-06 ( $\pm 2.8\text{e-}06$ ) | -3.3e-05 | 1.1e-04 | 0.12           | 94%  | -88% | 46% | 92%  |
| ES0008R | 13      | 2.5e-05 ( $\pm 1.1\text{e-}05$ ) | 1.4e-05 ( $\pm 3.8\text{e-}06$ ) | -1.2e-05 | 1.6e-05 | 0.15           | 52%  | -47% | 54% | 100% |
| ES0009R | 13      | 4.1e-05 ( $\pm 4.0\text{e-}05$ ) | 7.9e-06 ( $\pm 3.5\text{e-}06$ ) | -3.3e-05 | 5.1e-05 | 0.53           | 81%  | -81% | 15% | 92%  |
| FI0008R | 13      | 3.3e-06 ( $\pm 3.4\text{e-}06$ ) | 8.4e-07 ( $\pm 9.6\text{e-}07$ ) | -2.5e-06 | 3.9e-06 | 0.49           | 79%  | -74% | 23% | 62%  |
| FI0017R | 13      | 1.8e-05 ( $\pm 9.5\text{e-}06$ ) | 7.6e-06 ( $\pm 5.0\text{e-}06$ ) | -1.1e-05 | 1.4e-05 | 0.33           | 60%  | -59% | 54% | 85%  |
| FI0022R | 13      | 4.5e-06 ( $\pm 3.9\text{e-}06$ ) | 1.1e-06 ( $\pm 8.5\text{e-}07$ ) | -3.4e-06 | 4.6e-06 | 0.86           | 75%  | -75% | 0%  | 100% |
| FI0036R | 13      | 3.9e-06 ( $\pm 2.8\text{e-}06$ ) | 1.2e-06 ( $\pm 1.2\text{e-}06$ ) | -2.7e-06 | 3.4e-06 | 0.69           | 69%  | -69% | 23% | 85%  |
| FI0053R | 13      | 5.3e-06 ( $\pm 2.3\text{e-}06$ ) | 8.8e-06 ( $\pm 4.6\text{e-}06$ ) | 3.5e-06  | 6.8e-06 | -0.37          | 111% | 67%  | 46% | 100% |
| FI0092R | 13      | 1.1e-05 ( $\pm 7.2\text{e-}06$ ) | 3.8e-06 ( $\pm 2.9\text{e-}06$ ) | -6.7e-06 | 8.8e-06 | 0.67           | 64%  | -64% | 38% | 92%  |
| FI0093R | 13      | 9.0e-06 ( $\pm 2.4\text{e-}06$ ) | 5.2e-06 ( $\pm 2.4\text{e-}06$ ) | -3.8e-06 | 4.1e-06 | 0.77           | 42%  | -42% | 54% | 100% |
| FR0009R | 9       | 1.3e-05 ( $\pm 1.2\text{e-}05$ ) | 2.9e-05 ( $\pm 1.4\text{e-}05$ ) | 1.6e-05  | 1.7e-05 | 0.88           | 123% | 123% | 33% | 78%  |
| FR0013R | 9       | 8.5e-06 ( $\pm 7.5\text{e-}06$ ) | 5.6e-06 ( $\pm 3.0\text{e-}06$ ) | -2.9e-06 | 9.1e-06 | -0.17          | 69%  | -34% | 56% | 100% |
| FR0090R | 13      | 7.1e-06 ( $\pm 6.7\text{e-}06$ ) | 2.7e-06 ( $\pm 1.3\text{e-}06$ ) | -4.4e-06 | 7.9e-06 | 0.21           | 75%  | -62% | 31% | 92%  |
| GB0006R | 9       | 7.0e-06 ( $\pm 2.7\text{e-}06$ ) | 1.9e-06 ( $\pm 3.2\text{e-}07$ ) | -5.1e-06 | 5.8e-06 | 0.11           | 73%  | -73% | 11% | 100% |

le Tableau D.13 continue page suivante

suite du Tableau D.13

| Station | Nb obs. | Moy. obs.           | Moy. sim.           | MBE      | RMSE    | R <sup>2</sup> | NME  | NMB  | F2  | F10  |
|---------|---------|---------------------|---------------------|----------|---------|----------------|------|------|-----|------|
| GB0013R | 12      | 7.0e-06 (± 4.8e-06) | 3.9e-06 (± 2.5e-06) | -3.1e-06 | 5.3e-06 | 0.44           | 59%  | -44% | 42% | 100% |
| GB0017R | 13      | 1.4e-05 (± 5.4e-06) | 8.4e-06 (± 6.8e-06) | -5.4e-06 | 1.1e-05 | -0.11          | 61%  | -39% | 46% | 100% |
| GB0036R | 9       | 4.6e-05 (± 3.8e-05) | 1.4e-05 (± 8.7e-06) | -3.2e-05 | 5.3e-05 | -0.40          | 86%  | -69% | 22% | 78%  |
| GB0048R | 13      | 6.1e-06 (± 3.9e-06) | 3.5e-06 (± 1.4e-06) | -2.6e-06 | 4.7e-06 | 0.12           | 58%  | -42% | 46% | 100% |
| GB0091R | 13      | 1.2e-05 (± 1.2e-05) | 3.0e-06 (± 2.0e-06) | -8.7e-06 | 1.4e-05 | 0.37           | 74%  | -74% | 31% | 92%  |
| HU0002R | 12      | 2.2e-05 (± 1.5e-05) | 5.6e-06 (± 3.5e-06) | -1.6e-05 | 2.2e-05 | 0.06           | 79%  | -74% | 17% | 83%  |
| IE0001R | 11      | 5.6e-05 (± 8.9e-05) | 9.1e-07 (± 3.2e-07) | -5.5e-05 | 1.1e-04 | 0.33           | 98%  | -98% | 0%  | 36%  |
| LV0010R | 13      | 2.3e-05 (± 2.0e-05) | 8.3e-06 (± 4.6e-06) | -1.5e-05 | 2.5e-05 | 0.17           | 71%  | -64% | 46% | 85%  |
| NL0009R | 13      | 1.2e-05 (± 9.9e-06) | 1.4e-05 (± 5.4e-06) | 2.3e-06  | 1.3e-05 | -0.27          | 90%  | 19%  | 31% | 100% |
| NL0091R | 13      | 1.4e-05 (± 7.7e-06) | 5.9e-05 (± 2.7e-05) | 4.5e-05  | 5.4e-05 | -0.17          | 323% | 323% | 23% | 77%  |
| NO0001R | 13      | 4.0e-05 (± 4.2e-05) | 8.2e-06 (± 9.7e-06) | -3.1e-05 | 4.6e-05 | 0.89           | 79%  | -79% | 0%  | 69%  |
| NO0039R | 13      | 4.8e-06 (± 2.5e-06) | 7.2e-07 (± 6.6e-07) | -4.1e-06 | 4.6e-06 | 0.66           | 85%  | -85% | 0%  | 54%  |
| NO0047R | 13      | 1.1e-05 (± 7.2e-06) | 8.0e-07 (± 1.2e-06) | -1.0e-05 | 1.2e-05 | 0.51           | 93%  | -93% | 0%  | 23%  |
| NO0056R | 13      | 4.0e-05 (± 4.5e-05) | 7.2e-06 (± 7.5e-06) | -3.3e-05 | 5.6e-05 | -0.02          | 82%  | -82% | 23% | 62%  |
| PL0004R | 13      | 1.5e-05 (± 1.1e-05) | 9.3e-06 (± 7.7e-06) | -6.1e-06 | 1.1e-05 | 0.56           | 60%  | -40% | 46% | 92%  |
| PL0005R | 13      | 9.3e-06 (± 1.2e-05) | 1.1e-05 (± 4.7e-06) | 2.1e-06  | 1.3e-05 | 0.07           | 91%  | 23%  | 46% | 100% |
| PT0002R | 12      | 7.8e-06 (± 5.7e-06) | 5.6e-06 (± 3.9e-06) | -2.2e-06 | 6.0e-06 | 0.38           | 56%  | -28% | 58% | 100% |
| PT0004R | 5       | 5.1e-06 (± 3.4e-06) | 1.5e-05 (± 3.2e-06) | 9.7e-06  | 1.1e-05 | -0.15          | 190% | 190% | 20% | 100% |
| RS0005R | 9       | 3.1e-05 (± 2.6e-05) | 6.5e-06 (± 4.3e-06) | -2.4e-05 | 3.5e-05 | 0.23           | 79%  | -79% | 22% | 89%  |
| SE0005R | 13      | 4.0e-06 (± 4.3e-06) | 3.0e-06 (± 3.9e-06) | -1.0e-06 | 4.2e-06 | 0.52           | 71%  | -25% | 23% | 92%  |
| SE0011R | 13      | 1.4e-05 (± 9.3e-06) | 8.5e-06 (± 2.7e-06) | -5.2e-06 | 9.7e-06 | 0.52           | 50%  | -38% | 77% | 100% |
| SE0014R | 13      | 8.1e-06 (± 4.1e-06) | 7.4e-06 (± 4.1e-06) | -6.4e-07 | 4.0e-06 | 0.52           | 43%  | -8%  | 77% | 100% |
| SI0008R | 13      | 2.8e-05 (± 1.4e-05) | 1.4e-05 (± 6.6e-06) | -1.4e-05 | 2.1e-05 | -0.11          | 58%  | -50% | 38% | 100% |
| SK0002R | 12      | 8.6e-05 (± 6.4e-05) | 2.4e-05 (± 1.0e-05) | -6.2e-05 | 9.2e-05 | -0.31          | 78%  | -72% | 33% | 92%  |
| SK0004R | 12      | 3.9e-05 (± 2.3e-05) | 2.2e-05 (± 6.8e-06) | -1.6e-05 | 3.0e-05 | -0.12          | 57%  | -42% | 67% | 100% |
| SK0006R | 13      | 3.3e-05 (± 1.8e-05) | 1.2e-05 (± 7.1e-06) | -2.1e-05 | 2.7e-05 | 0.39           | 65%  | -65% | 31% | 100% |
| SK0007R | 13      | 1.6e-05 (± 7.1e-06) | 7.2e-06 (± 5.9e-06) | -9.0e-06 | 1.3e-05 | 0.04           | 70%  | -56% | 15% | 85%  |
| global  | 663     | 2.2e-05 (± 3.4e-05) | 9.5e-06 (± 1.1e-05) | -1.2e-05 | 3.6e-05 | 0.13           | 77%  | -57% | 36% | 88%  |
| Moyenne |         | 2.2e-05             | 9.6e-06             | -1.2e-05 | 2.5e-05 | 0.26           | 78%  | -37% | 36% | 88%  |

Tableau D.14 – Statistiques des comparaisons modèle/mesure par mois pour les flux humides mensuels de plomb avec le modèle de dépôt urbain (en  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ).

| Mois    | Nb obs. | Moy. obs.                        | Moy. sim.                        | MBE      | RMSE    | R <sup>2</sup> | NME | NMB | F2  | F10 |
|---------|---------|----------------------------------|----------------------------------|----------|---------|----------------|-----|-----|-----|-----|
| 2010-09 | 48      | 1.8e-05 ( $\pm 1.5\text{e-05}$ ) | 7.8e-06 ( $\pm 7.6\text{e-06}$ ) | -1.0e-05 | 1.8e-05 | 0.29           | 65% | 65% | 38% | 85% |
| 2010-10 | 47      | 2.8e-05 ( $\pm 6.0\text{e-05}$ ) | 8.1e-06 ( $\pm 6.9\text{e-06}$ ) | -2.0e-05 | 6.2e-05 | 0.21           | 77% | 77% | 47% | 91% |
| 2010-11 | 45      | 2.5e-05 ( $\pm 3.0\text{e-05}$ ) | 1.3e-05 ( $\pm 1.5\text{e-05}$ ) | -1.2e-05 | 3.4e-05 | 0.07           | 69% | 69% | 42% | 80% |
| 2010-12 | 48      | 1.5e-05 ( $\pm 1.4\text{e-05}$ ) | 1.3e-05 ( $\pm 1.7\text{e-05}$ ) | -2.0e-06 | 1.9e-05 | 0.21           | 72% | 72% | 48% | 92% |
| 2011-01 | 53      | 2.5e-05 ( $\pm 5.0\text{e-05}$ ) | 1.4e-05 ( $\pm 1.8\text{e-05}$ ) | -1.1e-05 | 5.5e-05 | -0.01          | 90% | 90% | 45% | 85% |
| 2011-02 | 54      | 1.7e-05 ( $\pm 2.4\text{e-05}$ ) | 1.2e-05 ( $\pm 1.3\text{e-05}$ ) | -4.9e-06 | 2.8e-05 | 0.03           | 90% | 90% | 31% | 89% |
| 2011-03 | 54      | 1.5e-05 ( $\pm 1.8\text{e-05}$ ) | 8.5e-06 ( $\pm 9.3\text{e-06}$ ) | -6.1e-06 | 2.0e-05 | 0.12           | 80% | 80% | 39% | 91% |
| 2011-04 | 52      | 1.5e-05 ( $\pm 2.2\text{e-05}$ ) | 6.0e-06 ( $\pm 7.2\text{e-06}$ ) | -9.0e-06 | 2.2e-05 | 0.37           | 81% | 81% | 31% | 92% |
| 2011-05 | 52      | 2.4e-05 ( $\pm 2.8\text{e-05}$ ) | 6.3e-06 ( $\pm 5.4\text{e-06}$ ) | -1.8e-05 | 3.2e-05 | 0.32           | 78% | 78% | 23% | 79% |
| 2011-06 | 53      | 2.7e-05 ( $\pm 3.7\text{e-05}$ ) | 9.0e-06 ( $\pm 8.3\text{e-06}$ ) | -1.8e-05 | 3.9e-05 | 0.40           | 72% | 72% | 38% | 98% |
| 2011-07 | 52      | 2.9e-05 ( $\pm 3.6\text{e-05}$ ) | 9.7e-06 ( $\pm 1.0\text{e-05}$ ) | -2.0e-05 | 3.9e-05 | 0.31           | 73% | 73% | 29% | 83% |
| 2011-08 | 53      | 2.9e-05 ( $\pm 4.2\text{e-05}$ ) | 7.5e-06 ( $\pm 6.9\text{e-06}$ ) | -2.1e-05 | 4.7e-05 | 0.11           | 81% | 81% | 26% | 87% |
| 2011-09 | 52      | 1.6e-05 ( $\pm 2.0\text{e-05}$ ) | 8.2e-06 ( $\pm 7.6\text{e-06}$ ) | -8.3e-06 | 2.2e-05 | 0.17           | 77% | 77% | 37% | 88% |

Tableau D.15 – Statistiques des comparaisons modèle/mesure par station pour les flux humides mensuels de plomb avec le modèle de dépôt rugueux (en  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ).

| Station | Nb obs. | Moy. obs.                        | Moy. sim.                        | MBE      | RMSE    | R <sup>2</sup> | NME  | NMB  | F2  | F10  |
|---------|---------|----------------------------------|----------------------------------|----------|---------|----------------|------|------|-----|------|
| BE0014R | 13      | 1.9e-05 ( $\pm 1.1\text{e-}05$ ) | 1.4e-05 ( $\pm 7.5\text{e-}06$ ) | -4.9e-06 | 1.1e-05 | 0.49           | 44%  | -26% | 62% | 100% |
| CZ0001R | 13      | 4.8e-05 ( $\pm 4.0\text{e-}05$ ) | 1.6e-05 ( $\pm 7.3\text{e-}06$ ) | -3.2e-05 | 4.9e-05 | 0.42           | 69%  | -66% | 38% | 100% |
| CZ0003R | 12      | 2.1e-05 ( $\pm 1.6\text{e-}05$ ) | 1.5e-05 ( $\pm 5.7\text{e-}06$ ) | -6.5e-06 | 2.0e-05 | -0.27          | 76%  | -30% | 42% | 100% |
| DE0001R | 13      | 1.6e-05 ( $\pm 9.1\text{e-}06$ ) | 7.8e-06 ( $\pm 3.3\text{e-}06$ ) | -8.6e-06 | 1.1e-05 | 0.65           | 55%  | -52% | 62% | 100% |
| DE0002R | 13      | 1.6e-05 ( $\pm 9.3\text{e-}06$ ) | 1.3e-05 ( $\pm 5.1\text{e-}06$ ) | -2.6e-06 | 8.4e-06 | 0.51           | 43%  | -17% | 69% | 100% |
| DE0003R | 13      | 2.2e-05 ( $\pm 1.0\text{e-}05$ ) | 1.3e-05 ( $\pm 6.3\text{e-}06$ ) | -9.5e-06 | 1.2e-05 | 0.71           | 43%  | -43% | 54% | 100% |
| DE0007R | 13      | 2.3e-05 ( $\pm 1.9\text{e-}05$ ) | 1.3e-05 ( $\pm 5.9\text{e-}06$ ) | -9.5e-06 | 2.0e-05 | 0.30           | 63%  | -42% | 46% | 100% |
| DE0008R | 13      | 2.2e-05 ( $\pm 1.2\text{e-}05$ ) | 1.9e-05 ( $\pm 8.8\text{e-}06$ ) | -3.2e-06 | 1.1e-05 | 0.54           | 40%  | -15% | 92% | 100% |
| DK0005R | 13      | 1.0e-04 ( $\pm 6.1\text{e-}05$ ) | 6.7e-06 ( $\pm 2.9\text{e-}06$ ) | -9.7e-05 | 1.1e-04 | 0.42           | 94%  | -94% | 0%  | 31%  |
| DK0008R | 12      | 2.5e-05 ( $\pm 2.2\text{e-}05$ ) | 4.7e-06 ( $\pm 2.5\text{e-}06$ ) | -2.0e-05 | 3.0e-05 | -0.01          | 86%  | -81% | 8%  | 75%  |
| DK0022R | 12      | 3.2e-05 ( $\pm 2.8\text{e-}05$ ) | 7.9e-06 ( $\pm 3.4\text{e-}06$ ) | -2.4e-05 | 3.8e-05 | -0.34          | 83%  | -76% | 17% | 75%  |
| DK0031R | 12      | 2.6e-05 ( $\pm 2.3\text{e-}05$ ) | 7.1e-06 ( $\pm 4.9\text{e-}06$ ) | -1.9e-05 | 3.0e-05 | -0.13          | 81%  | -72% | 17% | 92%  |
| EE0009R | 13      | 5.7e-06 ( $\pm 5.8\text{e-}06$ ) | 4.8e-06 ( $\pm 3.2\text{e-}06$ ) | -9.3e-07 | 4.7e-06 | 0.60           | 62%  | -16% | 38% | 85%  |
| EE0011R | 13      | 3.7e-05 ( $\pm 1.0\text{e-}04$ ) | 4.7e-06 ( $\pm 2.8\text{e-}06$ ) | -3.3e-05 | 1.1e-04 | 0.10           | 94%  | -87% | 46% | 92%  |
| ES0008R | 13      | 2.5e-05 ( $\pm 1.1\text{e-}05$ ) | 1.4e-05 ( $\pm 3.8\text{e-}06$ ) | -1.2e-05 | 1.6e-05 | 0.14           | 52%  | -46% | 54% | 100% |
| ES0009R | 13      | 4.1e-05 ( $\pm 4.0\text{e-}05$ ) | 8.0e-06 ( $\pm 3.5\text{e-}06$ ) | -3.3e-05 | 5.0e-05 | 0.53           | 81%  | -81% | 15% | 92%  |
| FI0008R | 13      | 3.3e-06 ( $\pm 3.4\text{e-}06$ ) | 8.3e-07 ( $\pm 9.5\text{e-}07$ ) | -2.5e-06 | 3.9e-06 | 0.50           | 79%  | -75% | 23% | 62%  |
| FI0017R | 13      | 1.8e-05 ( $\pm 9.5\text{e-}06$ ) | 7.6e-06 ( $\pm 5.0\text{e-}06$ ) | -1.1e-05 | 1.4e-05 | 0.33           | 60%  | -59% | 54% | 85%  |
| FI0022R | 13      | 4.5e-06 ( $\pm 3.9\text{e-}06$ ) | 1.1e-06 ( $\pm 8.1\text{e-}07$ ) | -3.4e-06 | 4.7e-06 | 0.85           | 75%  | -75% | 0%  | 100% |
| FI0036R | 13      | 3.9e-06 ( $\pm 2.8\text{e-}06$ ) | 1.2e-06 ( $\pm 1.1\text{e-}06$ ) | -2.7e-06 | 3.5e-06 | 0.69           | 70%  | -70% | 23% | 85%  |
| FI0053R | 13      | 5.3e-06 ( $\pm 2.3\text{e-}06$ ) | 8.8e-06 ( $\pm 4.7\text{e-}06$ ) | 3.5e-06  | 6.9e-06 | -0.37          | 111% | 67%  | 46% | 100% |
| FI0092R | 13      | 1.1e-05 ( $\pm 7.2\text{e-}06$ ) | 3.8e-06 ( $\pm 2.9\text{e-}06$ ) | -6.7e-06 | 8.8e-06 | 0.67           | 63%  | -63% | 38% | 92%  |
| FI0093R | 13      | 9.0e-06 ( $\pm 2.4\text{e-}06$ ) | 5.2e-06 ( $\pm 2.4\text{e-}06$ ) | -3.8e-06 | 4.1e-06 | 0.76           | 42%  | -42% | 54% | 100% |
| FR0009R | 9       | 1.3e-05 ( $\pm 1.2\text{e-}05$ ) | 2.9e-05 ( $\pm 1.4\text{e-}05$ ) | 1.6e-05  | 1.7e-05 | 0.87           | 123% | 123% | 22% | 78%  |
| FR0013R | 9       | 8.5e-06 ( $\pm 7.5\text{e-}06$ ) | 5.6e-06 ( $\pm 3.1\text{e-}06$ ) | -2.9e-06 | 9.1e-06 | -0.16          | 69%  | -34% | 56% | 100% |
| FR0090R | 13      | 7.1e-06 ( $\pm 6.7\text{e-}06$ ) | 2.7e-06 ( $\pm 1.2\text{e-}06$ ) | -4.5e-06 | 8.0e-06 | 0.19           | 76%  | -62% | 38% | 92%  |
| GB0006R | 9       | 7.0e-06 ( $\pm 2.7\text{e-}06$ ) | 1.9e-06 ( $\pm 3.1\text{e-}07$ ) | -5.1e-06 | 5.8e-06 | 0.10           | 73%  | -73% | 11% | 100% |
| GB0013R | 12      | 7.0e-06 ( $\pm 4.8\text{e-}06$ ) | 4.0e-06 ( $\pm 2.5\text{e-}06$ ) | -3.0e-06 | 5.3e-06 | 0.44           | 58%  | -43% | 42% | 100% |
| GB0017R | 13      | 1.4e-05 ( $\pm 5.4\text{e-}06$ ) | 8.7e-06 ( $\pm 7.0\text{e-}06$ ) | -5.2e-06 | 1.1e-05 | -0.11          | 62%  | -37% | 46% | 100% |

le Tableau D.15 continue page suivante

suite du Tableau D.15

| Station | Nb obs. | Moy. obs.           | Moy. sim.           | MBE      | RMSE    | R <sup>2</sup> | NME  | NMB  | F2  | F10  |
|---------|---------|---------------------|---------------------|----------|---------|----------------|------|------|-----|------|
| GB0036R | 9       | 4.6e-05 (± 3.8e-05) | 1.4e-05 (± 8.6e-06) | -3.2e-05 | 5.3e-05 | -0.39          | 86%  | -69% | 22% | 78%  |
| GB0048R | 13      | 6.1e-06 (± 3.9e-06) | 3.6e-06 (± 1.4e-06) | -2.5e-06 | 4.7e-06 | 0.11           | 58%  | -42% | 46% | 100% |
| GB0091R | 13      | 1.2e-05 (± 1.2e-05) | 3.1e-06 (± 2.1e-06) | -8.7e-06 | 1.4e-05 | 0.34           | 74%  | -74% | 31% | 92%  |
| HU0002R | 12      | 2.2e-05 (± 1.5e-05) | 5.8e-06 (± 3.7e-06) | -1.6e-05 | 2.2e-05 | 0.04           | 79%  | -73% | 17% | 83%  |
| IE0001R | 11      | 5.6e-05 (± 8.9e-05) | 9.1e-07 (± 3.4e-07) | -5.5e-05 | 1.1e-04 | 0.33           | 98%  | -98% | 0%  | 36%  |
| LV0010R | 13      | 2.3e-05 (± 2.0e-05) | 8.3e-06 (± 4.6e-06) | -1.5e-05 | 2.5e-05 | 0.15           | 71%  | -64% | 46% | 92%  |
| NL0009R | 13      | 1.2e-05 (± 9.9e-06) | 1.4e-05 (± 5.4e-06) | 2.3e-06  | 1.3e-05 | -0.27          | 90%  | 19%  | 31% | 100% |
| NL0091R | 13      | 1.4e-05 (± 7.7e-06) | 5.9e-05 (± 2.7e-05) | 4.5e-05  | 5.4e-05 | -0.15          | 328% | 328% | 23% | 77%  |
| NO0001R | 13      | 4.0e-05 (± 4.2e-05) | 8.3e-06 (± 1.0e-05) | -3.1e-05 | 4.6e-05 | 0.90           | 79%  | -79% | 0%  | 69%  |
| NO0039R | 13      | 4.8e-06 (± 2.5e-06) | 7.2e-07 (± 6.5e-07) | -4.1e-06 | 4.6e-06 | 0.68           | 85%  | -85% | 0%  | 54%  |
| NO0047R | 13      | 1.1e-05 (± 7.2e-06) | 7.9e-07 (± 1.2e-06) | -1.0e-05 | 1.2e-05 | 0.51           | 93%  | -93% | 0%  | 23%  |
| NO0056R | 13      | 4.0e-05 (± 4.5e-05) | 7.1e-06 (± 7.4e-06) | -3.3e-05 | 5.6e-05 | -0.02          | 82%  | -82% | 23% | 62%  |
| PL0004R | 13      | 1.5e-05 (± 1.1e-05) | 9.3e-06 (± 7.8e-06) | -6.1e-06 | 1.1e-05 | 0.56           | 60%  | -39% | 54% | 92%  |
| PL0005R | 13      | 9.3e-06 (± 1.2e-05) | 1.1e-05 (± 4.9e-06) | 2.2e-06  | 1.3e-05 | 0.03           | 94%  | 24%  | 46% | 100% |
| PT0002R | 12      | 7.8e-06 (± 5.7e-06) | 5.6e-06 (± 3.9e-06) | -2.2e-06 | 6.0e-06 | 0.39           | 56%  | -28% | 58% | 100% |
| PT0004R | 5       | 5.1e-06 (± 3.4e-06) | 1.5e-05 (± 3.4e-06) | 9.7e-06  | 1.1e-05 | -0.14          | 190% | 190% | 20% | 100% |
| RS0005R | 9       | 3.1e-05 (± 2.6e-05) | 6.6e-06 (± 4.4e-06) | -2.4e-05 | 3.5e-05 | 0.25           | 79%  | -79% | 22% | 89%  |
| SE0005R | 13      | 4.0e-06 (± 4.3e-06) | 2.9e-06 (± 3.7e-06) | -1.1e-06 | 4.0e-06 | 0.54           | 69%  | -28% | 23% | 92%  |
| SE0011R | 13      | 1.4e-05 (± 9.3e-06) | 8.5e-06 (± 2.7e-06) | -5.2e-06 | 9.9e-06 | 0.45           | 51%  | -38% | 77% | 100% |
| SE0014R | 13      | 8.1e-06 (± 4.1e-06) | 7.4e-06 (± 3.9e-06) | -6.6e-07 | 4.1e-06 | 0.50           | 43%  | -8%  | 77% | 100% |
| SI0008R | 13      | 2.8e-05 (± 1.4e-05) | 1.4e-05 (± 6.8e-06) | -1.4e-05 | 2.1e-05 | -0.12          | 58%  | -50% | 46% | 100% |
| SK0002R | 12      | 8.6e-05 (± 6.4e-05) | 2.4e-05 (± 1.1e-05) | -6.2e-05 | 9.2e-05 | -0.32          | 78%  | -72% | 33% | 92%  |
| SK0004R | 12      | 3.9e-05 (± 2.3e-05) | 2.3e-05 (± 7.0e-06) | -1.6e-05 | 3.0e-05 | -0.15          | 58%  | -42% | 67% | 100% |
| SK0006R | 13      | 3.3e-05 (± 1.8e-05) | 1.2e-05 (± 7.2e-06) | -2.1e-05 | 2.7e-05 | 0.38           | 64%  | -64% | 31% | 100% |
| SK0007R | 13      | 1.6e-05 (± 7.1e-06) | 7.4e-06 (± 6.1e-06) | -8.7e-06 | 1.3e-05 | 0.02           | 70%  | -54% | 15% | 92%  |
| global  | 663     | 2.2e-05 (± 3.4e-05) | 9.5e-06 (± 1.1e-05) | -1.2e-05 | 3.6e-05 | 0.13           | 78%  | -56% | 36% | 88%  |
| Moyenne |         | 2.2e-05             | 9.6e-06             | -1.2e-05 | 2.5e-05 | 0.26           | 78%  | -37% | 36% | 88%  |

Tableau D.16 – Statistiques des comparaisons modèle/mesure par mois pour les flux humides mensuels de plomb avec le modèle de dépôt rugueux (en  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ).

| Mois    | Nb obs. | Moy. obs.                        | Moy. sim.                        | MBE      | RMSE    | R <sup>2</sup> | NME | NMB | F2  | F10 |
|---------|---------|----------------------------------|----------------------------------|----------|---------|----------------|-----|-----|-----|-----|
| 2010-09 | 48      | 1.8e-05 ( $\pm 1.5\text{e-}05$ ) | 7.9e-06 ( $\pm 7.7\text{e-}06$ ) | -1.0e-05 | 1.8e-05 | 0.29           | 65% | 65% | 38% | 85% |
| 2010-10 | 47      | 2.8e-05 ( $\pm 6.0\text{e-}05$ ) | 8.2e-06 ( $\pm 7.1\text{e-}06$ ) | -2.0e-05 | 6.2e-05 | 0.21           | 78% | 78% | 47% | 91% |
| 2010-11 | 45      | 2.5e-05 ( $\pm 3.0\text{e-}05$ ) | 1.3e-05 ( $\pm 1.5\text{e-}05$ ) | -1.1e-05 | 3.5e-05 | 0.07           | 69% | 69% | 42% | 80% |
| 2010-12 | 48      | 1.5e-05 ( $\pm 1.4\text{e-}05$ ) | 1.3e-05 ( $\pm 1.7\text{e-}05$ ) | -1.9e-06 | 1.9e-05 | 0.21           | 72% | 72% | 48% | 92% |
| 2011-01 | 53      | 2.5e-05 ( $\pm 5.0\text{e-}05$ ) | 1.5e-05 ( $\pm 1.8\text{e-}05$ ) | -1.1e-05 | 5.5e-05 | -0.01          | 90% | 90% | 42% | 85% |
| 2011-02 | 54      | 1.7e-05 ( $\pm 2.4\text{e-}05$ ) | 1.2e-05 ( $\pm 1.3\text{e-}05$ ) | -4.7e-06 | 2.8e-05 | 0.03           | 90% | 90% | 31% | 89% |
| 2011-03 | 54      | 1.5e-05 ( $\pm 1.8\text{e-}05$ ) | 8.6e-06 ( $\pm 9.3\text{e-}06$ ) | -6.0e-06 | 2.0e-05 | 0.12           | 80% | 80% | 39% | 91% |
| 2011-04 | 52      | 1.5e-05 ( $\pm 2.2\text{e-}05$ ) | 6.0e-06 ( $\pm 7.3\text{e-}06$ ) | -9.0e-06 | 2.2e-05 | 0.37           | 81% | 81% | 33% | 94% |
| 2011-05 | 52      | 2.4e-05 ( $\pm 2.8\text{e-}05$ ) | 6.3e-06 ( $\pm 5.4\text{e-}06$ ) | -1.8e-05 | 3.2e-05 | 0.32           | 78% | 78% | 25% | 81% |
| 2011-06 | 53      | 2.7e-05 ( $\pm 3.7\text{e-}05$ ) | 9.0e-06 ( $\pm 8.3\text{e-}06$ ) | -1.8e-05 | 3.9e-05 | 0.40           | 73% | 73% | 38% | 98% |
| 2011-07 | 52      | 2.9e-05 ( $\pm 3.6\text{e-}05$ ) | 9.6e-06 ( $\pm 1.0\text{e-}05$ ) | -2.0e-05 | 4.0e-05 | 0.31           | 74% | 74% | 29% | 83% |
| 2011-08 | 53      | 2.9e-05 ( $\pm 4.2\text{e-}05$ ) | 7.5e-06 ( $\pm 7.0\text{e-}06$ ) | -2.1e-05 | 4.7e-05 | 0.11           | 81% | 81% | 26% | 87% |
| 2011-09 | 52      | 1.6e-05 ( $\pm 2.0\text{e-}05$ ) | 8.1e-06 ( $\pm 7.5\text{e-}06$ ) | -8.4e-06 | 2.2e-05 | 0.17           | 77% | 77% | 37% | 88% |

# Annexe E

## Géomatique

La carte est le support traditionnel de l'information géographique. Elle consiste à représenter une partie de la surface de la Terre sur une image en 2 dimensions, plane.

Pour cela, on est amené à définir un système de coordonnées de référence, qui est défini par un ensemble de paramètres :

- une forme mathématique simplifiée de la Terre (géoïde, ou plus pratiquement un ellipsoïde) ;
- le positionnement de cette forme mathématique par rapport au centre de la Terre (datum) ;
- ainsi qu'une projection cartographique ;

### E.1 Géοïde

Le support cartographique s'appuie tout d'abord sur une représentation mathématique de la Terre.

Si la Terre était homogène et immobile, sa surface serait une équipotentielle de gravité parfaitement sphérique. Du fait de sa rotation, sa surface est un pseudo-ellipsoïde aplati aux deux pôles et légèrement enflé au niveau de l'équateur. On modélise donc la surface terrestre avec une forme appelée géοïde. Le géοïde est défini comme étant une surface équipotentielle de pesanteur ; c'est une représentation gravitationnelle de la surface de la terre.

En faisant abstraction des irrégularités de la surface terrestre qui rendent la définition mathématique du géοïde difficile dans la pratique, on définit mathématiquement un ellipsoïde de référence caractérisé par la longueur de son demi grand axe ( $a$ ), la longueur de son demi petit axe ( $b$ ), afin d'approcher le géοïde. L'aplatissement de l'ellipsoïde au pôle, peut ainsi être défini tel que  $f=(a-b)/a$ .

L'ellipsoïde seul ne suffit pas : il est nécessaire de le positionner par rapport à la surface réelle de la Terre. La donnée de l'ellipsoïde et des paramètres de positionnement constituent ce qu'on appelle un "datum géodésique" à partir duquel pourra être appliquée une projection.

Un datum ou système géodésique est donc défini par :

- la donnée de l'ellipsoïde ;
- la position du centre de l'ellipsoïde par rapport au centre de masse de la Terre ;
- l'orientation des axes de l'ellipsoïde ;



Parmi les ellipsoïdes globaux usuels, on peut notamment citer celui associé au World Geodesic System of 1984 (WGS 84), et dont on confond souvent le nom avec son système géodésique. En effet, avec l'avènement du GPS, le système géodésique WGS 84, qui décrit la terre par un ellipsoïde de révolution d'axe Nord-Sud, de rayon à l'équateur  $a = 6378,137$  km (demi grand axe) et d'excentricité  $e = 0,0818192$ , a été mis au point à l'échelle mondiale.

## E.2 Les systèmes de coordonnées

La localisation dans l'espace d'un point peut être exprimée de différentes manières :

### E.2.1 Coordonnées cartésiennes

Afin de localiser mathématiquement un objet dans l'espace, à la surface de la Terre, de manière univoque, il faut définir un système de référence géodésique. Ce système de référence géodésique est avant tout un repère affine dont le centre est proche du centre de masse de la Terre, ses deux premiers axes sont dans le plan de l'équateur et le troisième est proche de l'axe de rotation des pôles.

Il est ainsi possible, dans ce repère, d'obtenir la localisation spatiale de n'importe quel point, mais est rarement utilisé sous cette forme. Ce système de coordonnées est, en fait, principalement utilisé en tant qu'intermédiaire pour les changements de système.

### E.2.2 Coordonnées géographiques

Toute mesure de position sur la Terre peut aussi se faire à l'aide de deux valeurs angulaires : la longitude et la latitude. Contrairement à la latitude (position nord-sud) qui s'appuie sur l'équateur et les pôles comme références, il n'existe pas de référence universelle pour la longitude. Il est donc nécessaire de fixer cette référence (appelé méridien de référence) pour cette dernière.

La troisième dimension est apportée par une "hauteur ellipsoïdale", i.e., la hauteur du point au dessus du géoïde (en pratique l'ellipsoïde) selon la verticale locale.

Il est donc nécessaire dans ce système de coordonnées (dit géodésique par ellipsoïde) d'associer une information sur le datum géodésique utilisé, ainsi que le méridien de référence notamment.

### E.2.3 Coordonnées cartographiques ou planes

Il existe une dernière représentation des coordonnées : les coordonnées cartographiques. Ce système de coordonnées projetées est intimement lié à la carte et donc la projection utilisée.

Les coordonnées associées à la surface plane issue de la projection cartographique sont des coordonnées cartésiennes bidimensionnelles : E (Easting) pour l'abscisse et N (Northing) pour l'ordonnée.

## E.3 La projection cartographique

La projection cartographique est donc le processus qui consiste à représenter sur une surface plane (bidimensionnelle) tout ou partie de la surface (tridimensionnelle) de la Terre. Mais l'ellipsoïde est une surface non développable, i.e., une surface que l'on ne peut pas mettre à plat sans modifier certaines propriétés (superficie, forme, distance, angle...).

Parmi les surfaces développables usuelles, on retrouve :

- les surfaces cylindriques ;

- les surfaces coniques ;
- les surfaces planes (on parle alors de projection azimutale) ;

En plus de la nature de la surface de projection, la projection est définie par la direction de l'axe de projection (directe, transversale ou oblique), ainsi que par la nature du contact (sécant ou tangent).

Il existe ainsi un certain nombre de projections qui conservent certaines propriétés (mais pas toutes), du moins localement.

Les trois principaux types de projection sont :

- les projections conformes, qui conservent les angles ;
- les projections équivalentes, qui préservent les surfaces (dite equal-area en anglais) ;
- les projections aphyllactiques, qui ne sont ni équivalentes, ni conformes. Elles peuvent néanmoins être équidistante.

## Annexe F

**Catégories de la base de données  
CLC 2006 correspondant aux  
terres arables.**

Tableau F.1 – Ensemble des catégories de la base de données CLC 2006 utilisées pour les clés de répartition du secteur agricole.

| Nom de la catégorie   | Description   |
|---|---|
| 21. Terres arables  |   |
| 211. Terres arables hors périmètres d'irrigation  | Céréales, légumineuses de plein champ, cultures fourragères, plantes sarclées et jachères. Y compris les cultures florales, forestières (pépinières) et légumières (maraîchage) de plein champ, sous serre et sous plastique, ainsi que les plantes médicinales, aromatiques et condimentaires. Non compris les prairies. |
| 212. Périmètres irrigués en permanence  | Cultures irriguées en permanence ou périodiquement, grâce à une infrastructure permanente (canal d'irrigation). Une grande partie de ces cultures ne pourrait pas être cultivée sans l'apport artificiel d'eau. Non compris les surfaces irriguées occasionnellement.   |
| 213. Rizières   | Surfaces aménagées pour la culture du riz. Terrains plats avec canaux d'irrigation. Surfaces régulièrement recouvertes d'eau.   |
| 22. Cultures permanentes  |   |
| 221. Vignobles  | Surfaces plantées de vignes.  |
| 222. Vergers et petits fruits   | Parcelles plantées d'arbres fruitiers ou d'arbustes fruitiers : cultures pures ou mélanges d'espèces fruitières, arbres fruitiers en association avec des surfaces toujours en herbe. Y compris les châtaigneraies et les noiseraies.   |
| 223. Oliveraies   | Surfaces plantées d'oliviers, y compris oliviers et vignes sur la même parcelle.  |
| 4. Zones agricoles hétérogènes  |   |
| 241. Cultures annuelles associées aux cultures permanentes                                | Cultures temporaires (terres arables ou prairies) en association avec des cultures permanentes sur les mêmes parcelles.   |
| 242. Systèmes culturaux et parcellaires complexes   | Juxtaposition de petites parcelles de cultures annuelles diversifiées, de prairies et / ou de cultures permanentes complexes.   |
| 243. Surfaces essentiellement agricoles, interrompues par des espaces naturels importants | Surfaces essentiellement agricoles, interrompues par de la végétation naturelle.  |
| 244. Territoires agro-forestiers  | Cultures annuelles ou pâturages sous couvert arboré composé d'espèces forestières.  |

## Annexe G

# Dry deposition flux for particles

For particles, the sedimentation velocity must be added to the mass transfer by diffusion. Therefore, the particle mass flux is expressed as follows :

$$F^c = (D + K_t^c) \frac{\partial c}{\partial z} + v_s c \quad (\text{G.1})$$

where  $v_s$  is the gravitationnal settling velocity.

The turbulent mass flux through the canyon surface for particles can be formulated as follows, under the same hypothesis as for gases :

$$F_{\text{canyon}}^c = v_s \frac{c(z_{\text{ref}}) - c(z_{\text{canyon}}) \exp(-v_s R_{a,\text{canyon}})}{1 - \exp(-v_s R_{a,\text{canyon}})} \quad (\text{G.2})$$

Likewise, for a street surface, the mass flux formulation for particles can be expressed as follows :

$$F_{\text{street}}^c = \frac{v_s c(z_{\text{canyon}})}{1 - \exp(-v_s R_{\text{total,street}})} \quad (\text{G.3})$$

For a wall surface, since gravitationnal settling is not relevant for mass transfer to vertical walls,  $F_{\text{wall}}^c$  can be expressed with the same equation as that for gases (Equation (4.23)).

$$c(z_{\text{canyon}}) = \frac{c(z_{\text{ref}})}{\frac{W_{\text{wall}}}{W_{\text{canyon}}} \frac{1 - \exp(-v_s R_{a,\text{canyon}})}{v_s R_{\text{total,wall}}} + \frac{W_{\text{street}}}{W_{\text{canyon}}} \frac{1 - \exp(-v_s R_{a,\text{canyon}})}{1 - \exp(-v_s R_{\text{total,street}})} + \exp(-v_s R_{a,\text{canyon}})} \quad (\text{G.4})$$

# Bibliographie

- ARYA, S. P. (1988). *Introduction to micrometeorology*. Academic Press. ISBN 9780120644902.
- ATLAS, D. (1953). Optical extinction by rainfall. *Journal of Meteorology*, pages 486–488.
- BALDOCCHI, D., FINNIGAN, J., WILSON, K., FALGE, E. *et al.* (2000). On measuring net ecosystem carbon exchange over tall vegetation on complex terrain. *Boundary-Layer Meteorology*, 96(1-2):257–291.
- BELL, M. L. et DAVIS, D. L. (2001). Reassessment of the lethal london fog of 1952 : novel indicators of acute and chronic consequences of acute exposure to air pollution. *Environmental health perspectives*, 109(Suppl 3):389.
- BOUSSINESQ, J. (1877). *Essai sur la théorie des eaux courantes*, volume 2. Imprimerie nationale.
- BROWN, J., ANDERSSON, K. G., JONES, J., MECKBACH, R., MÜLLER, H. et ROED, J. (2006). Requirements of future models for inhabited areas. *Journal of environmental radioactivity*, 85(2):344–360.
- BROWN, M. J. (2000). Urban parameterizations for mesoscale meteorological models. *Mesoscale Atmospheric Dispersion*, pages 193–255.
- BUSINGER, J. A. (1986). Evaluation of the accuracy with which dry deposition can be measured with current micrometeorological techniques. *Journal of climate and applied meteorology*, 25:1100–1124.
- BUSINGER, J. A., WYNGAARD, J. C., IZUMI, Y. et BRADLEY, E. F. (1971). Flux-profile relationships in the atmospheric surface layer. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 28(2):181–189.
- CASTRO, I. P. et ROBINS, A. G. (1977). The flow around a surface-mounted cube in uniform and turbulent streams. *Journal of Fluid Mechanics*, 79(02):307–335.
- CEE - NU (1998). Protocole à la convention sur la pollution atmosphérique transfrontalière à longue distance, de 1979, relatif aux métaux lourds.
- CEE - NU (2009). Directives pour la communication des données d'émission au titre de la convention sur la pollution atmosphérique transfrontière à longue distance.
- CHERIN, N., ROUSTAN, Y., MUSSON-GENON, L. et SEIGNEUR, C. (2015). Modelling atmospheric dry deposition in urban areas using an urban canopy approach. *Geoscientific Model Development*, 8(3):893–910.
- CIONCO, R. (1965). Mathematical model for air flow in a vegetative canopy. *Journal of Applied Meteorology*, 4:517–522.

- CIONCO, R. M. (1972). A wind-profile index for canopy flow. *Boundary-Layer Meteorology*, 3:255–263.
- CITEPA (2012). Organisation et méthodes des inventaires nationaux des émissions atmosphériques en France (ominea). Rapport technique, CITEPA.
- COCEAL, O. et BELCHER, S. E. (2004). A canopy model of mean winds through urban areas. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 130:1349–1372.
- DE MEIJ, A. et VINUESA, J. (2014). Impact of srtm and corine land cover data on meteorological parameters using wrf. *Atmospheric Research*, 143:351–370.
- DYER, A. J. et HICKS, B. B. (1970). Flux-gradient relationships in the constant flux layer. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 96(410):715–721.
- E., I. (1963). On the turbulent structure of airflow within crop canopies. *J. Meteor. Soc. Japan*, 41:317–326.
- EMEP (2013). EMEP/EEA air pollutant emission inventory guidebook – 2013. Rapport technique, EMEP.
- FALLAH SHORSHANI, M., BONHOMME, C., PETRUCCI, G., ANDRÉ, M. et SEIGNEUR, C. (2014). Road traffic impact on urban water quality : a step towards integrated traffic, air and storm-water modelling. *Environmental Science and Pollution Research*, 21(8):5297–5310.
- FEIGENWINTER, C., VOGT, R. et PARLOW, E. (1999). Vertical structure of selected turbulence characteristics above an urban canopy. *Theoretical and Applied Climatology*, 62:51–63. 10.1007/s007040050074.
- FONTELLE, J.-P. (2005). Méthodes de quantification des émissions dans l’air. Rapport technique, Techniques de l’Ingénieur - CITEPA.
- FOWLER, D., PILEGAARD, K., SUTTON, M., AMBUS, P., RAIVONEN, M., DUYZER, J., SIMPSON, D., FAGERLI, H., FUZZI, S., SCHJØRRING, J. K. *et al.* (2009). Atmospheric composition change : ecosystems–atmosphere interactions. *Atmospheric Environment*, 43(33):5193–5267.
- FRIEDRICH, R., THELOKE, J., KÜHLWEIN, J. et REIS, S. (2004). *Emissions of Air Pollutants. Measurements, Calculations and Uncertainties*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg. ISBN 978-3-540-00840-8.
- GREGORY, P. (1945). The dispersion of air-borne spores. *Transactions of the British Mycological Society*, 28:26–72.
- GRIMMOND, C. et OKE, T. R. (1999). Aerodynamic properties of urban areas derived from analysis of surface form. *Journal of applied meteorology*, 38(9):1262–1292.
- HAMDI, R. et SCHAYES, G. (2007). Poster 3 improving the Martilli’s urban boundary layer scheme : Off-line validation over different urban surfaces. In BORREGO, C. et RENNER, E., éditeurs : *Air Pollution Modeling and Its Application XVIII*, volume 6 de *Developments in Environmental Science*, pages 737 – 739. Elsevier.
- HARMAN, I. N., BARLOW, J. F. et BELCHER, S. E. (2004). Scalar fluxes from urban street canyons part ii : Model. *Boundary-Layer Meteorology*, 113:387–410.

- INERIS (2003–2010). Fiches de données toxicologiques et environnementales des substances chimiques. <http://www.ineris.fr/fr/rapports-d%C3%A9tude/toxicologie-et-environnement/fiches-de-donn%C3%A9es-toxicologiques-et-environnementales->.
- JO DE L'UNION EUROPÉENNE (2008). Directive 2008/50/ce du parlement européen et du conseil du 21 mai 2008 concernant la qualité de l'air ambiant et un air pur pour l'europe.
- JOINT MSC-E & CCC & CEIP REPORT (2013). Long-term changes of heavy metal trans-boundary pollution of the environment (1990-2010). Rapport technique, EMEP.
- JONSSON, L., KARLSSON, E. et JÖNSSON, P. (2008). Aspects of particulate dry deposition in the urban environment. *Journal of hazardous materials*, 153(1):229–243.
- KORCZ, M., FUDAŁA, J. et KLIŚ, C. (2009). Estimation of wind blown dust emissions in europe and its vicinity. *Atmospheric Environment*, 43(7):1410–1420.
- LEMONSU, A., GRIMMOND, C. S. B. et MASSON, V. (2004). Modeling the surface energy balance of the core of an old mediterranean city : Marseille. *Journal of Applied Meteorology*, 43:312–327.
- LOUIS, J.-F. (1979). A parametric model of vertical eddy fluxes in the atmosphere. *Boundary-Layer Meteorology*, 17(2):187–202.
- MACDONALD, R., GRIFFITHS, R. et HALL, D. (1998). An improved method for the estimation of surface roughness of obstacle arrays. *Atmospheric Environment*, 32:1857–1864.
- MACDONALD, R. W. (2000). Modelling the mean velocity profile in the urban canopy layer. *Boundary-Layer Meteorology*, 97:25–45.
- MALLET, V., QUÉLO, D., SPORTISSE, B., Ahmed de BIASI, M., DEBRY, E., KORSAKISSOK, I., WU, L., ROUSTAN, Y., SARTELET, K., TOMBETTE, M. et FOU DHIL, H. (2007). Technical note : The air quality modeling system polyphemus. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7(20):5479–5487.
- MARO, D. (2012). Transfert des radionucléides sous forme de gaz et d'aérosols dans les environnements complexes : études expérimentales de dispersion atmosphérique et d'échanges aux interfaces. Rapport technique, IRSN.
- MARTINE, G. (2011). Preparing for sustainable urban growth in developing areas. *Population Distribution, Urbanization, Internal Migration and Development : An International Perspective*, pages 6–30.
- MASSON, V. (2000). A physically-based scheme for the urban energy budget in atmospheric models. *Boundary-Layer Meteorology*, 94:357–397.
- MASSON, V. (2006). Urban surface modeling and the meso-scale impact of cities. *Theoretical and Applied Climatology*, 84:35–45. 10.1007/s00704-005-0142-3.
- MENCH, M. et BAIZE, D. (2004). Contamination des sols et de nos aliments d'origine végétale par les éléments en traces. mesures pour réduire l'exposition. *Courrier de l'Environnement de l'INRA*, 52:31–56.
- NRIAGU, J. O. (1989). A global assessment of natural sources of atmospheric trace metals. *Nature*, 338(6210):47–49.



- NUNEZ, M. et OKE, T. R. (1977). Energy balance of an urban canyon. *American Meteorological Society*, 16:11–19.
- OKAMOTO, S., NAKASO, K. et KAWAI, I. (1993). Effect of rows of two-dimensional square ribs on flow property along plane wall. *JSME international journal. Series B : Fluids and thermal engineering*, 36:121–129.
- OKE, T. (1988). The urban energy balance. *Progress in Physical Geography*, 12:471–508.
- OLESON, K. W., BONAN, G. B., FEDDEMA, J., VERTENSTEIN, M. et GRIMMOND, C. S. B. (2008). An urban parameterization for a global climate model. part i : Formulation and evaluation for two cities. *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 47:1038–1060. 10.1175/2007JAMC1597.1.
- OMS (2005). Air quality guidelines global update 2005. particulate matter, ozone, nitrogen dioxide and sulfur dioxide.
- OMS (2011). Relever le défi mondial de la pollution atmosphérique - communiqué de presse. [http://www.who.int/mediacentre/news/releases/2011/air\\_pollution\\_20110926/fr/](http://www.who.int/mediacentre/news/releases/2011/air_pollution_20110926/fr/).
- OMS (2014). Qualité de l'air ambiant (extérieur) et santé - aide-mémoire n°313. <http://www.who.int/mediacentre/factsheets/fs313/fr/>.
- PACZYNA, J., PACZYNA, E. et AAS, W. (2009). Changes of emissions and atmospheric deposition of mercury, lead and cadmium. *Atmospheric Environment*, 43:117–127.
- PAODE, R. D., SOFUOGLU, S. C., SIVADECHATHEP, J., NOLL, K. E., HOLSEN, T. M. et KEELER, G. J. (1998). Dry deposition fluxes and mass size distributions of pb, cu, and zn measured in southern lake michigan during aeolos. *Environmental Science and Technology*, 32(11):1629–1635.
- 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, ÉCOLE CENTRALE DE NANTES.
- PETROFF, A. (2005). *Etude mécaniste de dépôt sec d'aérosols sur les couverts végétaux*. Thèse de doctorat, Université de la Méditerranée Aix-Marseille II.
- PETROFF, A., MAILLIAT, A., AMIELH, M. et ANSELMET, F. (2008). Aerosol dry deposition on vegetative canopies. part ii : A new modelling approach and applications. *Atmospheric Environment*, 42(16):3654 – 3683.
- POPE, S. B. (2000). *Turbulent flows*. Cambridge university press.
- PRANDTL, L. (1925). Report on investigation of developed turbulence. *NACA Report TM-1231*.
- RABL, A. (1999). Air pollution and buildings : An estimation of damage costs in france. *Environmental Impact Assessment Review*, 19(4):361 – 385.
- RASMUSSEN, P. (1998). Long-range atmospheric transport of trace metals : the need for geoscience perspectives. *Environmental Geology*, 33:96–108.
- RAUPACH, M. (1989). A practical lagrangian method for relating scalar concentrations to source distributions in vegetation canopies. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 115(487):609–632.

- RAUPACH, M. R., FINNIGAN, J. J. et BRUNEI, Y. (1996). Coherent eddies and turbulence in vegetation canopies : The mixing-layer analogy. *Boundary-Layer Meteorology*, 78:351–382.
- ROSELLE, S. et BINKOWSKI, F. (1999). *Cloud dynamics and chemistry*, chapitre 11. Environmental Protection Agency.
- ROTACH, M. W. (1993). Turbulence close to a rough urban surface part ii : Variances and gradients. *Boundary-Layer Meteorology*, 66:75–92. 10.1007/BF00705460.
- ROTACH, M. W. (1995). Profiles of turbulence statistics in and above an urban street canyon. *Atmospheric Environment*, 29:1473–1486.
- ROTACH, M. W. (1999). On the influence of the urban roughness sublayer on turbulence and dispersion. *Atmospheric Environment*, 33(24):4001–4008.
- ROUPSARD, P. (2013). *Etude phénoménologique du dépôt sec d'aérosols en milieu urbain : Influence des propriétés des surfaces, de la turbulence et des conditions météorologiques*. Thèse de doctorat, Rouen, INSA.
- ROUPSARD, P., AMIELH, M., MARO, D., COPPALLE, A., BRANGER, H., CONNAN, O., LAGUIONIE, P., HÉBERT, D. et TALBAUT, M. (2013). Measurement in a wind tunnel of dry deposition velocities of submicron aerosol with associated turbulence onto rough and smooth urban surfaces. *Journal of Aerosol Science*, 55(0):12 – 24.
- ROUSTAN, Y. (2005). *Modélisation de la dispersion atmosphérique du mercure, du plomb et du cadmium à l'échelle européenne*. Thèse de doctorat, Ecole Nationale des Ponts et Chaussées.
- RUIJGROK, W., TIEBEN, H. et EISINGA, P. (1997). The dry deposition of particles to a forest canopy : a comparison of model and experimental results. *Atmospheric Environment*, 31(3): 399–415.
- SAKATA, M. et MARUMOTO, K. (2004). Dry deposition fluxes and deposition velocities of trace metals in the tokyo metropolitan area measured with a water surface sampler. *Environmental Science and Technology*, 38(7):2190–2197. PMID : 15112824.
- SEINFELD, J. et PANDIS, S. (1998a). *Atmospheric Chemistry and Physics : from air pollution to climate change*. John Wiley and Sons, Inc., Somerset, NJ.
- SEINFELD, J. et PANDIS, S. (1998b). *Atmospheric Chemistry and Physics : from air pollution to climate change*. John Wiley and Sons, Inc., Somerset, NJ.
- SHAHIN, U., YI, S.-M., PAODE, R. D. et HOLSEN, T. M. (2000). Long-term elemental dry deposition fluxes measured around lake michigan with an automated dry deposition sampler. *Environmental Science and Technology*, 34(10):1887–1892.
- SHEPHERD, J. M. (2005). A review of current investigations of urban-induced rainfall and recommendations for the future. *Earth Interactions*, 9:1–27. 10.1175/EI156.1.
- SINI, J.-F., ANQUETIN, S. et MESTAYER, P. G. (1996). Pollutant dispersion and thermal effects in urban street canyons. *Atmospheric Environment*, 30(15):2659 – 2677.
- SKAMAROCK, W., KLEMP, J. et DUDHIA, J. (2001). Prototypes for the wrf (weather research and forecasting) model. In *Preprints, Ninth Conference on Mesoscale Processes*.

- SLINN, W. (1982). Predictions for particle deposition to vegetative canopies. *Atmospheric Environment (1967)*, 16:1785–1794.
- SLINN, W. G. N. (1983). *Atmospheric Sciences and Power Production-1979*, chapitre 11 - Precipitation scavenging. US Department of Energy.
- SOFUOGLU, S. C., PAODE, R. D., SIVADECHATHEP, J., NOLL, K. E., HOLSEN, T. M. et KEELER, G. J. (1998). Dry deposition fluxes and atmospheric size distributions of mass, al, and mg measured in southern lake michigan during aeolos. *Aerosol Science and Technology*, 29(4):281–293.
- SOLAZZO, E., BIANCONI, R., PIROVANO, G., MORAN, M., VAUTARD, R., HOGREFE, C., APPEL, K., MATTHIAS, V., GROSSI, P., BESSAGNET, B. *et al.* (2013). Evaluating the capability of regional-scale air quality models to capture the vertical distribution of pollutants. *Geoscientific Model Development*.
- STULL, R. B. et HASEGAWA, T. (1984). Transilient turbulence theory. part ii : Turbulent adjustment. *Journal of the atmospheric sciences*, 41(23):3368–3379.
- SÄUMEL, I., KOTSYUK, I., HÖLSCHER, M., LENKEREIT, C., WEBER, F. et KOWARIK, I. (2012). How healthy is urban horticulture in high traffic areas ? trace metal concentrations in vegetable crops from plantings within inner city neighbourhoods in berlin, germany. *Environmental Pollution*, 165(0):124 – 132. Chemicals Management and Environmental Assessment of Chemicals in China.
- TOMINAGA, Y. et STATHOPOULOS, T. (2007). Turbulent schmidt numbers for cfd analysis with various types of flowfield. *Atmospheric Environment*, 41(37):8091 – 8099.
- UNDERWOOD, B. (1987). Dry deposition to an urban complex. *Radiation Protection Dosimetry*, 21(1-3):21–32.
- VAN LOON, M., VAUTARD, R., SCHAAP, M., BERGSTRÖM, R., BESSAGNET, B., BRANDT, J., BUILTJES, P., CHRISTENSEN, J., CUVELIER, C., GRAFF, A. *et al.* (2007). Evaluation of long-term ozone simulations from seven regional air quality models and their ensemble. *Atmospheric Environment*, 41(10):2083–2097.
- VENKATRAM, A. et PLEIM, J. (1999). The electrical analogy does not apply to modeling dry deposition of particles. *Atmospheric Environment*, 33:3075–3076.
- WESELY, M. L. et HICKS, B. B. (2000). A review of the current status of knowledge on dry deposition. *Atmospheric environment*, 34(12):2261–2282.
- YANG, J., YU, Q. et GONG, P. (2008). Quantifying air pollution removal by green roofs in chicago. *Atmospheric Environment*, 42(31):7266 – 7273.
- YI, S.-M., SHAHIN, U., SIVADECHATHEP, J., SOFUOGLU, S. C. et HOLSEN, T. M. (2001). Overall elemental dry deposition velocities measured around lake michigan. *Atmospheric Environment*, 35(6):1133 – 1140.
- ZHANG, L., GONG, S., PADRO, J. et BARRIE, L. (2001). A size-segregated particle dry deposition scheme for an atmospheric aerosol module. *Atmospheric Environment*, 35:549–560.