

Évaluations des sources primaires et des flux annuels de métaux et de HAP à l'échelle de bassins versants urbains

■ G. PETRUCCI^{1,2}, M.-C. GROMAIRE², A. HANNOUCHE², G. CHEBBO²

Mots-clés : eaux pluviales, flux, sources, SFA, métaux, HAP

Keywords: stormwater, flux, sources, SFA, metals, PAH

Introduction

La pollution diffuse transportée par le ruissellement pluvial urbain est considérée depuis plusieurs décennies comme une cause importante de dégradation des milieux aquatiques et des écosystèmes. L'évolution des réglementations sur les micropolluants produit un intérêt croissant pour ce type de pollution de l'eau, et des analyses des sources et des flux de polluants se sont récemment répandues, souvent rassemblées sous le terme d'« analyse des flux de matière » (*Substance Flow Analysis*, ou SFA, [HANSEN et LASSEN, 2002 ; BRUNNER et RECHBERGER, 2004]). Tandis que les mesures directes à l'exutoire des bassins versants urbanisés peuvent renseigner les chercheurs et les gestionnaires sur les flux de polluants acheminés vers l'environnement, les SFA peuvent fournir, en complément, une vision plus claire du poids relatif de chaque source [DAVIS *et al.*, 2001 ; BJÖRKLUND, 2010 ; CHÈVRE *et al.*, 2011] et ainsi orienter les actions préventives ou curatives.

L'information fournie par les SFA sur la pollution diffuse a été principalement utilisée, jusqu'à présent, pour analyser des bassins versants spécifiques afin d'orienter l'élaboration de politiques et la recherche. Dans la plupart des études existantes, en effet, les SFA sont réalisées sur un bassin versant unique pour identifier les sources prioritaires de pollution et des me-

sures de mitigation potentielles. Un autre usage possible des SFA est de comparer différents sites, en reliant les caractéristiques des bassins versants à des « signatures » spécifiques de pollution diffuse. L'objectif est alors d'étudier si et comment l'usage des sols et les activités anthropiques dans un bassin déterminent les flux de polluants sortants. Ce type d'application peut contribuer à expliquer la grande variabilité des émissions polluantes dans le ruissellement urbain, une question majeure de la recherche sur les impacts de la ville sur son environnement [SMULLEN *et al.*, 1999 ; GASPERI *et al.*, 2014].

Cet article présente l'application d'une analyse SFA aux trois bassins versants étudiés dans le cadre du projet INOGEV (Innovation pour une gestion durable de l'eau en ville), pour l'identification des sources primaires de quatre contaminants : Cu, Pb, Zn et hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP). Les différences entre les bassins permettent d'apprécier le rôle de leurs caractéristiques sur les émissions de ces polluants, et une analyse étendue des incertitudes associées aux estimations permet d'identifier les sources pour lesquelles des efforts de recherche supplémentaires sont requis. La comparaison avec des estimations des flux à l'exutoire du réseau d'assainissement pluvial de chaque bassin versant, réalisées aussi dans le cadre d'INOGEV, permet de mettre en perspective les résultats de l'analyse SFA et de formuler des hypothèses sur les processus d'accumulation des polluants dans les réseaux d'assainissement.

¹ Prolog Ingénierie – 3-5, rue de Metz – 75010 Paris.

² Université Paris-Est – LEESU – UMR-MA 102 – AgroParisTech – 6-8, avenue Blaise-Pascal – Cité Descartes – 77455 Champs-sur-Marne.

1. Méthodologie

1.1. Quantification des sources

La procédure générale suivie dans les SFA consiste en une décomposition progressive du problème global (l'estimation du flux à l'échelle du bassin) dans des quantifications plus simples. La première étape est un bilan de masse [HANSEN et LASSEN, 2002] : l'émission totale pour un polluant donné est la somme des émissions de l'ensemble des sources. Après avoir identifié les sources potentielles (trafic routier, lessivage des matériaux de toiture), l'estimation de la contribution de chacune peut être décomposée dans le produit entre une « étendue » (e.g. volume de trafic, surface totale de toiture en zinc) et un « facteur d'émission » (e.g. les émissions de Cu par véhicule et par km dues à l'usure des plaquettes de frein) et, éventuellement, par un « facteur d'efficacité » (e.g. la fraction des produits de l'usure des plaquettes de frein qui se dépose au sol). Si certains de ces facteurs ne peuvent être quantifiés directement, une décomposition ultérieure peut être nécessaire : le trafic total sur le bassin peut être estimé par la somme du trafic sur chaque segment routier, et les émissions dues à l'usure des freins peuvent être calculées comme le produit de l'usure spécifique par la concentration des polluants dans la composition

des plaquettes. À l'issue de ce processus de décomposition, l'estimation du flux global de polluant est réduite à une série de paramètres élémentaires pouvant être estimés directement à partir de mesures, de données bibliographiques ou du jugement d'experts.

Le schéma du système de sources considéré dans cette étude est présenté en figure 1. L'objectif est de quantifier le flux annuel entrant dans le compartiment « ruissellement ». S'agissant d'une estimation annuelle, il est possible de faire l'hypothèse qu'il n'y a pas d'accumulation nette de pollution sur les surfaces urbaines d'une année à l'autre : la conséquence est que tous les flux entrant dans le compartiment « dépôt sur les surfaces urbaines » sont transférés au « ruissellement », et que les dépôts atmosphériques (secs et humides) peuvent être estimés conjointement. La mesure des données à l'exutoire qui complète cette étude quantifie les flux entrant dans le compartiment « exutoire ». Les différences entre les deux estimations (SFA et exutoire) sont donc imputables aux processus d'accumulation/émission se déroulant dans le réseau d'assainissement.

La procédure et les données utilisées dans l'analyse des sources sont décrites en détail, pour l'application au bassin versant de Sucy-en-Brie, dans l'article PETRUCCI et coll. [2014]. Les facteurs d'émission et

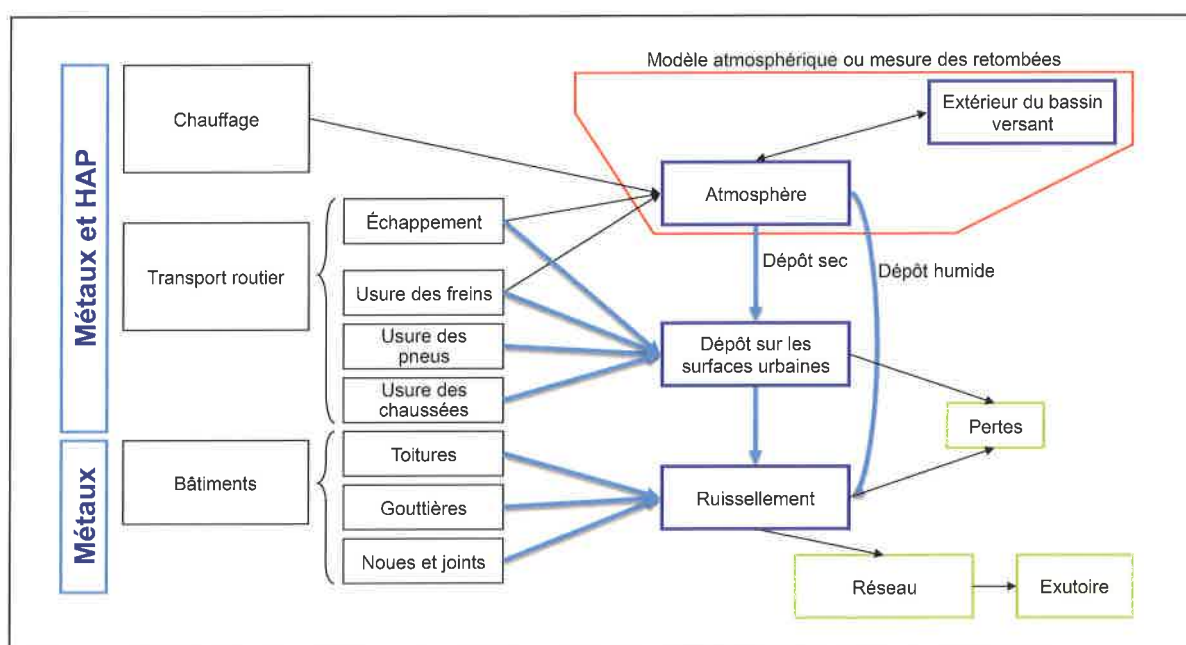


Figure 1. Schéma du système considéré dans l'analyse. Les flèches bleues représentent les flux estimés. Les termes « noues » et « joints » font référence aux éléments singuliers des toitures

d'efficacité sont extraits de la littérature scientifique (pour une revue bibliographique complète, nous renvoyons le lecteur à l'article cité ou aux rapports du projet INOGEV). Les estimations de trafic routier dans les trois bassins intègrent des mesures disponibles pour les axes majeurs et des estimations, sur la base de valeurs standard, pour les autres [WG-AEN, 2006]. Pour les éléments métalliques dans les toitures (couverture, éléments linéaires et singuliers), les facteurs d'émission sont basés sur des mesures réalisées par ROBERT-SAINTÉ et coll. [2009]. L'étendue des couvertures métalliques sur les trois bassins est estimée à partir d'ortho-images pour Sucy et basée sur des études précédentes pour les autres bassins [LAMPREA, 2009 ; BECOUZE-LAREURE, 2010]. Les mêmes études fournissent des mesures du dépôt atmosphérique sur les bassins du Pin Sec et de Chassieu, alors que pour Sucy sont utilisées des mesures réalisées par GASPERI et coll. [2014]. Pour le calcul des flux de polluants vers le ruissellement à partir du dépôt atmosphérique, seules les surfaces imperméables sont prises en compte.

Des recherches précédentes [GROMAIRE-MERTZ *et al.*, 1999] suggèrent qu'une contribution importante à la pollution métallique diffuse est due aux éléments métalliques des toitures : gouttières et descentes (éléments linéaires), bandes d'étanchéité et noues (éléments singuliers). Cependant, leur contribution est peu étudiée à l'échelle des bassins versants, étant donné la difficulté d'identifier ces éléments dans des ortho-images ou *via* d'autres techniques applicables à grande échelle. Pour cette raison, une analyse détaillée basée sur un échantillon de bâtiments a été réalisée, sur le seul bassin versant de Sucy. L'analyse consiste dans la sélection aléatoire d'un échantillon de bâtiments ($n = 88$, correspondant à 4 % de la population statistique). Pour ces bâtiments, une visite a permis de réaliser une identification visuelle des éléments linéaires et singuliers (figure 2). Cette identification inclut aussi une classification des matériaux et une estimation de la surface pour chaque élément observé. À partir de l'échantillon, une extrapolation statistique peut être réalisée pour l'ensemble des bâtiments du bassin versant. Cette procédure nécessite que presque toutes les toitures soient au moins partiellement visibles de la rue : cela est



Figure 2. Exemple de toiture présentant des éléments en PVC et plomb

possible à Sucy (principalement habitat pavillonnaire), mais ne l'est pas à Chassieu (industriel) et à Pin Sec (bâtiments résidentiels élevés). D'autres méthodes de quantification doivent être développées pour permettre l'analyse des éléments de toiture dans un spectre plus large de conditions.

1.2. Analyse de l'incertitude

L'incertitude dans la quantification des sources de polluants peut être très élevée. Les estimations et les mesures peuvent couvrir plusieurs ordres de grandeur [MÅNSSON *et al.*, 2008 ; MORF *et al.*, 2008]. Cependant, quand plusieurs sources sont agrégées sur des bassins versants suffisamment grands, les incertitudes peuvent se compenser [BENEDETTI *et al.*, 2006]. Cet effet est dû à l'effet moyen de nombreux processus individuels et locaux : si les émissions d'une voiture donnée sur un trajet donné peuvent être très variables (et dépendre de la température, des conditions de conduite, etc.), les émissions totales de milliers de véhicules sur des milliers de trajets sont extrêmement plus stables et prévisibles.

En raison de la difficulté dans l'estimation des incertitudes, de nombreuses SFA ont recours à une estimation globale basée sur des hypothèses simples : toutes les sources ont la même variabilité ou la même distribution avec le même écart type [TANGSUBKUL *et al.*, 2005 ; CHÈVRE *et al.*, 2011]. Cette approche a deux inconvénients principaux. Le premier est que seulement une partie de l'information générée pendant l'analyse est utilisée : pendant l'estimation de tous les paramètres élémentaires, de nombreuses

informations qualitatives et quantitatives sur leurs incertitudes sont produites. Si l'incertitude est estimée globalement pour les valeurs agrégées, toutes ces informations supplémentaires sont perdues. Le second est que toute estimation basée sur le jugement de l'analyste devrait être transparente et reproductible. Si le jugement n'intervient qu'à l'issue d'une analyse complexe et agrégée, transparence et reproductibilité ne peuvent être garanties.

Pour résoudre, au moins partiellement, ces inconvénients, il est possible de décomposer l'estimation de l'incertitude dans une série d'estimations plus simples. Au lieu d'estimer directement l'incertitude des émissions liées au trafic, l'estimation peut être faite sur l'incertitude associée aux émissions d'un véhicule individuel et de celle du volume total de trafic. Ensuite, les deux incertitudes peuvent être combinées. Cette procédure est équivalente à celle utilisée pour l'estimation des flux, et peut être réalisée en parallèle : pour chaque paramètre élémentaire utilisé dans la SFA, l'incertitude associée est systématiquement estimée. Quand les paramètres sont combinés pour fournir les émissions globales, l'incertitude est propagée jusqu'au résultat final par des méthodes classiques comme la linéarisation [TANGSUBKUL et al., 2005 ; JCGM, 2008]. Pour une fonction $f(x,y)$ des paramètres élémentaires x et y ,

$$\sigma_f^2 \approx \left| \frac{\partial f}{\partial x} \right|^2 \sigma_x^2 + \left| \frac{\partial f}{\partial y} \right|^2 \sigma_y^2 + 2 \frac{\partial f}{\partial x} \frac{\partial f}{\partial y} \text{cov}_{xy} \quad [\text{Équation 1}]$$

La différence principale entre cette procédure et les méthodes appliquées généralement dans les SFA est que l'incertitude est quantifiée systématiquement à chaque petit pas de l'analyse, au lieu d'être estimée globalement sur les valeurs agrégées. Cette procédure, illustrée en détail dans PETRUCCI et coll. [2014], ne résout pas toutes les difficultés de l'estimation de l'incertitude des analyses SFA, mais permet de les réduire et de garantir que l'analyse soit transparente et reproductible.

1.3. Évaluation des flux à l'exutoire des bassins versants

La masse annuelle M_{Pol} d'un polluant transportée à l'exutoire du réseau d'assainissement pluvial d'un

bassin versant, durant une année donnée, peut être estimée par la somme des masses événementielles M_{j-Pol} de tous les événements pluvieux (j indice événement, $1 \leq j \leq N_{\text{év}}$) pour lesquels des mesures de débit Q_{ji} et de la concentration du polluant C_{ij-Pol} sont disponibles pour chaque pas de temps Δt_{ji} (i indice du pas de temps : $1 \leq i \leq n_j$) :

$$M_{Pol} = \sum_{j=1}^{N_{\text{év}}} M_{j-Pol} \quad [\text{Équation 2}],$$

$$\text{ou } M_{Pol} \approx \sum_{j=1}^{N_{\text{év}}} \sum_{i=1}^{n_j} C_{ij-Pol} \times Q_{ji} \times \Delta t_{ji} \quad [\text{Équation 3}]$$

Ainsi, l'estimation de la masse M_{Pol} avec la formule précédente nécessite une bonne connaissance de la dynamique de la concentration du polluant C_{Pol} et du débit Q pour chaque pas de temps, ce qui est impossible à l'heure actuelle en réseau d'assainissement. Nous avons donc recours à l'utilisation de la concentration moyenne événementielle C_{j-Pol} obtenue par une analyse au laboratoire pour quelques événements pluvieux à l'échelle annuelle, voire à l'échelle pluri-annuelle. Par conséquent, la masse événementielle pour un événement pluvieux j peut être estimée par :

$$M_{j-Pol} = C_{j-Pol} \times V_j \quad [\text{Équation 4}]$$

où V_j est le volume événementiel transporté durant l'événement j qui peut être estimé par :

$$\sum_{i=1}^{n_j} Q_{ji} \times \Delta t_{ji} \quad [\text{Équation 5}]$$

Nous étudions donc la combinaison possible entre la mesure en continu de certains paramètres (intensité de la pluie, débit et turbidité) et la concentration moyenne événementielle obtenue pour quelques événements pluvieux pour un polluant donné. Nous nous concentrons surtout sur la valeur ajoutée de la mesure en continu de la turbidité pour améliorer l'estimation de la masse annuelle des polluants qui ont des concentrations moyennes événementielles liées à celles des matières en suspension MES.

En effet, la concentration totale d'un polluant C_{j-Pol} pour un événement j est la somme de la concentration dissoute $C_{j-Pol-D}$ et de la concentration particulaire $C_{j-Pol-P}$. Par conséquent :

$$C_{j-Pol} = C_{j-Pol-D} + C_{j-Pol-P} = C_{j-Pol-D} + \tau_j \times C_{j-MES} \quad [\text{Équation 6}]$$

avec C_{j-MES} la concentration moyenne événementielle de MES de l'événement j , et $\tau_j = C_{j-Pol-P}/C_{j-MES}$ la teneur du polluant considéré dans les particules en suspension.

Le suivi en continu et à pas de temps fin de la turbidité dans un réseau permet de disposer, à l'échelle annuelle, d'un découpage quasi exhaustif en événements pluvieux pour lesquels mesures de débit et de turbidité sont disponibles. On a donc accès à toutes les concentrations événementielles de temps de pluie à condition de transformer le paramètre de turbidité en une concentration en MES. Des recherches antérieures montrent qu'une relation de calibration linéaire ou polynomiale par site peut être utilisée pour estimer la concentration en MES à partir de la turbidité ainsi que les incertitudes impliquées par cette relation [HANNOUCHE *et al.*, 2011; MÉTADIER et BERTRAND-KRAJEWSKI, 2012]. Pour les deux sites de cette étude où l'on dispose de mesures en continu de la turbidité (Sucy : en FAU – *formazin attenuation unit* – à pas de temps de 2 minutes pour les années 2011-2012; et Chassieu à Lyon : en FNU – *formazin nephelometric unit* – à pas de temps de 2 minutes pour les années 2004-2008), les deux relations obtenues par des campagnes de calibration et utilisées dans cette étude sont :

- $C_{j-MES} (mg/L) = 31,9 + 0,45T_j$ (FAU) [équation 7] obtenue à partir de 14 paires (T_j , C_{j-MES}) parmi les 24 événements pluvieux étudiés dans cet article sur le site de Sucy pour lesquels la mesure en continu de la turbidité est disponible. T_j est la turbidité moyenne événementielle de l'événement j pondérée par le débit Q_{ij} .

- $C_{ij-MES} (mg/L) = 12,9 + 0,7T_{ij}(FNU) + 7,8E-4 \cdot T_{ij}^2$ (FNU) [équation 8] avec T_{ij} la turbidité instantanée et C_{ij-MES} la concentration instantanée en MES. Ce qui permet d'obtenir une concentration moyenne événementielle en MES pondérée par le débit Q_{ij}

pour l'événement j [MÉTADIER et BERTRAND-KRAJEWSKI, 2012].

Après avoir identifié tous les événements pluvieux durant une année donnée en utilisant la précipitation et le débit à l'exutoire, des modèles stochastiques ont été utilisés pour remplacer les données manquantes et obtenir ainsi une évaluation de la concentration totale pour chaque événement identifié. Ensuite, une masse annuelle est obtenue par l'équation 2.

Pour un événement donné, deux modèles sont utilisés pour remplacer les données en continu manquantes :

- Un modèle de volume-hauteur d'eau (modèle M1) pour estimer le volume et l'incertitude associée pour les événements pluvieux dont la mesure en continu du débit n'est pas disponible à partir de la hauteur de précipitation H_j . Le modèle M1 est un modèle linéaire entre V et H : $V = 10 \times A \times C_r \times (H - P_i)$ avec A la surface du bassin versant en ha, C_r le coefficient de ruissellement et P_i les pertes initiales. À partir des événements dont les mesures du débit et de l'intensité de la pluie sont disponibles, les valeurs de C_r et P_i ont été estimées (Sucy : $C_r = 22 \%$, $P_i = 0,8 \text{ mm}$; Chassieu : $C_r = 30 \%$, $P_i = 0,4 \text{ mm}$ et Pin Sec : $C_r = 26 \%$, $P_i = 1,0 \text{ mm}$).

- Un modèle de C_{j-MES} (modèle M2) pour estimer la concentration en MES des événements pour lesquels la mesure en continu de la turbidité n'est pas disponible. Faute d'un modèle liant les concentrations avec les caractéristiques de l'événement pluvieux, nous avons choisi un modèle de distribution statistique de la concentration moyenne événementielle de MES. Les résultats d'ajustement montrent que la distribution log-normale (μ, σ^2) est bien adaptée pour décrire les concentrations C_{j-MES} (test de Kolmogorov-Smirnov (KS) au seuil de 5 %), μ et σ étant la moyenne et l'écart type dans l'espace logarithmique. Les paramètres ajustés pour chaque site sont listés dans le tableau I.

Site	n	μ	σ	$m^{(1)}$	$ET^{(1)}$	KS $p\text{-value}^{(2)}$
Sucy	121	4,83	0,49	141	74	84 %
Chassieu	263	4,63	0,79	140	130	87 %
Pin Sec	18	4,57	0,76	128	114	82 %

(1) moyenne m et écart type ET ; (2) $p\text{-value}$ pour le test de Kolmogorov-Smirnov (KS).

Tableau I. Moyenne et écart type des distributions log-normales ajustées de C_{j-MES} sur les trois sites

En outre, deux autres modèles sont utilisés pour extrapoler les données manquantes des concentrations C_{j-Pol} à partir des événements échantillonnés pour l'analyse des polluants, à d'autres événements où une telle analyse est manquante :

- Le modèle M3 est utilisé quand il n'y a pas une corrélation significative entre la concentration particulière $C_{j-Pol-P}$ et la concentration en MES C_{j-MES} . Une distribution de C_{j-Pol} est ajustée à l'aide d'un test de KS au seuil de 5 %.
- Le modèle M4 est utilisé quand il y a une corrélation significative entre la concentration particulière $C_{j-Pol-P}$ et la concentration en MES C_{j-MES} . Ce modèle résulte selon l'équation 6 d'un modèle de distribution de la teneur en polluant τ_j , d'une valeur de la concentration en MES C_{j-MES} (obtenue à partir de la turbidité ou simulée à l'aide du modèle M2) et d'une distri-

bution des concentrations dissoutes $C_{j-Pol-D}$. Les distributions de τ_j et $C_{j-Pol-D}$ sont ajustées à l'aide d'un test de KS au seuil de 5 %.

Toutes les distributions sont ajustées quand le nombre des événements échantillonnés est supérieur à six [ROMEY, 2003]. Par ailleurs, le faible nombre d'événements pluvieux échantillonnés pour un polluant donné et un site donné, notamment pour le site de Chassieu (deux à cinq mesures par polluant) ne permet pas d'ajuster des distributions. Pour cela, nous avons regroupé les données similaires entre les sites (test non paramétrique de Kruskal-Wallis au seuil de 5 %). Le test de KS montre que les distributions log-normales sont bien adaptées pour décrire les concentrations C_{j-Pol} et $C_{j-Pol-D}$ et les teneurs en polluants τ_j . La figure 3 illustre la méthode utilisée, et le tableau II reporte les résultats obtenus.

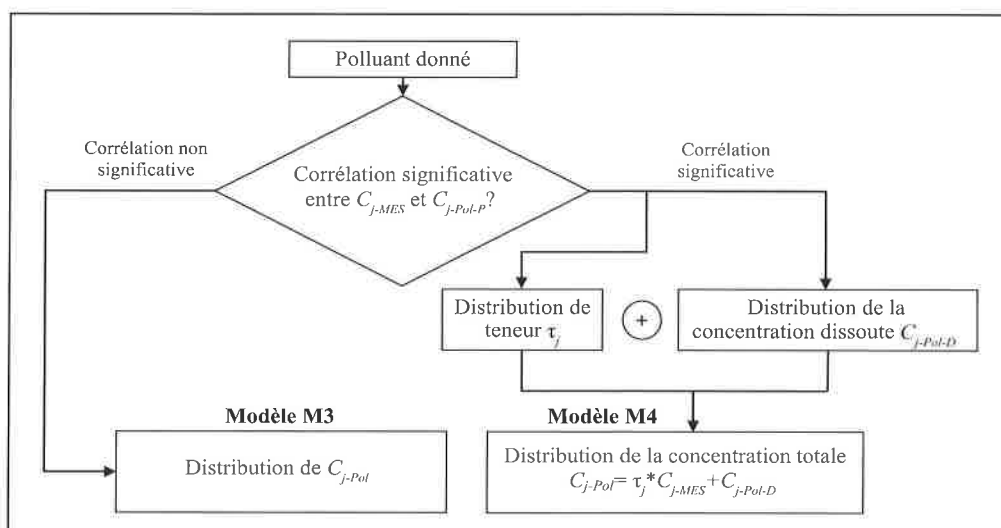


Figure 3. Méthode d'estimation des concentrations par polluant et par événement

Modèle M3 : C_{j-Pol} (unité*)							Modèle M4 : τ (unité* $\times$ L/mg MES) et C_{j-Pol} (unité*)							
Polluant	Sucy		Chassieu		Pin Sec		Polluant	τ et C_j	Sucy		Chassieu		Pin Sec	
	μ	σ	μ	σ	μ	σ			μ	σ	μ	σ		
$\sum 16$ HAP (ng/L)	M3 non pertinent : → M4		Échantillon faible non présenté		6,90	0,47	$\sum 16$ HAP (ng/L)	τ_j	3,00	0,52	Échantillon faible non présenté		M4 non pertinent : → M3	
							$C_{j-Pol-D}$	5,42	0,63					
							Pb (μg/L)	τ_j	−1,90	0,42	Groupé avec Sucy		3,85	0,58
								$C_{j-Pol-D}$	−0,66	0,63			0,78	0,37
							Zn (μg/L)	τ_j	0,42	0,26	Groupé avec Sucy		Groupé avec Sucy	
								$C_{j-Pol-D}$	3,82	0,43				
							Cu (μg/L)	τ_j	−1,28	0,43	Groupé avec Sucy		Groupé avec Sucy	
								$C_{j-Pol-D}$	1,58	0,55				

*unité : teneur exprimée en μg/L et en ng/L suivant le polluant. MES : matières en suspension,

Tableau II. Paramètres des distributions log-normales des différents polluants sur les trois sites

*unité : teneur exprimée en μ g/L et en ng/L suivant le polluant. MES : matières en suspension,

Tableau II. Paramètres des distributions log-normales des différents polluants sur les trois sites

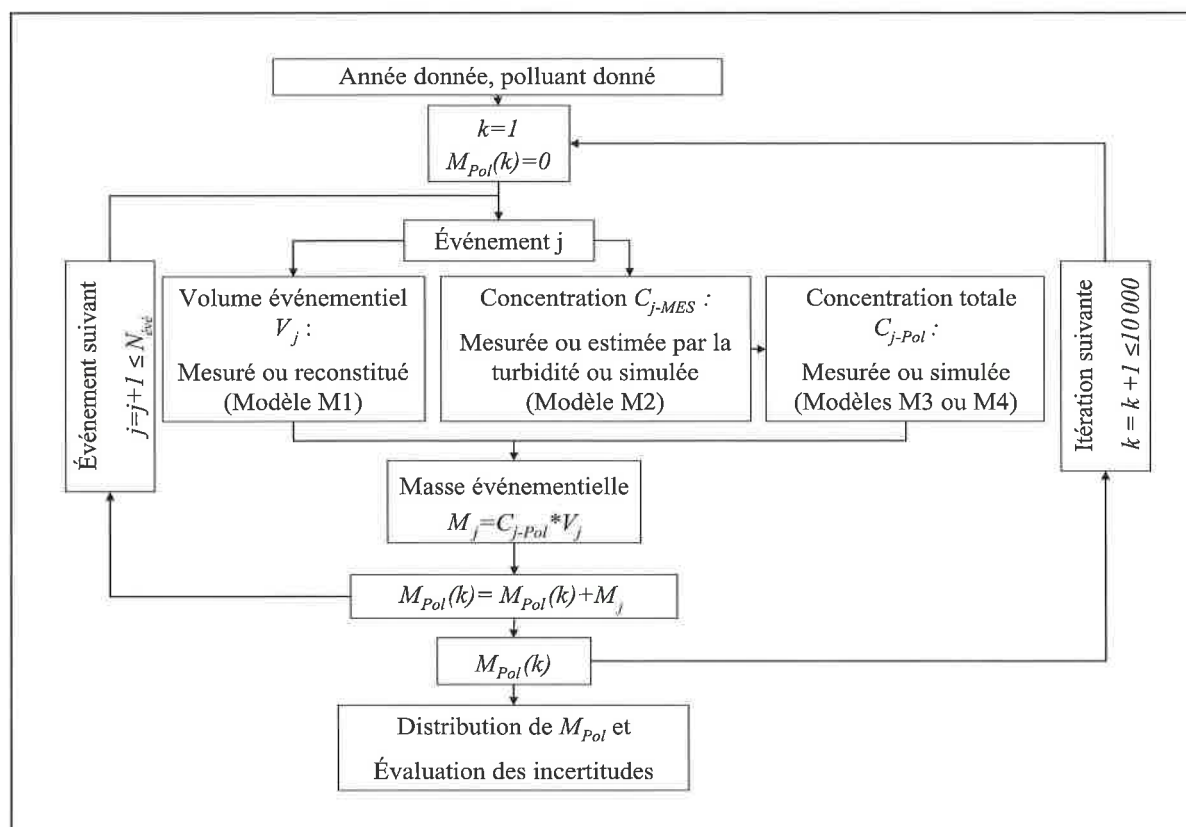


Figure 4. Diagramme de la méthode d'estimation des flux pour chaque polluant et chaque site

Une simulation Monte-Carlo est itérée 10 000 fois pour obtenir une valeur moyenne et un intervalle de confiance de la masse de chaque polluant considéré. La méthodologie utilisée est présentée figure 4.

2. Résultats

2.1. Analyse de la contribution des sources primaire sur les trois sites

Les figures 5 et 6 montrent les flux annuels et la distribution des sources des contaminants pour les trois bassins versants étudiés et pour les quatre contaminants.

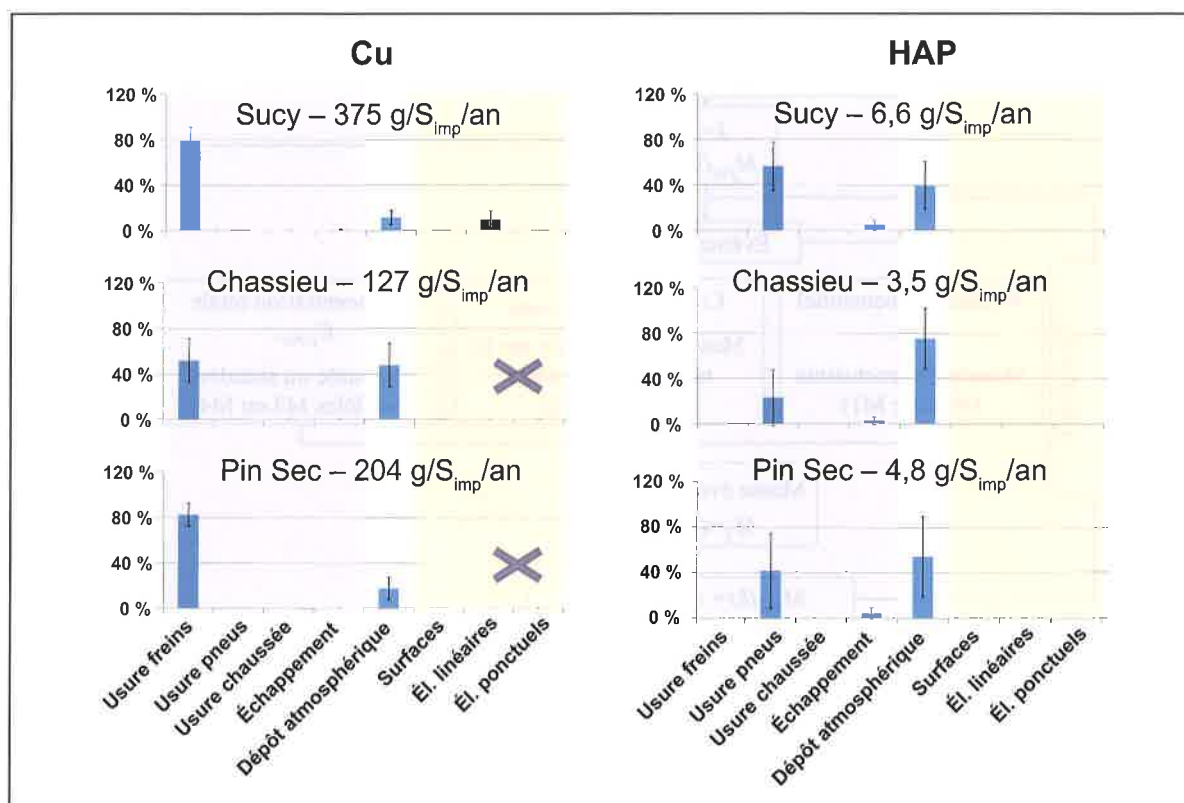
2.1.1. Émissions de Cu

Les émissions de Cu montrent une différence significative entre les deux bassins résidentiels (Sucy et Pin Sec) et le site industriel (Chassieu). À Sucy et Pin Sec, l'usure des plaquettes de frein est responsable de 80 % des émissions, alors qu'à Chassieu elle ne contribue qu'à 50 %, le restant provenant du dépôt atmosphérique. Cette différence est due à la diversité dans la forme d'urbanisation entre les trois sites : les

parcelles industrielles sont très larges et imperméabilisées par rapport à celles résidentielles. Cette différence se traduit dans un poids différent du trafic au sein des bassins versants (à Chassieu, le trafic spécifique estimé est de 270 véhicules-km par jour et par m² imperméable, alors qu'à Sucy et Pin Sec il est respectivement de 1 230 et 670) et, par conséquent, sur des poids relatifs différents des sources liées au trafic et au dépôt atmosphérique. Une autre observation peut être faite à propos des éléments linéaires des toitures à Sucy : dans ce bassin versant, seulement 3 % des gouttières et descentes sont en cuivre, mais elles contribuent à environ 10 % des émissions totales de Cu. Dans certaines régions ou villes, les éléments de toiture en cuivre sont traditionnels et généralisés : dans ces cas, les éléments linéaires de toiture peuvent facilement devenir la source principale d'émission de Cu.

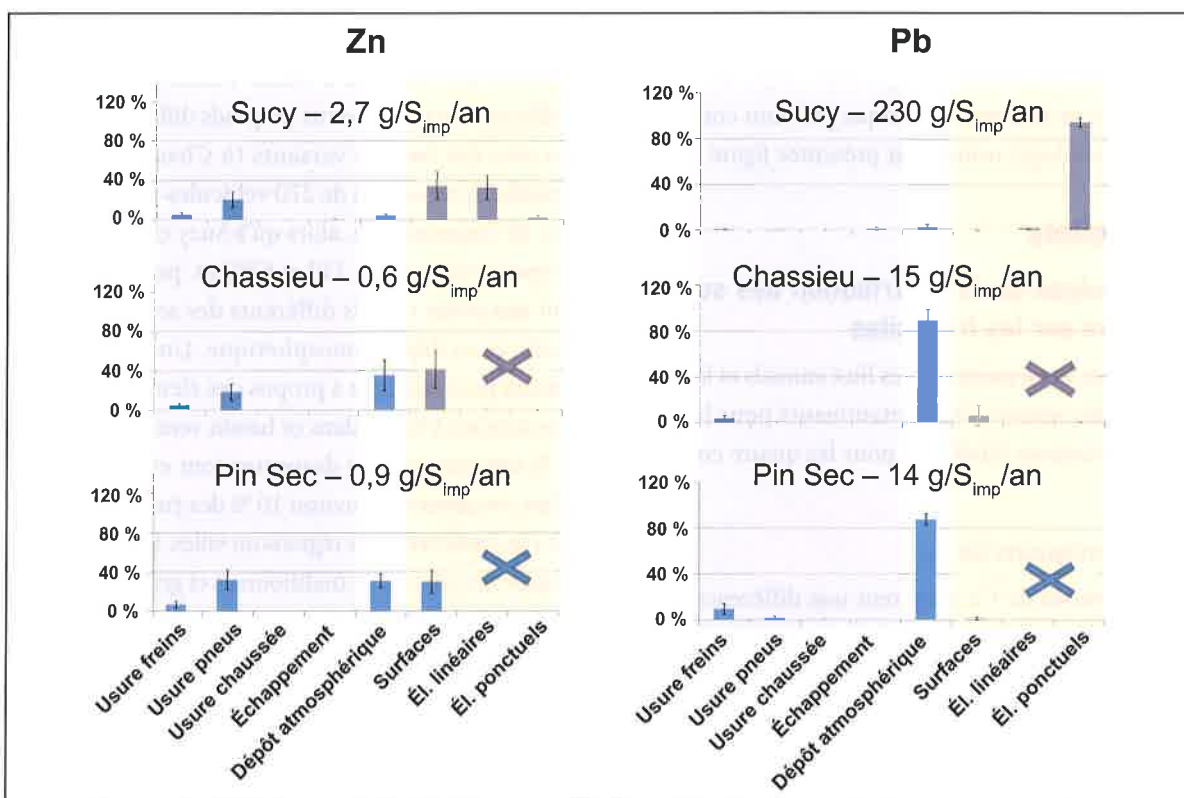
2.1.2. Émissions de HAP

Comme le Cu, les émissions de HAP sont principalement liées au trafic routier et au dépôt atmosphérique. L'usure des pneus est la principale source liée au trafic, suivi par les gaz d'échappement. Cet ordre



Él. = éléments ; S_{imp} : surface imperméabilisée (ha).

Figure 5. Distribution des sources et flux annuels de contaminants dans le ruissellement : Cu et HAP. La zone bleue regroupe les émissions dues au trafic routier, la zone rouge celles dues aux bâtiments



Él. = éléments ; S_{imp} : surface imperméabilisée (ha).

Figure 6. Distribution des sources et flux annuels de contaminants dans le ruissellement : Zn et Pb. La zone bleue regroupe les émissions dues au trafic routier, la zone rouge celles dues aux bâtiments

est dû au fait que la plupart des matériaux issus de l'usure des pneus se déposent immédiatement sur la chaussée et sont entraînés par le ruissellement. Au contraire, seulement une petite partie des émissions à l'échappement se dépose immédiatement, tandis que la plus grande partie passe dans le compartiment atmosphérique et se dépose par la suite. Nous pouvons supposer qu'une partie significative du dépôt atmosphérique dépend du trafic routier, mais il n'est pas possible de distinguer la proportion de sources internes ou externes au bassin. Cependant, encore une fois, le rapport entre trafic et imperméabilisation semble bien corrélé avec la distribution des émissions : Sucy et Chassieu ont des comportements opposés, alors que Pin Sec se trouve dans une situation intermédiaire.

2.1.3. Émissions de Zn

Pour le Zn, il n'est pas possible d'identifier une source dominante. Les principales sont l'usure des pneus, le dépôt atmosphérique et les matériaux de toiture. En particulier, les toits en zinc contribuent pour 30 % à 40 % des émissions, même s'ils ne sont pas particulièrement répandus dans les trois bassins. Dans certaines zones, ce type de couverture est traditionnel : THÉVENOT et coll. [2007] ont étudié un bassin versant où la moitié des toitures était couverte avec des feuilles de zinc et ont estimé que celles-ci étaient à l'origine de 86 % des émissions dans le ruissellement. Il est important de remarquer qu'à Sucy, où les émissions des éléments linéaires ont été quantifiées, ces derniers constituent une source majeure. Pour cette raison, les résultats sur Chassieu et Pin Sec sont probablement sous-estimés.

2.1.4. Émissions de Pb

Pour le Pb, les résultats obtenus sur Sucy sont particulièrement significatifs. 94 % des émissions sont dues à des éléments d'étanchéités de toiture et à des noues en plomb. Alors que les autres sources de ce polluant (plaquettes de frein, échappement) ont été très fortement réduites au cours des dernières décennies grâce à des réglementations spécifiques, les éléments singuliers des toitures restent une source majeure. Même si des réglementations sur les matériaux de construction ont été émises, le remplacement des éléments en plomb avec d'autres matériaux est

un processus très long, et entre-temps les émissions de Pb vers les eaux de ruissellement vont se poursuivre. Ce résultat souligne l'importance de produire des statistiques sur l'usage et la présence de matériaux, même en petites quantités, en rapport avec les usages du sol et les traditions architecturales locales. Pour les autres bassins, où une analyse des éléments singuliers n'a pu être réalisée, les estimations de flux sont probablement très sous-estimées (cf. section suivante).

2.2. Comparaison entre les sources estimées et les mesures de flux à l'exutoire

La figure 7 montre la comparaison entre les sources primaires de contaminants estimées et les flux moyens annuels issus des mesures à l'exutoire, en flux rapportés à la surface active des bassins versants. Dans l'analyse de ces graphiques, il faut retenir que les différences entre les deux estimations peuvent être dues à trois raisons principales :

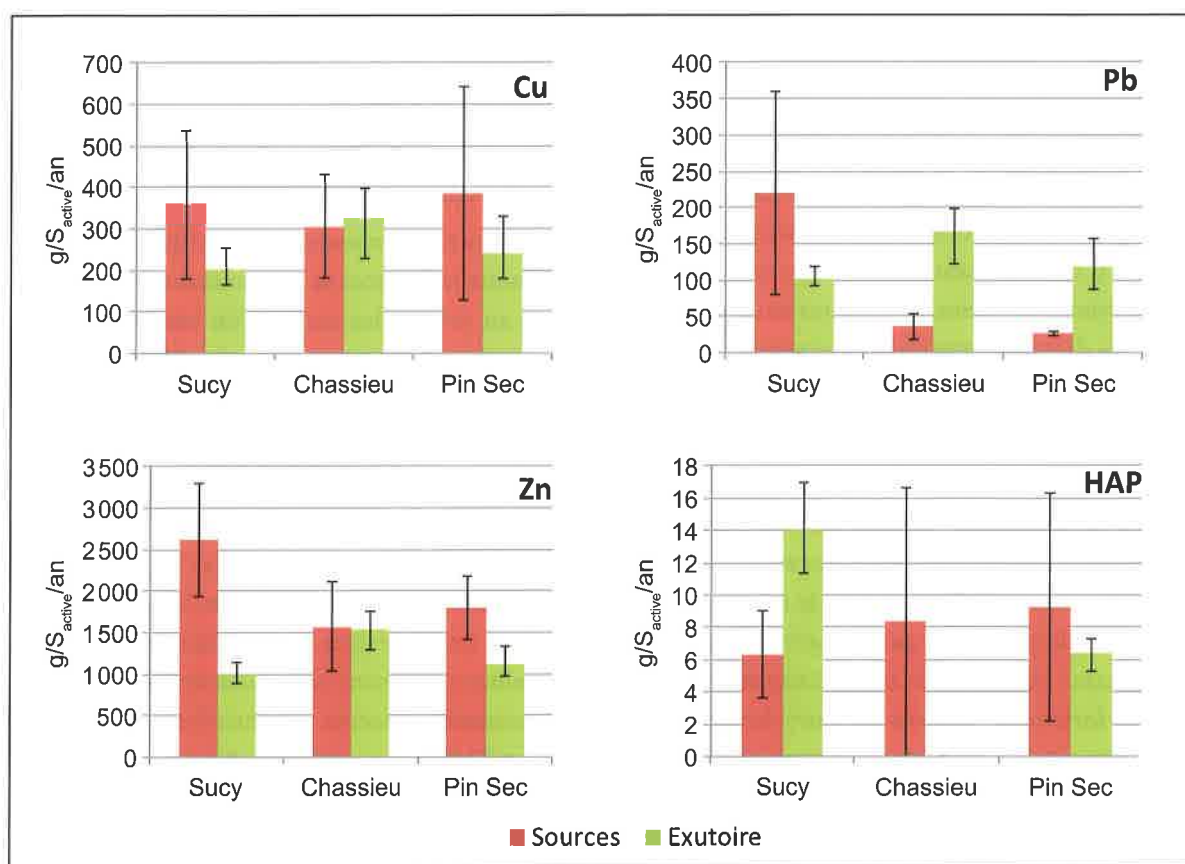
- la présence d'une source non incluse dans l'analyse SFA, ce qui produit des estimations des sources inférieures aux flux mesurés à l'exutoire. Sur la base de l'analyse précédente, par exemple, on peut s'attendre à ce comportement dans le cas du Pb (et, dans une moindre mesure, pour le Zn et le Cu) pour Chassieu et Pin Sec, où la source principale (les éléments singuliers des toitures) n'a pu être estimée ;
- l'existence de processus d'accumulation ou d'émission entre les sources de contaminants et l'exutoire, donc au niveau des surfaces du bassin et dans le réseau d'assainissement. Si l'on fait l'hypothèse que ces processus affectent de manière homogène les différents contaminants, les effets devraient être similaires pour un même site (même structure et longueur du réseau, etc.) ;
- la différence entre surface active (S_{active}) et surface imperméable (S_{imp}), qui traduit le fait que certaines surfaces imperméables, potentiellement émettrices de polluants, ne sont pas connectées au réseau. Ce phénomène concerne essentiellement Chassieu ($S_{imp} = 72 \%$, $S_{active} = 30 \%$) et Pin Sec ($S_{imp} = 49 \%$, $S_{active} = 26 \%$) et peut conduire à une surestimation des sources par rapport aux flux à l'exutoire. Ce phénomène devrait affecter de manière assez homogène les différents contaminants.

En analysant les graphiques, on observe pour Sucy un comportement similaire des différents métaux : le rapport entre flux aux sources et à l'exutoire est toujours de l'ordre de 1,5 à 2,5, ce qui semble confirmer la présence de processus de rétention au niveau des surfaces et/ou du réseau d'assainissement. Pour Chassieu et Pin Sec, la présence d'un rapport constant, à l'exception du Pb, semble se confirmer : à Chassieu, le rapport sources/exutoire est proche de 1 pour Cu et Zn, alors qu'à Pin Sec il est d'environ 1,5 pour Cu, Zn et HAP. Pour le Pb, les estimations des sources à Chassieu et Pin Sec sont beaucoup plus faibles que les flux mesurés à l'exutoire, plus élevés même que ceux de Sucy, ce qui confirme la présence de sources non quantifiées. Pour les HAP, nous ne disposons pas d'estimations à l'exutoire pour Chassieu, et pour Sucy le comportement est très différent par rapport aux métaux, avec des émissions très inférieures aux flux à l'exutoire. Cette dernière observation laisse supposer la présence d'une ou plusieurs sources, quantitativement très significatives, qui n'ont pas été prises en compte.

Conclusions

Dans cette recherche nous avons intégré une analyse des sources de contaminants sur trois bassins versants urbains aux caractéristiques différentes avec une évaluation des flux de contaminants à l'exutoire. Malgré des incertitudes qui restent importantes pour les deux méthodes, les résultats sont globalement cohérents et mettent en lumière des lacunes dans nos connaissances des processus de contamination des eaux de ruissellement.

En premier lieu, une innovation importante introduite par cette étude est la quantification des émissions à partir des éléments linéaires et singuliers des toitures, qui a été appliquée sur le bassin de Sucy. Les résultats obtenus pour le Pb, mais aussi pour le Zn et le Cu, montrent l'importance de ces éléments, relativement petits et souvent négligés, dans la quantification de la pollution métallique des eaux de ruissellement. Il semble nécessaire, à la lumière de ces résul-



S_{active} : surface active des bassins versants (ha).

Figure 7. Comparaison entre les sources de contaminants estimées et les flux calculés à partir de mesures à l'exutoire

tats, d'approfondir les méthodes d'identification et d'analyse des matériaux utilisés dans les bâtiments.

En deuxième lieu, la comparaison entre flux émis et flux à l'exutoire montre que les processus en réseau peuvent avoir un effet très significatif sur les émissions. Nous avons pu observer des comportements similaires entre différents polluants pour chaque site, ce qui permet de supposer une certaine stabilité de ces mécanismes, mais des analyses plus approfondies des processus d'accumulation/rétention/émission en réseau sont nécessaires pour comprendre les caractéristiques des bassins et des réseaux qui les déterminent.

En troisième lieu, la comparaison entre différents contaminants nous a permis d'observer que, pour les HAP, des sources importantes n'ont pas pu être quantifiées. Notamment, nous faisons l'hypothèse que les fuites de carburant à partir des véhicules pourraient expliquer au moins en partie la sous-estimation des HAP à Sucy. Or cette source est très peu étudiée dans la littérature, et des enquêtes approfondies devraient être réalisées. Cette observation montre un autre

bénéfice important de l'analyse couplée SFA/flux à l'exutoire : en comparant différents polluants, il est possible d'identifier ceux pour lesquels la quantification est plus difficile ou incomplète, et d'orienter la recherche en conséquence.

D'un point de vue opérationnel, la double analyse présentée ici permet de dresser un diagnostic important pour la gestion des sources diffuses de pollution, et d'avancer vers des méthodes de quantification plus générales. Notamment, la comparaison parmi les différents bassins a montré, pour le Cu et les HAP, que le ratio entre volume de trafic et surface imperméable est bien corrélé avec la distribution des émissions. Pour les contaminants principalement liés au trafic et aux retombées atmosphériques, il semble donc possible, *via* cet indicateur, de fournir des estimations rapides du poids relatif des sources internes au bassin par rapport aux flux atmosphériques. Des indicateurs similaires, mettant en relation plusieurs sources de polluants, pourraient être développés pour lier les caractéristiques des bassins avec les sources de pollution diffuse.

Bibliographie

BECOUBE-LAREURE C. (2010) : *Caractérisation et estimation des flux de substances prioritaires dans les rejets urbains par temps de pluie sur deux bassins versants expérimentaux* [thèse]. Lyon : INSA. 308 p.

BENEDETTI L., DIRCKX G., BIXIO D., THOEYE C., VAN-ROLLEGHEM P. (2006) : « Substance flow analysis of the wastewater collection and treatment system ». *Urban Water Journal*; 3(1) : 33-42.

BJÖRKLUND K. (2010) : « Substance flow analyses of phthalates and nonylphenols in stormwater ». *Water Science & Technology*; 62(5) : 1154-60.

BRUNNER P.H., RECHBERGER H. (2004) : *Practical hand-book of material flow analysis*. Boca Raton (Floride) : CRC Press.

CHÈVRE N., GUIGNARD C., ROSSI L., PFEIFER H.-R., BADER H.-P., SCHEIDEGGER R. (2011) : « Substance flow analysis as a tool for urban water management ». *Water Science and Technology*; 63(7) : 1341-8.

DAVIS A.P., SHOKOUHIAN M., NI S.B. (2001) : « Loading estimates of lead, copper, cadmium, and zinc in urban runoff from specific sources ». *Chemosphere*; 44(5) : 997-1009.

GASPERI J., SÉBASTIAN C., RUBAN V., DELAMAIN M., PERCOT S., WIEST L., *et al.* (2014) : « Micropollutants in

urban stormwater: occurrence, concentrations, and atmospheric contributions for a wide range of contaminants in three French catchments ». *Environmental Science and Pollution Research*; 21(8) : 5267-81.

GROMAIRE-MERTZ M.-C., GARNAUD S., GONZALEZ A., CHEBBO G. (1999) : « Characterisation of urban runoff pollution in Paris ». *Water Science and Technology*; 39(2) : 1-8.

HANNOUCHE A., CHEBBO G., RUBAN G., TASSIN B., LEMAIRE B.J., JOANNIS C. (2011) : « Relationship between turbidity and total suspended solids concentration within a combined sewer system ». *Water Science and Technology*; 64(12) : 2445-52.

HANSEN E., LASSEN C. (2002) : « Experience with the use of substance flow analysis in Denmark ». *Journal of Industrial Ecology*; 6(3-4) : 201-19.

JCGM (2008) : *Evaluation of measurement data — Guide to the expression of uncertainty in measurement*. Joint Committee for Guides in Metrology, Working group 1, First edition 2008, corrected version 2010.

LAMPREA D.K. (2009) : *Caractérisation et origine des métaux traces, hydrocarbures aromatiques polycycliques et pesticides transportés par les retombées atmosphé-*

riques et les eaux de ruissellement dans les bassins versants séparatifs périurbains [thèse]. Nantes : École centrale. 295 p.

MÅNSSON N., SÖRME L., WAHLBERG C., BERGBÄCK B. (2008) : « Sources of alkylphenols and alkylphenol ethoxylates in wastewater – A substance flow analysis in Stockholm, Sweden ». *Water Air Soil Pollution*; 8 : 445-56.

MÉTADIER M., BERTRAND-KRAJEWSKI J.L. (2012) : « The use of long-term on-line turbidity measurements for the calculation of urban stormwater pollutant concentrations, loads, pollutographs and intra-event fluxes ». *Water Research*; 46(20) : 6836-56.

MORF L.S., BUSER A.M., TAVERNA R., BADER H.-P., SCHEIDEGGER R. (2008) : « Dynamic substance flow analysis as a valuable risk evaluation tool - A case study for brominated flame retardants as an example of potential endocrine disrupters ». *Chimia*; 62 (5) : 424-31.

PETRUCCI G., GROMAIRE M.-C., FALLAH SHORSHANI M., CHEBBO G. (2014) : « Non-point source pollution of urban stormwater runoff: a methodology for source analysis ». *Environmental Science and Pollution Research*; 21(17) : 10225-42.

ROBERT-SAINTE P., GROMAIRE M.-C., DE GOUVELLO B., SAAD M., CHEBBO G. (2009) : « Annual metallic flows

in roof runoff from different materials: test-bed scale in Paris conurbation ». *Environmental Science & Technology*; 43(15) : 5612-8.

ROMEU J.L. (2003) : « Kolmogorov-Smirnov: A goodness of fit test for small samples ». *RAC-START, Reliability Analysis Center, Selected Topics in Assurance Related Technologies*, Vol. 10(6).

SMULLEN J.T., SHALLCROSS A.L., CAVE K.A. (1999) : « Updating the US nationwide urban runoff quality data base ». *Water Science and Technology*; 39 : 9-16.

TANGSUBKUL N., MOORE S., WAITE T.D. (2005) : « Incorporating phosphorus management considerations into wastewater management practice ». *Environmental Science & Policy*; 8 : 1-15.

THÉVENOT D., MOILLERON R., LESTEL L., GROMAIRE M.-C., ROCHER V., CAMBIER P., et al. (2007) : « Critical budget of metal sources and pathways in the Seine River basin (1994-2003) for Cd, Cr, Cu, Hg, Ni, Pb and Zn ». *Science of the Total Environment*; 375(1) : 180-203.

WG-AEN (2006) : *Good practice guide for strategic noise mapping and the production of associated data on noise exposure*, Final draft, version 2. European Commission Working Group Assessment of Exposure to Noise (WG-AEN).

G. PETRUCCI, M.-C. GROMAIRE, A. HANNOUCHE, G. CHEBBO

Évaluations des sources primaires et des flux annuels de métaux et de HAP à l'échelle de bassins versants urbains

Cet article présente une double approche d'évaluation des flux annuels de métaux et de HAP dans les eaux pluviales de trois bassins versants urbains d'occupations du sol différentes. Une évaluation des contributions des sources primaires de pollution, par une approche de type « SFA » (analyse de flux de substances) est conduite afin d'identifier la contribution relative des émissions dues à l'automobile (pneus, freins, carburants...), au lessivage des matériaux de construction (couvertures et éléments

singuliers de toitures) et aux apports atmosphériques. Ces flux sont confrontés à ceux évalués à l'exutoire du réseau pluvial par une méthode combinant l'analyse des micropolluants dans un nombre limité d'échantillons d'eaux pluviales et des données de mesure en continu de pluie, débit et turbidité. Ce travail permet de mettre en évidence les sources diffuses dominantes, des indicateurs clés pour leur quantification, mais aussi de diagnostiquer des lacunes dans les connaissances actuelles.

G. PETRUCCI, M.-C. GROMAIRE, A. HANNOUCHE, G. CHEBBO

Primary sources and annual fluxes of PAH and metals in runoff from urban catchments

This article presents a dual approach to assessing annual flows of metals and PAHs in stormwater for three urban watersheds of different land uses. An assessment of the contributions of primary sources of pollution, based on a SFA approach (substance flow analysis) is conducted so as to identify the relative contribution of emissions from automobiles (tires, brakes, fuel...), leaching from building materials (roof cover and singular elements of roofs) and atmospheric

fallout. These flows are compared with those calculated at the outlet of the storm drainage system by a method combining the analysis of micro-pollutants in a limited number of stormwater samples and continuous measurement data of rain, flow and turbidity. This work allows to highlight the dominant diffuse sources of runoff contamination, key indicators for their quantification but also to diagnose gaps in current knowledge.