



**HAL**  
open science

# Caractérisation des émissions de méthane à l'échelle locale à l'aide d'une méthode d'inversion statistique basée sur un modèle gaussien paramétré avec les données d'un gaz traceur

Sébastien Ars

► **To cite this version:**

Sébastien Ars. Caractérisation des émissions de méthane à l'échelle locale à l'aide d'une méthode d'inversion statistique basée sur un modèle gaussien paramétré avec les données d'un gaz traceur. Météorologie. Université Paris Saclay (COMUE), 2017. Français. NNT: 2017SACLV030. tel-01624241

**HAL Id: tel-01624241**

**<https://theses.hal.science/tel-01624241v1>**

Submitted on 26 Oct 2017

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

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

NNT : 2017SACLV030

THÈSE DE DOCTORAT  
DE  
L'UNIVERSITÉ PARIS-SACLAY  
PRÉPARÉE À  
L'UNIVERSITÉ DE VERSAILLES SAINT-QUENTIN-EN-YVELINES

Ecole doctorale n°129  
Sciences de l'Environnement d'Île-de-France  
Spécialité de doctorat : Météorologie, océanographie, physique de l'environnement

par

**M. SÉBASTIEN ARS**

Caractérisation des émissions de méthane à l'échelle locale à l'aide d'une méthode d'inversion statistique basée sur un modèle gaussien paramétré avec les données d'un gaz traceur

Thèse présentée et soutenue au LSCE, le 29 juin 2017.

Composition du Jury :

M. GUY CERNOGORA	Professeur émérite, LATMOS	Président du jury
Mme. NADINE LOCOGE	Professeur, École des Mines de Douai	Rapporteur
Mme. MARTINA SHMIDT	Senior researcher, Institut für Umweltphysik	Rapporteur
M. JULIEN MALANDAIN	Directeur général, MIDEWA	Examineur
M. YELVA ROUSTAN	Chargé de recherche, CEREAS-ENPC	Examineur
M. PHILIPPE BOUSQUET	Professeur, LSCE	Directeur de thèse
M. GRÉGOIRE BROQUET	Chargé de recherche, LSCE	Co-directeur de thèse
Mme. CAMILLE YVER KWOK	Chargée de recherche, LSCE	Encadrante de thèse





**Titre :** Caractérisation des émissions de méthane à l'échelle locale à l'aide d'une méthode d'inversion statistique basée sur un modèle gaussien paramétré avec les données d'un gaz traceur

**Mots clés :** Méthane, Inversion statistique, Méthode traceur, Modèle gaussien, Échelle locale, Déchets

**Résumé :** L'augmentation des concentrations de méthane dans l'atmosphère, directement imputable aux activités anthropiques, induit une accentuation de l'effet de serre et une dégradation de la qualité de l'air. Il existe encore à l'heure actuelle de grandes incertitudes concernant les estimations des émissions des différentes sources de méthane à l'échelle locale. Une meilleure caractérisation de ces sources permettrait de mettre en place des politiques d'adaptation et d'atténuation efficaces afin de réduire ces émissions.

Nous avons développé une nouvelle méthode de quantification des émissions de méthane à l'échelle locale basée sur la combinaison de mesures atmosphériques mobiles et d'un modèle gaussien dans le cadre d'une inversion statistique. Les concentrations atmosphériques du méthane sont mesurées ainsi que celles d'un gaz traceur émis à un flux connu. Ces concentrations en gaz traceur sont utilisées pour sélectionner la classe de stabilité représentant le mieux les conditions atmosphériques dans le modèle gaussien ainsi qu'à paramétrer l'erreur associée aux mesures et au modèle dans l'inversion statistique. Dans un premier temps, cette nouvelle méthode d'estimation des émissions de méthane a été testée grâce

à des émissions contrôlées de traceur et de méthane dont les sources ont été positionnées suivant différentes configurations.

J'ai ensuite appliqué cette méthode à deux sites réels connus pour leurs émissions de méthane, une exploitation agricole et une installation de distribution de gaz, afin de tester son applicabilité et sa robustesse dans des conditions plus complexes de répartition des sources de méthane. Cette méthode a permis d'obtenir des estimations des émissions totales des sites robustes prenant en compte la localisation du traceur par rapport aux sources de méthane. L'estimation séparée des émissions des différentes sources d'un site s'est révélée fortement dépendante des conditions météorologiques durant les mesures.

Je me suis ensuite focalisé sur les émissions de méthane associées au secteur des déchets en réalisant un certain nombre de campagnes de mesures au sein d'installations de stockage des déchets non dangereux et de stations d'épuration. Les résultats obtenus pour ces différents sites montrent la grande variabilité des émissions de méthane dans le secteur des déchets.

**Title :** Characterization of local scale methane emissions using a statistical inversion method based on a Gaussian model parameterized with tracer gas observations

**Keywords :** Methane, Statistical inversion, Tracer release method, Gaussian model, local scale, Waste

**Abstract :** The increase of atmospheric methane concentrations, directly linked to anthropogenic activities, is partly responsible for the enhancement of the greenhouse effect and a degradation of air quality. There are still considerable uncertainties regarding methane emissions estimates from many sources at local scale. A better characterization of these sources would help the implementation of effective adaptation and mitigation policies to reduce these emissions. We have developed a new method to quantify methane emissions from local sites based on the combination of mobile atmospheric measurements, a Gaussian model and a statistical inversion. These atmospheric measurements are carried out within the framework of the tracer method, which consists in emitting a gas co-located with the methane source at a known flow. The measured tracer gas concentrations are used to choose the stability class of the Gaussian model that best represents the atmospheric conditions during the measurements and to parameterize the error associated with the measurements and the model in the statistical inversion. We first tested this new method with controlled emissions of tracer and methane with their sources positioned in different configurations in order to better understand the contribu-

tions of this method compared to the traditional tracer method. These tests have demonstrated that the statistical inversion parameterized by the tracer gas data gives better estimates of methane emissions when the tracer and methane sources are not perfectly collocated or when there are several sources of methane.

Then I applied this method to two sites known for their methane emissions, namely a farm and a gas distribution facility. These measurements enabled us to test the applicability and robustness of the method under more complex methane source distribution conditions and gave us better estimates of the total methane emissions of these sites that take into account the location of the tracer regarding methane sources. Separate estimates of every source within the site are highly dependent on the meteorological conditions during the measurements.

Finally I focused on methane emissions associated with the waste sector by carrying out several measurement campaigns in landfills and wastewater treatment plants. The obtained estimates for each one of these sites show the variability of methane emissions in the waste sector.





---

## Remerciements

Je souhaite tout d'abord remercier chaleureusement Philippe Bousquet, Grégoire Broquet et Camille Yver Kwok pour avoir co-encadré ma thèse. Merci Philippe pour ton soutien et tes encouragements qui m'ont aidé à continuer et à ne pas baisser les bras durant les moments difficiles. Merci Grégoire pour tout ce que tu m'as appris, pour le temps que tu m'as consacré à m'expliquer et me réexpliquer certains concepts qui me paraissaient un peu abstraits. Merci également pour ta rigueur sans laquelle ce travail ne serait pas ce qu'il est aujourd'hui. Merci Camille pour avoir suivi l'avancement de ma thèse, pour ton soutien, tes conseils et pour toutes ces péripéties qui nous sont arrivées durant nos campagnes de mesures.

Je tiens également à remercier chaleureusement Martina Schmidt et Yelva Roustan pour le temps qu'ils m'ont consacré au cours des trois années de thèse à l'occasion des comités de thèse, pour leur bienveillance et leurs remarques constructives qui m'ont permis d'avancer dans mon travail de thèse. Un grand merci à Guy Cernogora, Nadine Locoge et Julien Malandain pour avoir accepté de faire partie de mon jury de thèse.

Merci à la KIC-Climat pour avoir financé cette thèse. Je souhaite adresser toute ma reconnaissance à Philippe Ciais et Veolia, à l'origine de la chaire industrielle BridGES, sans qui cette thèse n'aurait jamais vu le jour. Je remercie également Jacques Hayward pour avoir pris le temps de suivre l'avancée de mes travaux. Un grand merci à Grant Allen et Joseph Pitt pour leur accueil durant ma mobilité à l'université de Manchester ainsi qu'à toutes les personnes que j'ai pu rencontrer durant cet échange.

Merci également à Alexia Baudic, Sabina Assan, Christiane Yeman et Emmanuel Arzoumanian pour m'avoir assisté durant mes différentes campagnes de mesures. J'aimerais également dire un grand merci à François Truong et Cyril Vuillemin pour m'avoir aidé à résoudre tous les problèmes techniques que j'ai pu rencontrer. Je souhaite également remercier chaleureusement Valérie Gros et Félix Vogel pour leur disponibilité, leurs conseils, pour avoir pris le temps de suivre mes travaux et pour m'avoir aidé à résoudre certains problèmes administratifs.

Je remercie bien évidemment l'ensemble des personnes que j'ai eu l'occasion de rencontrer durant ma thèse au LSCE et plus particulièrement les membres de mon équipe pour tous nos échanges et les bons moments passés durant les pauses-café ou autour d'un repas à la cantine. J'ai une pensée particulière pour Sarah, Mathilde, Ayche (Fée kiki), Carole, Lola et Céline qui sont devenues plus que des collègues durant ces années. Merci pour votre soutien moral, pour tous nos fous rires et pour vos attentions (gâteaux, chocolats...) plus particulièrement durant la rédaction de mon manuscrit.

Enfin j'aimerais remercier ma famille qui m'a toujours soutenu, encouragé et qui m'a aidé à traverser les épreuves rencontrées au cours de ces dernières années. Un grand merci également à tous mes amis sur qui je sais pouvoir compter dans n'importe quelle situation.





---

# Table des matières

<b>Table des matières</b>	<b>i</b>
<b>Table des figures</b>	<b>iv</b>
<b>Liste des tableaux</b>	<b>vii</b>
<b>1 Introduction</b>	<b>1</b>
1.1 Contexte . . . . .	1
1.2 Bilan des connaissances sur le méthane . . . . .	2
1.2.1 Un peu d'histoire . . . . .	2
1.2.2 Les méthodes d'estimation des émissions . . . . .	4
1.2.3 Bilan global du méthane atmosphérique . . . . .	5
1.2.4 En France . . . . .	8
1.3 Objectifs de la thèse . . . . .	10
<b>2 Méthodes de quantification des émissions de méthane d'un site</b>	<b>11</b>
2.1 Mesures atmosphériques et méthode traceur . . . . .	13
2.1.1 Principe de la méthode traceur . . . . .	13
2.1.2 Méthode de mesure : la spectroscopie à cavité résonnante . . . . .	15
2.1.3 Mise en œuvre de l'instrumentation . . . . .	16
2.1.3.1 Plateforme analytique utilisée . . . . .	16
2.1.3.2 Test des performances de l'instrument . . . . .	17
2.2 Modélisation atmosphérique . . . . .	18
2.2.1 Modèles de dispersion . . . . .	18
2.2.2 Simulation du transport atmosphérique à l'échelle locale à l'aide d'un modèle de panache gaussien . . . . .	19
2.3 Méthode d'inversion . . . . .	23
2.3.1 Inversion déterministe . . . . .	23
2.3.2 Inversion statistique sans prior (moindres carrés) . . . . .	23
2.3.3 Inversion statistique avec une approche bayésienne . . . . .	24
2.4 Inversion statistique gaussienne paramétrée avec les données du gaz traceur . . . . .	25
2.4.1 Principe de la combinaison de la méthode traceur et du modèle gaussien dans le cadre d'une inversion statistique . . . . .	25
2.4.1.1 Grands principes . . . . .	25
2.4.1.2 Mise en pratique . . . . .	25
2.4.2 Application dans le cadre d'émissions contrôlées de méthane . . . . .	26
2.4.2.1 Conditions d'expérience . . . . .	26
2.4.2.2 Résultats des essais réalisés avec des émissions contrôlées de méthane . . . . .	28

2.4.3	Publication : Statistical inversion of gas emissions from point sources coupling the tracer release technique and Gaussian plume modelling : a methane test case in controlled conditions . . . . .	29
<b>3</b>	<b>Deux applications des méthodes d'estimation des émissions de méthane</b>	<b>51</b>
3.1	Exploitation agricole : la "ferme de Grignon" . . . . .	53
3.1.1	Description du site . . . . .	53
3.1.2	Mesures atmosphériques . . . . .	54
3.1.3	Estimation des émissions de méthane avec la méthode traceur . . . . .	55
3.1.4	Optimisation du modèle gaussien à l'aide des concentrations en traceur mesurées . . . . .	55
3.1.5	Estimation du biais causé par la non-colocalisation du traceur avec des OSSEs . . . . .	57
3.1.6	Estimation des émissions de méthane avec l'inversion statistique paramétrée avec les données du gaz traceur . . . . .	57
3.1.6.1	Le vecteur de contrôle $f$ . . . . .	57
3.1.6.2	Le vecteur d'observation $p$ . . . . .	58
3.1.6.3	La matrice de transport $H$ . . . . .	58
3.1.6.4	La matrice de covariance d'erreur d'observation $R$ . . . . .	58
3.1.6.5	Estimation <i>a priori</i> des émissions $f^b$ et matrice de covariance de l'incertitude <i>a priori</i> $B$ . . . . .	60
3.1.6.6	Configuration des inversions statistiques testées . . . . .	60
3.1.6.7	Résultats obtenus avec différents paramètres de l'inversion statistique . . . . .	61
3.2	Installation de distribution de gaz naturel située dans le nord de l'Europe . . . . .	67
3.2.1	Description du site . . . . .	67
3.2.2	Mesures atmosphériques . . . . .	68
3.2.3	Estimation des émissions de méthane avec la méthode traceur . . . . .	69
3.2.4	Optimisation du modèle gaussien à l'aide des concentrations en traceur mesurées . . . . .	69
3.2.5	Estimation du biais causé par la non-colocalisation du traceur avec des OSSEs . . . . .	70
3.2.6	Estimation des émissions de méthane avec l'inversion statistique paramétrée avec les données du gaz traceur . . . . .	70
3.2.6.1	Le vecteur de contrôle $f$ . . . . .	70
3.2.6.2	Le vecteur d'observation $p$ . . . . .	71
3.2.6.3	La matrice de transport $H$ . . . . .	71
3.2.6.4	La matrice de covariance d'erreur d'observation $R$ . . . . .	71
3.2.6.5	Estimation <i>a priori</i> des émissions $f^b$ et matrice de covariance de l'incertitude <i>a priori</i> $B$ . . . . .	71
3.2.6.6	Configuration des inversions statistiques testées . . . . .	72
3.2.6.7	Résultats obtenus avec différents paramètres de l'inversion statistique . . . . .	72
<b>4</b>	<b>Quantification des émissions de méthane provenant du secteur des déchets</b>	<b>85</b>
4.1	Estimation des émissions de méthane provenant d'ISDND . . . . .	87
4.1.1	Aperçu des connaissances générales sur les émissions de méthane liées aux installations de stockage des déchets non dangereux . . . . .	87
4.1.2	Inversion déterministe simple avec un modèle gaussien : application à des installations de stockage de déchets non dangereux . . . . .	89
4.1.2.1	Contexte et mesures atmosphériques . . . . .	89
4.1.2.2	Inversion déterministe d'une source unique avec un modèle gaussien . . . . .	89
4.1.2.3	Estimations des émissions des différentes ISDND . . . . .	90
4.1.3	Utilisation de la méthode traceur à l'unité de stockage des déchets non dangereux de la Butte-Bellot . . . . .	92
4.1.3.1	Contexte et présentation du site . . . . .	92
4.1.3.2	Mesures atmosphériques . . . . .	93
4.1.3.3	Estimations des émissions de méthane grâce à la méthode traceur . . . . .	95
4.1.4	Inversion déterministe avec un modèle CFD pour estimer les émissions de l'ISDND d'Ipswich . . . . .	96
4.1.4.1	Contexte et présentation du site . . . . .	96
4.1.4.2	Inversion déterministe avec un modèle CFD . . . . .	96

4.1.4.3	Estimations des émissions de méthane de l'ISDND d'Ipswich . . . . .	97
4.2	Estimation des émissions de méthane provenant de l'épuration des eaux usées . . . . .	99
4.2.1	Aperçu des connaissances générales sur les procédés d'épuration des eaux usées et émissions de méthane qui leur sont associées . . . . .	99
4.2.2	Réseau d'assainissement et stations d'épuration de la région de Valence . . . . .	102
4.2.2.1	Estimation des émissions de méthane provenant du bassin de stockage du réseau d'assainissement de Romans-sur-Isère . . . . .	102
4.2.2.2	Estimations des émissions de méthane de la station d'épuration de Romans- sur-Isère . . . . .	103
4.2.2.3	Estimations des émissions de méthane de la station d'épuration de Valence	108
4.2.3	La station d'épuration de Cergy . . . . .	115
4.2.3.1	Description du site . . . . .	115
4.2.3.2	Mesures atmosphériques . . . . .	115
4.2.3.3	Estimation des émissions de méthane avec la méthode traceur . . . . .	118
4.2.3.4	Comparaison des estimations obtenues avec les différentes méthodes . . . . .	119
4.2.4	L'unité de traitement des boues d'Achères . . . . .	120
4.2.4.1	Description du site . . . . .	120
4.2.4.2	Mesures atmosphériques . . . . .	121
4.2.4.3	Estimations des émissions de méthane provenant de la zone sud de l'unité de traitement des boues d'Achères . . . . .	122
4.2.4.4	Estimations des émissions de méthane provenant de la zone nord de l'unité de traitement des boues d'Achères . . . . .	127
4.2.4.5	Conclusions . . . . .	132
<b>5</b>	<b>Conclusions et perspectives</b>	<b>137</b>
5.1	Conclusions . . . . .	138
5.2	Perspectives . . . . .	140
	<b>Bibliographie</b>	<b>143</b>





---

## Table des figures

1.1	Évolution des concentrations atmosphériques de méthane au cours des 1 000 dernières années.	3
1.2	Cartes des réseaux de suivi NOAA/ESRL, RAMCES et ICOS.	3
1.3	Évolution des concentrations atmosphériques de méthane et de son taux de croissance depuis 1985.	4
1.4	Sources et puits de méthane à l'échelle mondiale.	6
1.5	Cartes présentant la répartition mondiale des émissions de méthane provenant de cinq types de sources : les zones humides, les énergies fossiles, l'agriculture, les feux de biomasse et de biofuel et les termites.	7
1.6	Budget régional des émissions de méthane provenant de cinq types de sources de la gauche vers la droite : les zones humides, les feux de biomasse et de biofuel, les énergies fossiles, l'agriculture et les déchets et les autres types de sources naturelles.	8
1.7	Émissions de méthane anthropiques par secteur en France depuis 1990.	9
2.1	Schéma de la méthode traceur dynamique.	14
2.2	Utilisation de la corrélation pour l'estimation des émissions de méthane.	15
2.3	Principe de la spectroscopie à cavité résonnante.	16
2.4	Résultats des différents tests réalisés sur l'instrument afin de déterminer la répétabilité de ses mesures en continue (a), sa répétabilité à court terme (b), sa répétabilité à long terme (c) et sa dépendance à la température pour le méthane (d).	18
2.5	Répartition gaussienne de la concentration dans un panache de gaz passif.	20
2.6	Classes de stabilité de Pasquill.	21
2.7	Sensibilité du modèle gaussien aux classes de stabilité.	22
2.8	Sensibilité du modèle gaussien à la vitesse du vent.	23
2.9	Test de la dépendance de l'instrument aux variations de température.	26
2.10	Les différentes configurations des sources testées.	27
3.1	Vue aérienne présentant les différentes sources de méthane du site de Grignon.	53
3.2	Concentrations en acétylène et en méthane mesurées lors de la campagne réalisée au sein de l'exploitation agricole de Grignon.	54
3.3	Exemple des profils de concentrations en traceur mesurées et modélisées avec le modèle gaussien pour les traversées 4 et 10 réalisées près de la ferme de Grignon.	56
3.4	Fonctions de réponse des différentes sources de méthane de la ferme de Grignon avec le modèle gaussien.	59
3.5	Résultats obtenus avec INV-homog pour la ferme de Grignon.	76
3.6	Résultats obtenus avec INV-invent pour la ferme de Grignon.	77
3.7	Contribution des différentes sources de méthane sur les vecteurs d'observation de chaque section pour la traversée 6.	78
3.8	Résultats obtenus avec INV-extrem pour la ferme de Grignon.	79

3.9	Plan du site de distribution de gaz. . . . .	80
3.10	Concentrations en méthane et en acétylène mesurées lors des différentes traversées du panache d'émission provenant du site de distribution de gaz pour les trois séries de mesures. . . . .	80
3.11	Fonctions de réponse des différentes sources de méthane de l'installation de distribution de gaz avec le modèle gaussien. . . . .	81
3.12	Résultats obtenus avec INV-DIAL pour l'installation de distribution de gaz. . . . .	82
3.13	Résultats obtenus avec INV-homog pour l'installation de distribution de gaz. . . . .	83
3.14	Observation de l'impact des différentes sections des profils de concentrations sur les flux d'émissions des différentes sources de l'installation de distribution de gaz obtenus pour chacune des deux inversions statistique. . . . .	84
4.1	Localisation des cinq installations de stockage de déchets non dangereux autour desquels des mesures ont été réalisées lors des campagnes CarboCount City du 18-19 novembre 2015. . . . .	89
4.2	Exemple de mesures réalisées autour d'une ISDND lors de la campagne CarboCount City et de concentrations modélisées avec le modèle gaussien. . . . .	90
4.3	Exemples de profils de concentrations mesurés et modélisés avec le modèle Gaussien pour deux sites de stockage des déchets non dangereux. . . . .	91
4.4	Vue aérienne de l'installation de stockage des déchets non dangereux de la Butte-Bellot. . . . .	93
4.5	Exemple de profil de concentrations mesuré au travers du panache d'émission provenant de l'installation de stockage des déchets non dangereux de la Butte-Bellot. . . . .	94
4.6	Concentrations en méthane et en acétylène mesurées lors des différentes traversées du panache d'émission provenant de l'installation de stockage des déchets non dangereux de la Butte-Bellot pour les trois séries de mesures. . . . .	94
4.7	Vue aérienne de l'installation de stockage des déchets non dangereux d'Ipswich en Grande-Bretagne et simulation du modèle CFD. . . . .	96
4.8	Superposition des concentrations en méthane mesurées et simulées par le modèle CFD après inversion à la localisation portakabin. . . . .	98
4.9	Vue aérienne de l'installation de stockage des déchets non dangereux d'Ipswich en Grande-Bretagne et simulation du modèle CFD avec la zone additionnelle. . . . .	99
4.10	Superposition des concentrations en méthane mesurées et simulées par le modèle CFD après inversion avec la zone additionnelle à la localisation portakabin. . . . .	99
4.11	Illustration des différentes étapes intervenant lors de l'épuration des eaux usées. . . . .	101
4.12	Concentrations en méthane mesurées au niveau de la canalisation d'aspiration de l'air du bassin de stockage du réseau d'assainissement de Romans-sur-Isère. . . . .	104
4.13	Vue aérienne de la station d'épuration de Romans-sur-Isère. . . . .	104
4.14	Concentrations en méthane et en acétylène mesurées lors des différentes traversées du panache d'émission provenant de la station d'épuration de Romans-sur-Isère. . . . .	105
4.15	Réponses du modèle pour les différentes sources de méthane de la station d'épuration de Romans-sur-Isère. . . . .	107
4.16	Résultats obtenus avec l'inversion statistique pour la stations d'épuration de Romans-sur-Isère. . . . .	109
4.17	Vue aérienne de la station d'épuration de Valence. . . . .	110
4.18	Concentrations en méthane et en acétylène mesurées lors des différentes traversées du panache d'émission provenant de la station d'épuration de Valence. . . . .	111
4.19	Réponses du modèle pour les différentes sources de méthane de la station d'épuration de Valence. . . . .	113
4.20	Résultats obtenus avec l'inversion statistique pour la station d'épuration de Valence. . . . .	114
4.21	Plan de la station d'épuration de Cergy. . . . .	116
4.22	Exemple d'un profil de concentrations en méthane (rouge) et en acétylène (jaune) mesuré lors de la traversée du panache d'émission provenant de la station d'épuration de Cergy. . . . .	116
4.23	Concentrations en méthane et en acétylène mesurées lors des différentes traversées du panache d'émission provenant de la station d'épuration de Cergy. . . . .	117
4.24	Vue aérienne de l'unité de traitement des boues de la station d'épuration d'Achères. . . . .	120
4.25	Exemple de profils de concentrations en méthane et en acétylène supérieures à leur concentration de fond mesurées lors des différentes campagnes de mesures réalisées au sein de l'unité de traitement des boues d'Achères. . . . .	121

4.26	Concentrations en méthane et en acétylène mesurées lors des différentes traversées du panache d'émission provenant de la station d'épuration d'Achères pendant les trois jours de mesures de la campagne de novembre. . . . .	123
4.27	Réponses du modèle pour les deux sources de méthane de la zone sud de l'unité de traitement des boues d'Achères. . . . .	125
4.28	Résultats obtenus avec l'inversion statistique pour la partie sud de l'unité de traitement des boues d'Achères. . . . .	126
4.29	Réponses du modèle pour les différentes sources de méthane de la partie nord de l'unité de traitement des boues d'Achères. . . . .	131
4.30	Résultats obtenus avec l'inversion statistique pour la partie nord de l'unité de traitement des boues d'Achères. . . . .	133



---

## Liste des tableaux

2.1	Tableau récapitulatif des résultats obtenus lors des tests réalisés sur l'analyseur CRDS. . . . .	17
2.2	Formules de Briggs pour terrain rural. . . . .	22
2.3	Formules de Briggs pour terrain urbain. . . . .	22
2.4	Estimation des émissions en méthane avec la méthode traceur et la méthode combinée et comparaison avec le taux de méthane réellement émis lors de chaque configuration. Les incertitudes associées à la méthode traceur sont détaillées ainsi : incertitude totale (incertitude aléatoire ; incertitude liée à la non-colocalisation des sources de traceur et de méthane) . . . .	29
3.1	Tableau récapitulatif des sites étudiés, des différentes campagnes réalisées sur ces sites, et des méthodes utilisées pour estimer leurs émissions de méthane. . . . .	52
3.2	Facteurs d'émissions associés aux différents types de ruminants. . . . .	54
3.3	Estimations des émissions en méthane de la ferme de Grignon par la méthode traceur. . . . .	55
3.4	Classes de stabilité sélectionnées pour chaque traversée du panache d'émission réalisée lors de la campagne de mesures à la ferme de Grignon. . . . .	56
3.5	Estimations <i>a priori</i> des émissions de méthane des différentes sources de la ferme de Grignon permettant de déterminer les différents vecteurs $f^b$ . . . . .	60
3.6	Tableau regroupant les acronymes utilisés pour désigner les différentes inversions statistiques réalisées pour la ferme de Grignon. . . . .	61
3.7	Écart relatif entre l'aire sous les profils de concentrations en méthane mesurés et les profils de concentrations simulés avec le modèle gaussien en utilisant les estimations <i>a posteriori</i> obtenues avec les différentes inversions statistiques pour les différentes traversées étudiées. . .	62
3.8	Corrélations sur les incertitudes <i>a posteriori</i> entre les différentes sources de méthane de la ferme de Grignon avec INV-homog. . . . .	63
3.9	Corrélations sur les incertitudes <i>a posteriori</i> entre les différentes sources de méthane de la ferme de Grignon INV-invent. . . . .	63
3.10	Corrélations sur les incertitudes <i>a posteriori</i> entre les différentes sources de méthane de la ferme de Grignon avec INV-extrem. . . . .	65
3.11	Estimations des émissions de méthane de l'installation de distribution de gaz réalisées par le NPL. . . . .	68
3.12	Flux d'acétylène émis lors des différentes séries de mesures réalisées au sein du site de distribution de gaz selon les séries de mesures et conditions météorologiques durant ces traversées. . . . .	68
3.13	Estimations des émissions en méthane du site de distribution de gaz calculées grâce à la méthode traceur. . . . .	69
3.14	Classes de stabilité sélectionnées pour chaque traversée du panache d'émission réalisée lors de la campagne de mesures au sein de l'installation de distribution de gaz. . . . .	70
3.15	Estimations <i>a priori</i> des émissions de méthane des différentes sources de l'installation de distribution de gaz permettant de déterminer les différents vecteurs $f^b$ . . . . .	71

3.16	Tableau regroupant les acronymes utilisés pour désigner les différentes inversions statistiques réalisées pour l'installation de distribution de gaz. . . . .	72
3.17	Corrélations sur les incertitudes <i>a posteriori</i> entre les différentes sources de méthane de l'installation de distribution de gaz après inversion avec des flux <i>a priori</i> basés sur les résultats du NPL. . . . .	73
3.18	Corrélations sur les incertitudes <i>a posteriori</i> entre les différentes sources de méthane de l'installation de distribution de gaz après inversion avec des flux <i>a priori</i> identiques pour toutes les sources du site. . . . .	74
4.1	Tableau récapitulatif des différents sites étudiés dans le secteur des déchets et des méthodes utilisées pour estimer leurs émissions de méthane. . . . .	86
4.2	Estimations des émissions en méthane provenant de différentes ISDND en réalisant une inversion déterministe à l'aide du modèle gaussien. . . . .	92
4.3	Estimations des émissions en méthane de l'installation de stockage des déchets non dangereux de la Butte-Bellot avec la méthode traceur. . . . .	95
4.4	Flux de méthane estimés grâce au modèle CFD. . . . .	97
4.5	Flux de méthane estimés grâce au modèle CFD. . . . .	100
4.6	Estimations des émissions en méthane de la station d'épuration de Romans-sur-Isère. . . . .	105
4.7	Classes de stabilité sélectionnées pour chaque traversée du panache d'émission provenant de la station d'épuration de Romans-sur-Isère. . . . .	106
4.8	Corrélations sur les incertitudes <i>a posteriori</i> entre les différentes sources de méthane de la station d'épuration de Romans-sur-Isère. . . . .	108
4.9	Estimations des émissions en méthane de la station d'épuration de Valence. . . . .	111
4.10	Classes de stabilité sélectionnées pour chaque traversée du panache d'émission provenant de la station d'épuration de Valence. . . . .	112
4.11	Corrélations sur les incertitudes <i>a posteriori</i> entre les différentes sources de méthane de la station d'épuration de Valence. . . . .	113
4.12	Estimations des émissions en méthane des différentes zones de la station d'épuration de Cergy. . . . .	118
4.13	Récapitulatif des différentes séries de mesures réalisées au sein de l'unité de traitement des boues d'Achères et des conditions météorologiques survenues pour chacune d'entre elles. . . . .	122
4.14	Estimations des émissions en méthane de la zone de stockage des boues calcinées d'Achères. . . . .	124
4.15	Classes de stabilité sélectionnées pour chaque traversée du panache d'émission provenant de la zone sud de l'unité de traitement des boues d'Achères. . . . .	124
4.16	Estimations des émissions en méthane des bassins épaisseurs ouest d'Achères. . . . .	128
4.17	Estimations des émissions en méthane des bassins centraux d'Achères. . . . .	129
4.18	Estimations des émissions en méthane des bassins épaisseurs est d'Achères. . . . .	129
4.19	Estimations des émissions en méthane de l'ensemble des bassins épaisseurs d'Achères. . . . .	130
4.20	Corrélations sur les incertitudes <i>a posteriori</i> entre les différentes sources de méthane de la partie nord de l'unité de traitement des boues d'Achères. . . . .	134
4.21	Récapitulatif des différentes estimations des émissions de méthane obtenues pour l'ensemble des ISDND et des stations d'épuration étudiées. . . . .	134

---

# Introduction

## 1.1 Contexte

Il est aujourd'hui bien établi que les activités humaines ont un impact sur la composition de l'atmosphère (IPCC, 2013). Les émissions d'un certain nombre de constituants minoritaires tels que le dioxyde de carbone ( $\text{CO}_2$ ) ou le méthane ( $\text{CH}_4$ ) provenant des activités humaines se sont ajoutées aux échanges naturels et viennent perturber le cycle de ces composés entre les réservoirs atmosphériques, continentaux et océaniques. Dans le cas du dioxyde de carbone, les phénomènes de respiration et de photosynthèse des végétaux constituaient l'essentiel des échanges naturels entre l'atmosphère, la biosphère et l'océan. Depuis le début de l'ère industrielle, ces échanges ont été perturbés par les émissions anthropiques qui ont fortement augmenté. Par exemple, les émissions de dioxyde de carbone dues à l'exploitation des énergies fossiles sont passées de quasiment zéro à 29 gigatonnes par an entre 1850 et 2010 d'après le rapport du groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat (GIEC) (IPCC, 2013). Il en résulte une augmentation de la concentration en dioxyde de carbone de +39 % et de +150 % pour le méthane qui entraîne à son tour une augmentation du déséquilibre entre l'énergie radiative entrant dans l'atmosphère et celle qui en sort, autrement dit, une augmentation du forçage radiatif dans l'atmosphère. Le concept de forçage radiatif permet de mesurer l'influence d'un facteur sur l'équilibre énergétique de la Terre. D'après le rapport du GIEC (IPCC, 2013), le changement climatique est très probablement dû (avec une certitude supérieure à 90 %) à l'impact des activités humaines sur le forçage radiatif terrestre. Dans ce contexte, l'intérêt pour les gaz tels que le dioxyde de carbone, le méthane mais aussi le protoxyde d'azote ( $\text{N}_2\text{O}$ ) ou l'hexafluorure de soufre ( $\text{SF}_6$ ) s'est fortement développé depuis une trentaine d'années. Des réseaux de mesure des concentrations de ces différents gaz dans l'atmosphère d'abord dédiés au suivi de l'augmentation globale de ces concentrations, puis au suivi des flux à des échelles de plus en plus fines (Yver et al., 2011; Schmidt et al., 2014), des mesures directes des flux d'émission de ces gaz (Baldocchi et al., 2001) ou encore le développement des méthodes de modélisation directe et inverse (c'est à dire l'estimation des flux à partir des concentrations par inversion statistique du transport atmosphérique) (Saunois et al., 2016; Chevallier, 2015) ont permis d'affiner les connaissances sur ces gaz et leurs puits et sources entre la surface terrestre et l'atmosphère ou dans l'atmosphère, de faire des projections pour les décennies à venir et de proposer des méthodes de vérification des stratégies d'atténuation qui devront être mises en place.

C'est dans cette optique, c'est-à-dire le développement d'approches de recherche innovantes pour quantifier et comprendre les flux de gaz à effet de serre (GES) à l'aide des techniques d'inversion atmosphérique des flux, que la chaire industrielle BridGES (2012-2016) et le projet Climate-KIC FuME (2013-2015), dans lesquels s'est inscrit mon travail de thèse, ont été initiés. La chaire s'est attachée à proposer des méthodes de quantification et de vérification de la réduction des émissions de gaz à effet de serre à différentes échelles, de l'échelle du site industriel avec des mesures mobiles à celle du globe avec des mesures satellitaires. Dans le projet FUME, l'objectif était d'améliorer la quantification des émissions de méthane fugitive à l'échelle d'un site industriel ou agricole susceptible de concentrer ou de produire du méthane.

Durant ma thèse, je me suis intéressé au méthane à l'échelle du site industriel et en particulier dans le secteur déchets et eaux usées. Pourquoi ce choix ? À cette question, on peut apporter plusieurs réponses. Même si elle n'est pas toujours régulière, il y a une augmentation incontestable des concentrations de méthane anthropique dans l'atmosphère et comme pour le dioxyde de carbone, cette augmentation est directement responsable de l'accentuation de l'effet de serre via le forçage radiatif. Bien que ce phénomène naturel soit indispensable à la vie sur Terre, les différents rapports du GIEC ont établi que les émissions massives dans l'atmosphère de gaz actifs dans l'effet de serre avaient déjà induit une augmentation d'un degré depuis un siècle. Ce phénomène pourrait même s'accélérer dans les prochaines décennies et conduire à un réchauffement de 4,8 °C d'ici 2100 dans le pire des scénarios envisagés (IPCC, 2013). Cette augmentation brutale des températures est susceptible d'avoir un impact direct sur les écosystèmes terrestres les plus fragiles et sur les économies locales en induisant un certain nombre de phénomènes parmi lesquels une élévation du niveau de la mer ou encore une intensification des événements météorologiques extrêmes tels que les sécheresses, les ouragans ou les inondations.

Par ailleurs, l'augmentation des concentrations de méthane est également à l'origine d'une dégradation de la qualité de l'air de par la production indirecte d'ozone dont elle est à l'origine mais également de par la réduction du pouvoir oxydant de la troposphère qu'elle entraîne. Enfin l'augmentation des concentrations de méthane perturbe aussi la composition de la stratosphère en induisant une diminution des concentrations en ozone qui forme une couche protectrice contre les rayons UV du soleil nocifs pour les cellules vivantes.

Le méthane mérite aussi que l'on s'intéresse à lui car contrairement au dioxyde de carbone et à sa longue durée de vie dans l'atmosphère, il représente une cible plus facile à atteindre pour la réduction des émissions des gaz à effet de serre. En effet, sa durée de vie d'environ 9 ans permet d'obtenir des résultats visibles plus rapidement. De plus, de nombreuses sources de méthane anthropiques peuvent être valorisées telles que les émissions dues au traitement des déchets présentant ainsi un intérêt économique pour les industries. Ainsi, s'intéresser au méthane à l'échelle du site permet de proposer des méthodes de vérification des stratégies d'atténuation et de valorisation du méthane qui peuvent être mises en place par les industriels ou les collectivités locales et présente donc un intérêt sociétal fort.

Les connaissances actualisées sur le cycle du méthane sont présentées dans l'état de l'art ci-après. Les sources, notamment celles relatives au secteur des déchets et eaux usées, et les puits, le bilan global et le temps de vie y sont abordés. Les objectifs ainsi que le plan de ma thèse sont ensuite détaillés.

## 1.2 Bilan des connaissances sur le méthane

### 1.2.1 Un peu d'histoire

La connaissance des concentrations atmosphériques du méthane avant les années 1970 repose sur l'analyse de bulles d'air piégées lors de la formation de la glace au niveau des calottes polaires. Cette technique a permis de retracer l'évolution des concentrations de méthane au cours des 400 000 dernières années. Le graphique présenté sur la figure 1.1 montre l'évolution des concentrations en méthane atmosphériques au cours des 1 000 dernières années à partir de l'air récupéré dans des carottes glaciaires prélevées en Antarctique et au Groenland dans l'étude de Etheridge et al. (1998).

À partir des années 1970, les premiers programmes scientifiques permettant le suivi des concentrations atmosphériques du méthane sur le long terme ont vu le jour et ont ainsi permis de mettre progressivement à jour leur évolution (Graedel and McRae, 1980; Rasmussen and Khalil, 1981) sur les périodes actuelles. Ces programmes ont débuté par de simples campagnes de mesures, puis progressivement un certain nombre de stations de surveillance ont été mises en place afin de pouvoir suivre l'évolution des concentrations en méthane à divers endroits du globe par le biais de prélèvements d'échantillons d'air à l'aide de flacons à une fréquence régulière (mensuelle à bi-mensuelle). Avec le développement des concepts d'inversion atmosphériques et le calcul des flux à l'aide de gradients spatio-temporels de concentrations atmosphériques à petite échelle et grâce au développement des technologies laser, les mesures en continu sur des réseaux étendus et localisés aussi bien dans des endroits reculés (loin de toute pollution anthropique) que près des centres urbains se sont développées. Les réseaux de la NOAA/ESRL (National Oceanic and Atmospheric Administration / Earth System Research Laboratory) (<http://www.esrl.noaa.gov/gmd/ccgg/flask.php>) américaine et du LSCE RAMCES (Yver et al., 2011) ont commencé à se développer à partir de la fin des années 1980. Ils ont été complétés dans les années 2010 par les stations de mesure en continu de

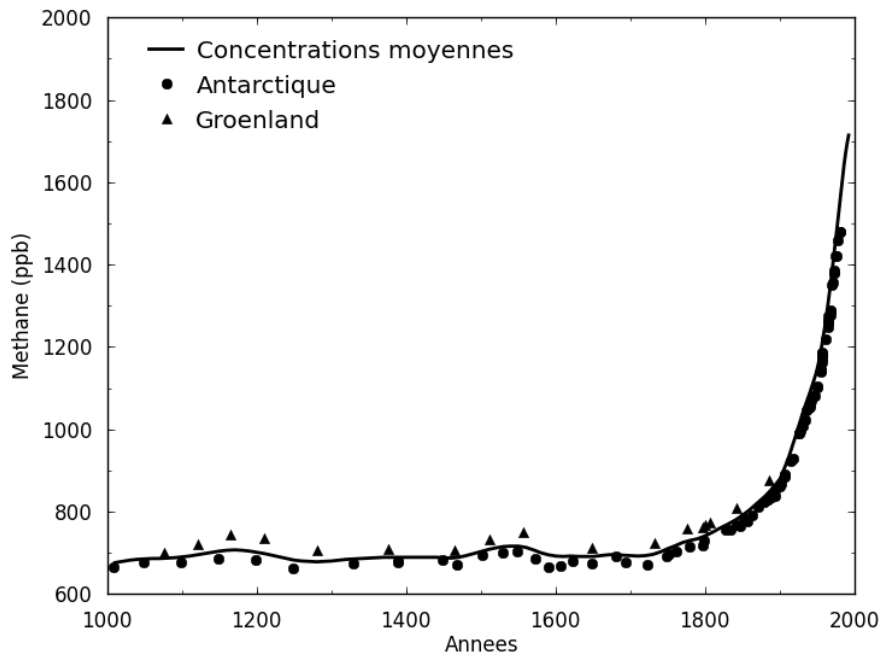


FIGURE 1.1 – Évolution des concentrations atmosphériques de méthane au cours des 1 000 dernières années. Les concentrations sont déterminées à partir de l’analyse de bulles d’air piégées dans des carottes de glace prélevées en Antarctique et au Groenland (Etheridge et al., 1998).

l’infrastructure de recherche ICOS (<https://www.icos-ri.eu/icos-research-infrastructure/icos-national-networks>) et sont représentés sur la figure 1.2.

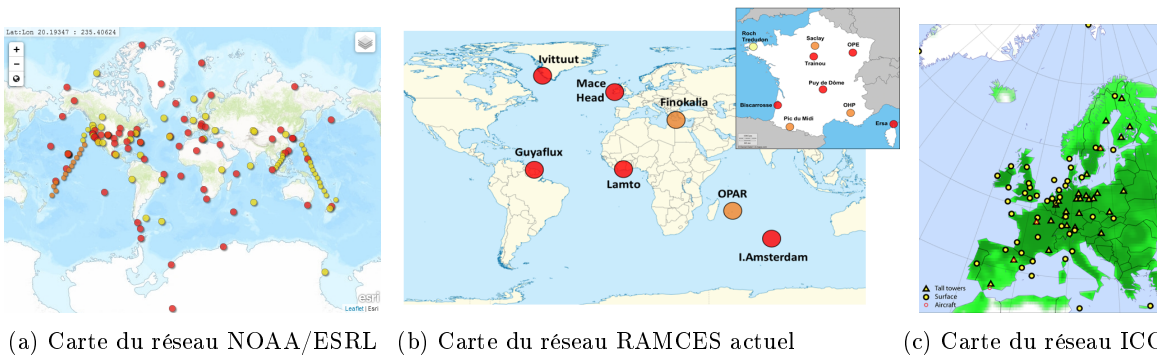


FIGURE 1.2 – Cartes des réseaux de suivi NOAA/ESRL, RAMCES et ICOS.

Grâce à toutes ces mesures, il est ainsi possible de voir qu’avant 1750, les concentrations de méthane étaient relativement stables avec une valeur moyenne d’environ 700 ppb et qu’ensuite ces concentrations se sont mises à augmenter de façon exponentielle pour atteindre en 2016 une valeur moyenne de 1 840 ppb (NOAA, 2016). La proportion de méthane dans l’atmosphère à l’échelle du globe a donc été multipliée par 2,5 depuis le début de la révolution industrielle. Cette augmentation des concentrations de méthane peut être principalement attribuée aux activités humaines, notamment à l’usage de combustibles fossiles, à l’élevage et au traitement des déchets.

Cette augmentation des concentrations atmosphériques de méthane depuis 1750 ne s’est pas faite de manière constante. La diversité des sources de méthane, ajoutée à l’existence d’un puits atmosphérique important et à sa durée de vie, expliquent en partie les variations du taux de croissance du méthane atmosphérique observé depuis trente ans avec des périodes de fortes augmentations ( $\approx 10 \text{ ppb.an}^{-1}$  dans



les années 1980 et depuis 2014), des périodes d'augmentation modérée ( $\simeq 5 \text{ ppb.an}^{-1}$  dans les années 1990 et 2007-2013), et une période de stagnation (1999-2006) comme on peut le voir sur la figure 1.3. Au-delà des variations à long terme, on note des fluctuations importantes d'une année sur l'autre (10-15 ppb d'amplitude) dues à la sensibilité de certaines sources telles que les zones humides (la principale source de méthane) et des puits de méthane aux fluctuations climatiques. Cette variabilité de la concentration atmosphérique et de son taux de croissance se traduit de façon non négligeable en tonnes de méthane ajoutées ou ôtées à l'atmosphère.

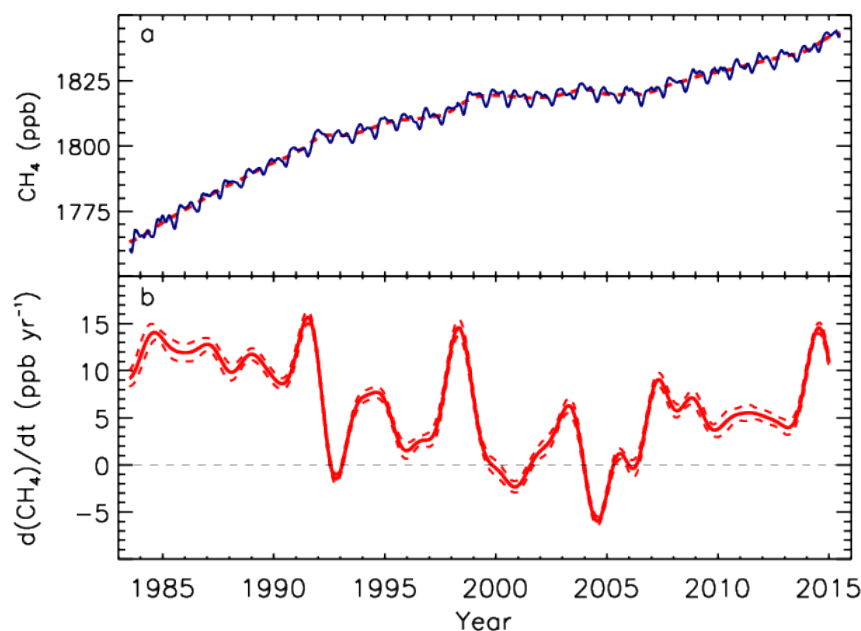


FIGURE 1.3 – Moyenne globale des concentrations en méthane (en ppb) (a) et son taux de croissance annuel (en  $\text{ppb.an}^{-1}$ ) (b) depuis 1985 à partir de quatre programmes de mesures : National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA), Advanced Global Atmospheric Gases Experiment (AGAGE), Commonwealth Scientific and Industrial Research Organisation (CSIRO), et University of California, Irvine (UCI) (Saunio et al., 2016).

### 1.2.2 Les méthodes d'estimation des émissions

Il existe deux grandes familles d'approches.

Dans les approches montantes, les émissions de gaz à effet de serre sont obtenues à l'aide de modèles de processus de génération et d'émission de méthane, de facteurs d'émission, et de données d'activités sectorielles spécifiques émettrices de méthane. Ces inventaires s'appuient sur des travaux de recherche, des mesures pour calibrer les facteurs d'émissions, et des statistiques d'activités qui ne sont pas toujours mis à jour de façon régulière et qui peuvent présenter de fortes incertitudes. Certaines émissions sont difficiles à prendre en compte et à quantifier de façon statistique ou même localement telles que celles dues aux fuites lors de l'extraction des combustibles fossiles ou du transport de gaz naturel qui peuvent être très variables en intensité et dont la localisation n'est pas connue de manière précise. C'est aussi le cas pour les facteurs d'émissions liés au traitement des déchets qui peuvent également varier d'un pays à l'autre ou d'un site à l'autre puisqu'ils sont dépendants de la composition de ces déchets et du type de traitement utilisé et de l'état des installations. Cette approche est celle généralement utilisée pour les inventaires nationaux (EC-JRC/PBL, 2011).

Dans les approches descendantes, on utilise les mesures atmosphériques pour estimer les émissions. La relation entre les deux peut être définie à l'aide d'autres observations comme les concentrations de gaz traceurs (Schmidt et al., 1996; Lopez et al., 2013) (section 2.1) ou bien à l'aide d'un modèle de transport

atmosphérique intégré dans un système d'inversion atmosphérique permettant de trouver les émissions à partir des concentrations (section 2.2). Le modèle atmosphérique et l'échantillonnage par la mesure de concentration atmosphériques doit être adapté à l'échelle spatiale des émissions à déterminer qui peuvent varier de l'échelle planétaire (Bousquet et al., 2006) à l'échelle locale (Korsakissok and Mallet, 2009).

Pour la quantification des flux à l'échelle de sites industriels ou agricoles sur laquelle je me suis concentré dans ma thèse, plusieurs méthodes d'estimation inverses fondées sur des mesures atmosphériques existent. Par exemple, la méthode traceur consiste à émettre un autre gaz appelé traceur à un flux connu de façon à ce qu'il soit colocalisé avec la source de méthane puis de mesurer les concentrations au travers de leur panache d'émission. Le rapport des signaux du méthane et du traceur multiplié par le flux de traceur émis permet de déterminer les émissions de la source de méthane. Le principal problème de cette approche vient de l'hypothèse de colocalisation du traceur avec la source de méthane qui est difficile à mettre en pratique, un site industriel pouvant rarement être considéré comme un émetteur ponctuel. Un autre problème vient de l'échantillonnage des données. En effet, la collecte de mesure dans ce cas est forcément ponctuelle, de l'ordre de quelques heures. L'estimation ne sera donc probablement pas représentative des émissions annuelles et plusieurs campagnes sont nécessaires pour estimer la variabilité des émissions. Il existe aussi différents types de modèles permettant de simuler le transport atmosphérique à l'échelle locale ou régionale dont les plus simples sont les modèles gaussiens qui permettent de modéliser le transport d'un composé du fait de la vitesse du vent et de la dispersion atmosphérique pour des conditions météorologiques constantes et homogènes et un terrain plat et sans bâtiment ou obstacle au transport (Korsakissok and Mallet, 2009). Ces modèles sont simples à mettre à œuvre mais peu adaptés aux terrains complexes et leurs paramètres peuvent être délicats à calibrer. Les modèles de mécanique des fluides (CFD : computational fluid dynamics) vont quant à eux prendre en compte les obstacles et les reliefs susceptibles de perturber le transport atmosphérique mais requièrent un temps de calcul beaucoup plus important (Buccolieri and Sabatino, 2011).

### 1.2.3 Bilan global du méthane atmosphérique

L'évolution du méthane atmosphérique résulte d'un déséquilibre entre les émissions et les puits de méthane. Du fait de l'impact du méthane sur le système climatique, il est donc important de bien comprendre l'évolution des émissions et des puits du méthane atmosphérique. Le méthane est présent dans l'atmosphère sous forme gazeuse. C'est le troisième gaz à effet de serre le plus important après la vapeur d'eau et le dioxyde de carbone. Bien que le méthane soit 200 fois moins concentré que le dioxyde de carbone dans l'atmosphère, environ 20 % du forçage radiatif total actuellement observé lui est attribué (Lelieveld et al., 1998; Minschwaner et al., 1997) car son pouvoir de réchauffement est 28 fois plus fort que celui du dioxyde de carbone pour un horizon de 100 ans (IPCC, 2013). En plus de l'effet direct du méthane sur l'effet de serre, l'eau produite lors de sa dégradation dans la troposphère accentue ce phénomène. Comme pour le dioxyde de carbone, on trouve avec le méthane une rétroaction positive amplifiant le réchauffement climatique qui entraîne la fonte des pergélisols aux hautes latitudes, riches en matière organique, susceptibles de produire du méthane supplémentaire qui à son tour accélérerait le réchauffement. Une autre réaction de ce type, associée à un risque à plus long terme, correspond à la déstabilisation des hydrates de méthane du sous-sol océanique.

Saunoy et al. (2016) ont compilé différentes études utilisant des approches montantes et descendantes afin de déterminer le budget global du méthane et de réduire les incertitudes liées à la grande diversité de ses sources. Dans cette compilation, la somme des puits de méthane atmosphérique s'élève à  $550 \text{ Tg.an}^{-1}$  à l'échelle planétaire ( $1 \text{ Tg} = 10^{12} \text{ g}$ ) et les émissions totales de méthane s'élèvent à  $560 \text{ Tg.an}^{-1}$  [540-570] pour la période de 2003 à 2012 dont environ 60 % serait d'origine anthropique. Avec une concentration moyenne de 1 840 ppb et un cycle qui produit et consomme environ  $550 \text{ Tg.an}^{-1}$ , le méthane a une durée de vie dans l'atmosphère d'environ 9 ans (Prather et al., 2012). La figure 1.4, tirée du cinquième rapport du GIEC (IPCC, 2013), illustre la grande diversité des sources et des puits impliqués dans le bilan global du méthane et des incertitudes associées à chacune d'entre eux.

#### Puits

Le méthane est en très grande partie oxydé dans l'atmosphère (plus de 90 % des puits) et environ 6 % est éliminé par des micro-organismes, les méthanotrophes, dans les couches superficielles des sols secs (Saunoy et al., 2016). Il est dégradé par oxydation lors de sa combustion en présence d'oxygène, mais

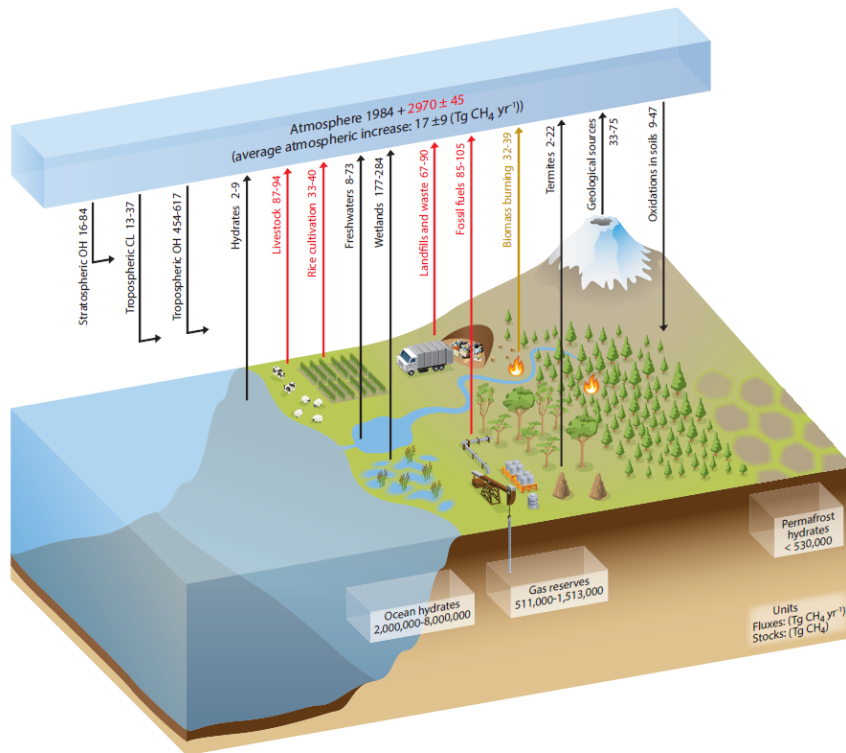


FIGURE 1.4 – Sources et puits de méthane à l’échelle mondiale. Les flèches dirigées vers le haut représentent les sources et celles vers le bas les puits. Les sources anthropogéniques sont représentées par des flèches rouges, les sources naturelles par des flèches noires et les sources pouvant être à la fois naturelles et anthropogéniques en jaune. Les valeurs associées à chaque flèche donnent les flux de méthane et sont exprimés en  $\text{Tg}\cdot\text{an}^{-1}$  (IPCC, 2013).

aussi dans l’atmosphère par le biais des radicaux hydroxyles (source principale) ou par d’autres radicaux dans la stratosphère (oxygène atomique, chlore) et dans la couche limite marine (chlore), ou bien par voie biologique dans les sols par les méthanotrophes qui vont l’utiliser comme source d’énergie (Hanson and Hanson, 1996).

## Sources

Le méthane est émis par une grande diversité de processus aussi bien naturels qu’anthropiques qui peuvent être associés à des sources ponctuelles ou diffuses. Ces processus doivent être compris et quantifiés séparément, certains d’entre eux restent très mal connus ou quantifiés, ce qui limite aujourd’hui notre capacité à faire des projections climatiques (Saunio et al., 2016).

Le méthane est généralement produit lors de la dégradation de molécules organiques plus complexes que ce soit par voie biologique, géologique ou par une dégradation directe des végétaux. La production de méthane par voie biologique fait appel à un type de micro-organismes appelés les méthanogènes qui vivent exclusivement en milieu anaérobie (zone humides, ruminants, traitement des déchets, termites,...). Ces micro-organismes utilisent comme source d’énergie les molécules d’acétates et de formates formées suite à la dégradation et la fermentation de composés plus complexes. La production de méthane par voie géologique se produit dans des conditions de très hautes pressions et températures telles que dans les couches sédimentaires de la croûte terrestre. Cependant ce processus de production de méthane est beaucoup plus lent que celui faisant intervenir des micro-organismes puisqu’il peut prendre plusieurs millions d’années (Tissot and Welte, 1984). La dernière voie de production de méthane intervient lors de la dégradation directe de matière végétale dans les feux de biomasse. Dans ces conditions, la matière organique subit une pyrolyse à haute température qui lui fait perdre son humidité et la transforme en charbon, bitumes et différents gaz dont le méthane.

Les émissions anthropiques peuvent avoir trois origines bien différentes :

- les sources liées à l'exploitation des énergies fossiles que sont le pétrole, le charbon et le gaz naturel. Les émissions de méthane surviennent aussi bien lors de leur production, de leur distribution que de leur combustion, par le biais de fuites lors de leur extraction et de leur acheminement mais aussi du fait de leur combustion incomplète ( $85-105 \text{ Tg.an}^{-1}$ ).
- les sources d'origine microbienne qui proviennent de la décomposition anaérobie de la matière organique aussi bien dans les cultures de riz ( $33-40 \text{ Tg.an}^{-1}$ ), le traitement des déchets (sites de stockage de déchets et stations d'épuration,  $67-90 \text{ Tg.an}^{-1}$ ) ou encore dans les panses des ruminants ( $87-94 \text{ Tg.an}^{-1}$ ).
- les sources liées à la combustion incomplète de biomasse et de biofuel regroupent aussi bien les incendies de forêts que les feux liés à la culture sur brûlis répandue dans certaines parties du monde ( $32-39 \text{ Tg.an}^{-1}$ , anthropiques et naturelles).

La figure 1.5 tirée de Saunois et al. (2016) présente la répartition de différents types de sources naturelles ou anthropiques à l'échelle mondiale. Les zones présentant les plus fortes émissions de méthane dues aux zones humides (marais, tourbières) sont le bassin amazonien, l'Afrique et l'Asie équatoriale, le Canada, la Sibérie occidentale, l'est de l'Inde et le Bangladesh. Les émissions liées à la combustion des énergies fossiles sont essentiellement localisées au niveau des pays développés et des zones d'exploitation des gisements de charbon, de pétrole et de gaz naturel. La catégorie agriculture et déchets inclut à la fois les émissions de méthane provenant des élevages de ruminants, de la culture du riz ainsi que du traitement des déchets solides et liquides. Les émissions de méthane liées à la fermentation entérique, principalement dues aux élevages bovins, sont très variables d'un pays à l'autre, chaque pays ayant des races de bovins et une alimentation différentes. La principale région émettrice de méthane du fait de la culture du riz est l'Asie et plus particulièrement la Chine et l'Inde. Les émissions liées au traitement des déchets dépendent du type d'installations mises en place, de plus fortes émissions sont observées aux États-Unis qu'en Europe où le captage du biogaz produit lors de la dégradation des déchets est obligatoire. Dans les pays en voie de développement, d'importantes décharges à ciel ouvert sont encore utilisées avec les problèmes sanitaires et environnementaux qui y sont associés. Concernant les émissions provenant de la combustion incomplète de biomasse et de biofuel, les zones les plus émettrices sont les régions tropicales et subtropicales où les forêts sont brûlées pour être transformées en zone de culture. La contribution des termites aux émissions mondiales de méthane est sujette à beaucoup d'incertitudes du fait de la méconnaissance de la population de termites suivant les différents écosystèmes et de l'effet que peut avoir le changement de l'affectation des terres sur celle-ci. Les principales zones d'émissions liées à ce phénomène sont l'Amérique du sud, l'Afrique et la région sud-est de l'Asie.

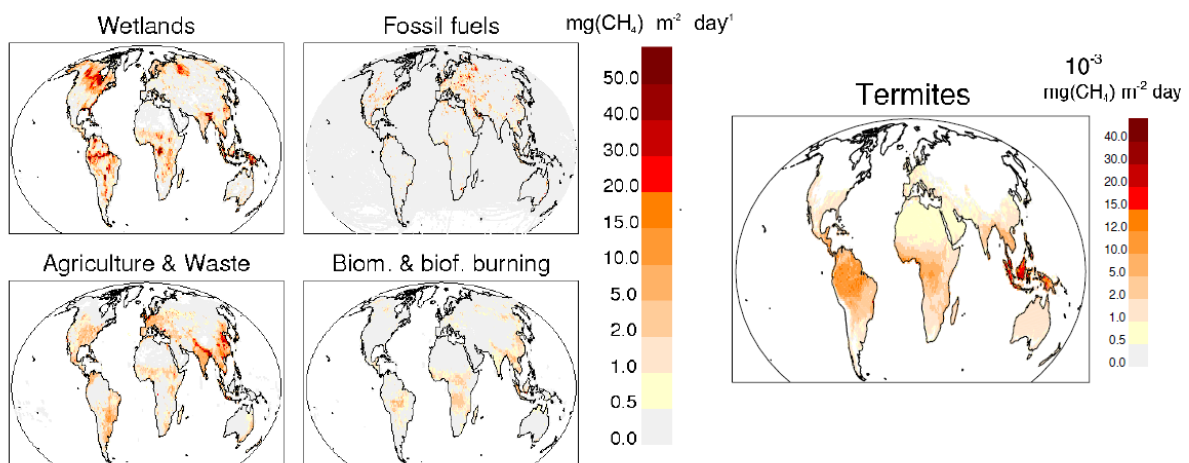


FIGURE 1.5 – Cartes présentant la répartition mondiale des émissions de méthane provenant de cinq types de sources : les zones humides, les énergies fossiles, l'agriculture et les feux de biomasse et de biofuel pour la période 2003-2012 et les termites pour la période 2000-2007. Ces résultats proviennent de l'étude de Saunois et al. (2016) et sont exprimés en  $\text{mgCH}_4.\text{m}^{-2}.\text{jour}^{-1}$ .

Les deux sources anthropiques les plus importantes sont les émissions fossiles et l'élevage, puis viennent

les émissions dues au traitement des déchets, la riziculture et enfin les feux de biomasse. Bien que les différentes sources de méthane soient aujourd'hui bien identifiées, leurs émissions à l'échelle mondiale présentent encore d'importantes incertitudes (Saunois et al., 2016), typiquement de 20-30 % pour les sources anthropiques et jusqu'à plus de 100 % pour les sources naturelles à l'échelle planétaire comme les émissions dues aux zones humides (marais, tourbières...).

Les incertitudes à l'échelle régionale (celle des pays par exemple) sont encore plus grandes, de même que celles des différents secteurs d'émissions à ces échelles comme le montre la figure 1.6 tirée de Saunois et al. (2016). On note que le secteur des déchets est un secteur important pour presque toutes les régions dont les incertitudes sont élevées. Le méthane émis par le secteur du traitement des déchets représente environ 18 % des émissions de méthane anthropique mondiales. En Europe, où les émissions sont d'environ 30 Tg.an<sup>-1</sup> entre 2003 et 2012, on peut noter que les déchets constituent le secteur principal et aussi celui dont l'incertitude est la plus grande.

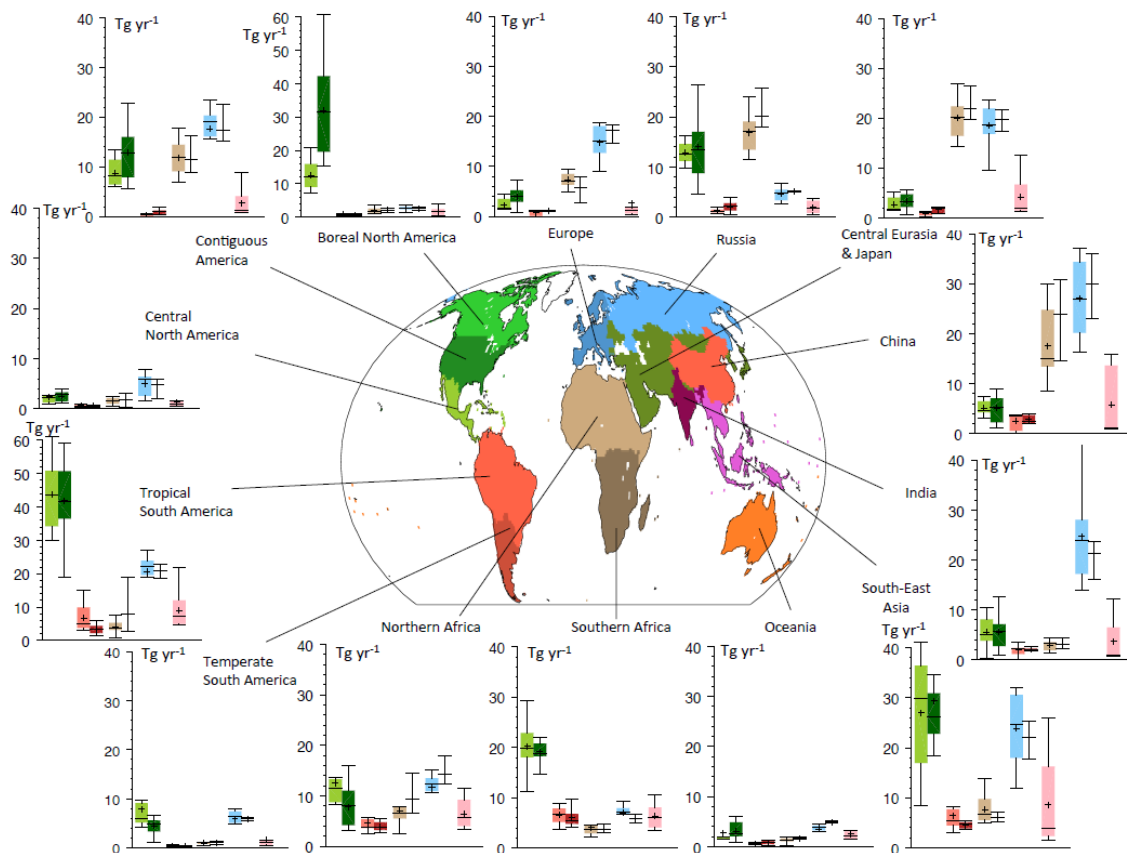


FIGURE 1.6 – Budget régional des émissions de méthane provenant de cinq types de sources de la gauche vers la droite : les zones humides, les feux de biomasse et de biofuel, les énergies fossiles, l'agriculture et les déchets et les autres types de sources naturelles. Pour chaque catégorie, les estimations descendantes sont présentées par la boîte de gauche aux couleurs claires et les estimations montantes par la boîte de droite aux couleurs foncées. Ces résultats proviennent de l'étude de Saunois et al. (2016) et sont exprimés en TgCH<sub>4</sub>.an<sup>-1</sup>.

### 1.2.4 En France

Suite aux différents sommets pour l'environnement, les pays membres de la communauté européenne se sont engagés à réduire leurs émissions de gaz à effet de serre de 20 % d'ici 2020 par rapport aux émissions de 1990. En France, les émissions de dioxyde de carbone et de méthane ont été réduites de 25 et 15 % respectivement entre 1994 et 2014 comme l'illustre pour CH<sub>4</sub> la figure 1.7 réalisée à l'aide des inventaires

d'émission fournis par le CITEPA (<https://www.citepa.org/fr/>), bien au-delà de l'objectif fixé dans le cadre du protocole de Kyoto qui était de ne pas les augmenter. La loi relative à la transition énergétique pour la croissance verte adoptée en 2015 fixe à 40 % les objectifs de réduction du niveau d'émissions de gaz à effet de serre en 2030 et de 75 % en 2050 par rapport au niveau de 1990. Une connaissance approfondie des différentes sources de méthane et de leurs émissions est donc nécessaire afin de mettre en place des politiques d'adaptation et d'atténuation s'appuyant sur des données d'émissions fiables et associées à des certitudes robustes et clairement établies. De plus, l'un des décrets publié en 2011 suite à la mise en place de la loi Grenelle rend obligatoire la réalisation d'un bilan des émissions des gaz à effet de serre par les entreprises de plus de 500 salariés du fait de leur activité. Ce bilan comprend à la fois les émissions directes et indirectes et doit être mis à jour tous les trois ans. Il permet ainsi d'avoir une meilleure vision des émissions à l'échelle locale, et de leur évolution, et va encourager les industriels des secteurs concernés à améliorer les méthodes permettant de quantifier et de vérifier leurs émissions reportées, qui s'appuyaient souvent sur peu de mesures non régulièrement renouvelées. En France, le secteur des déchets est le deuxième secteur anthropique le plus émetteur de méthane après l'agriculture avec 27 % des émissions de méthane anthropique en 2014 (CITEPA), ce qui représente une quantité de  $622 \text{ kt.an}^{-1}$  dont 86 % proviennent du stockage de déchets non dangereux et 12 % des stations d'épuration. Le secteur des déchets est donc important en France à la fois en terme d'émissions de gaz à effet de serre mais aussi du point de vue du potentiel de l'activité économique générée (par exemple la "Wagabox" de WAGA ENERGY utilisé notamment à Grenoble). En effet, le traitement des déchets génère du biogaz ayant une forte teneur en méthane qui peut être valorisé en une énergie renouvelable puisqu'il va permettre la production d'électricité et de chaleur.

La réduction des émissions du secteur des déchets peut contribuer à atteindre les objectifs fixés en France et en Europe avec une excellente efficacité comparée à d'autres secteurs et d'autres gaz à effet de serre (IPCC, 2007). En effet, ces émissions sont principalement composées de méthane dont la courte durée de vie dans l'atmosphère induit une diminution du forçage radiatif, et donc de l'effet de serre, plus rapide que pour le dioxyde de carbone. Une autre raison est qu'il s'agit d'émissions localisées (i.e. provenant de sites) qui peuvent être un peu moins complexes à aborder d'un point de vue scientifique et sociétal que les émissions diffuses comme l'agriculture ou les transports, impactant directement notre alimentation et notre mode de vie.

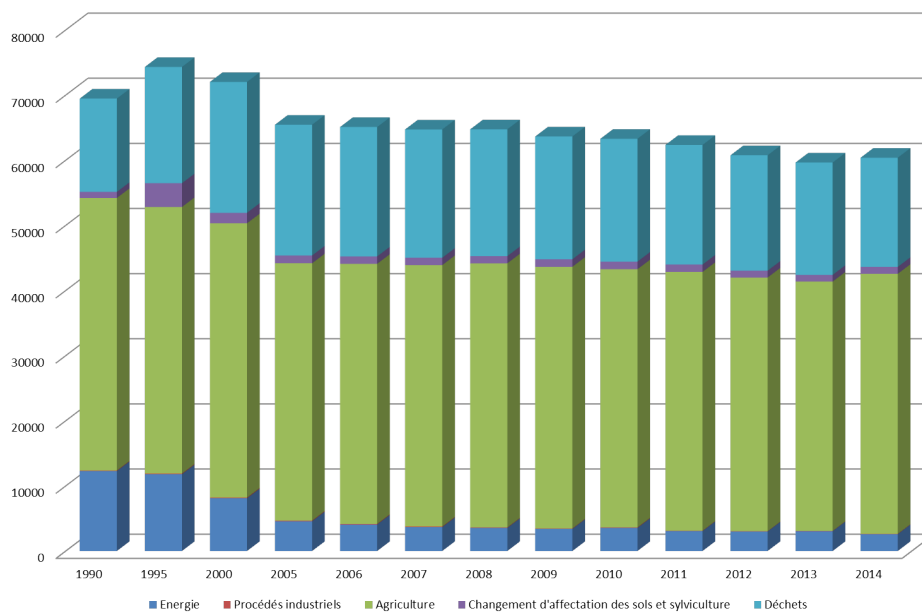


FIGURE 1.7 – Émissions de méthane anthropiques par secteur en France depuis 1990 à partir des inventaires d'émission fournis par le CITEPA. Les valeurs sont exprimées en Gg  $\text{CO}_2$  équivalent (1 Gg =  $10^9$  g).

### 1.3 Objectifs de la thèse

Dans ce contexte, l'objectif de mon travail de thèse est d'améliorer les estimations des émissions de méthane à l'échelle du site industriel et en particulier dans le secteur des déchets grâce au développement, au test, et à la documentation d'une nouvelle méthode d'estimation fondée sur les approches descendantes avec mesure et modélisation atmosphérique, appliquée à différents types de sources et permettant de lever certaines difficultés rencontrées avec les méthodes d'estimation existantes. Pour cela, j'ai participé à une dizaine de campagnes de mesure sur sept sites industriels ou agricoles différents. La majorité des sites industriels faisaient partie du secteur des déchets afin d'avoir une meilleure idée des facteurs d'émissions ou de leurs variations d'un site à l'autre. En amont, j'ai participé au test de l'instrumentation utilisée et à la préparation de nos interventions. Pendant les campagnes, j'ai effectué de nombreuses mesures que j'ai ensuite analysées en utilisant plusieurs outils afin de passer des concentrations aux émissions de méthane. Au final, j'ai développé une nouvelle méthode que j'ai appliquée à plusieurs des jeux de mesures que j'ai obtenus ou contribué à obtenir.

La méthode développée consiste à associer une approche traceur, basée sur des mesures de concentrations atmosphériques, avec un modèle de transport, à base de panaches gaussiens, et à les intégrer au sein d'un système d'inversion statistique. L'idée ici est bien de tirer parti des avantages de ces trois outils de la meilleure façon possible. La nouveauté de cette approche réside dans l'utilisation des informations apportées par la méthode traceur sur le transport atmosphérique afin d'optimiser la paramétrisation du modèle gaussien et de déterminer l'erreur associée au modèle dans le cadre de l'inversion statistique.

Ce manuscrit s'organise en trois parties. Dans un premier temps, je présente la nouvelle méthode développée et ses différents composants (instrumentation, méthode traceur, modèle gaussien, inversion) ainsi que les premiers tests conduits en émettant de façon contrôlée à la fois le gaz traceur et le méthane. Ces essais ont permis de démontrer l'utilité de l'association des différents composants et de mieux comprendre les erreurs d'estimation de la méthode traceur classique liées à une mauvaise colocalisation du traceur avec les émissions de méthane (chapitre 2). Dans un deuxième temps, j'ai appliqué cette nouvelle méthode sur deux sites pour quantifier leurs émissions de méthane : une exploitation agricole et un site industriel de compression et de distribution de gaz (chapitre 3). Dans un troisième temps, j'expose plus particulièrement la mise en œuvre des méthodologies développées pour estimer les émissions de méthane liées au secteur des déchets. Ces travaux ont été menés en organisant des campagnes de mesures sur plusieurs sites de stockage de déchets non dangereux et plusieurs stations d'épuration en France et en Europe. À l'issue de cette démarche scientifique, nous avons été en mesure de comparer les émissions estimées pour les stations d'épuration aux facteurs d'émission utilisés dans les inventaires nationaux (chapitre 4).

---

## Méthodes de quantification des émissions de méthane d'un site

---

### Sommaire

2.1	Mesures atmosphériques et méthode traceur . . . . .	13
2.1.1	Principe de la méthode traceur . . . . .	13
2.1.2	Méthode de mesure : la spectroscopie à cavité résonnante . . . . .	15
2.1.3	Mise en œuvre de l'instrumentation . . . . .	16
2.2	Modélisation atmosphérique . . . . .	18
2.2.1	Modèles de dispersion . . . . .	18
2.2.2	Simulation du transport atmosphérique à l'échelle locale à l'aide d'un modèle de panache gaussien . . . . .	19
2.3	Méthode d'inversion . . . . .	23
2.3.1	Inversion déterministe . . . . .	23
2.3.2	Inversion statistique sans prior (moindres carrés) . . . . .	23
2.3.3	Inversion statistique avec une approche bayésienne . . . . .	24
2.4	Inversion statistique gaussienne paramétrée avec les données du gaz traceur . . . . .	25
2.4.1	Principe de la combinaison de la méthode traceur et du modèle gaussien dans le cadre d'une inversion statistique . . . . .	25
2.4.2	Application dans le cadre d'émissions contrôlées de méthane . . . . .	26
2.4.3	Publication : Statistical inversion of gas emissions from point sources coupling the tracer release technique and Gaussian plume modelling : a methane test case in controlled conditions . . . . .	29

---



Le secteur industriel est l'un des deux principaux émetteurs de méthane en France (environ 25 % des émissions anthropiques selon l'inventaire du CITEPA en regroupant le secteur de l'énergie, du traitement des déchets et les autres procédés industriels). Ces émissions sont généralement associées à des sites industriels spécifiques tels que les sites d'extraction de gaz naturel ou les décharges mais peuvent également provenir de fuites au niveau de conduites de gaz par exemple. Ces sites, d'une superficie typique de 100 à 500 m<sup>2</sup>, sont susceptibles de présenter de multiples sources de méthane sous forme de points sources et/ou de sources diffuses. L'estimation de ces émissions et de ces sources basées sur des données statistiques est difficile du fait de la diversité et de la variabilité temporelle des phénomènes impliqués.

Parmi les différentes techniques de quantification des émissions de méthane existantes, la méthode traceur permet d'obtenir des estimations ponctuelles correspondant à la période pendant laquelle les mesures sont réalisées. Cette méthode est basée sur des mesures mobiles et continues des concentrations au travers des panaches d'émission du gaz que l'on veut quantifier et d'un gaz traceur émis à côté de ("colocalisé avec") la source de polluant étudiée avec un débit connu. En général, les mesures des concentrations de méthane au travers des sections panaches sont réalisées à une distance comprise entre 500 m à 3 km du site (Czepiel et al., 1996) selon l'importance de ses émissions, la précision des instruments utilisés et les variations des concentrations de fond (liées à d'autres sources distantes) du gaz étudié. Dans ces conditions le méthane peut être considéré comme une espèce passive et son transport atmosphérique comme étant linéaire. La connaissance du rapport entre le flux de traceur émis et l'amplitude du panache associé peut alors être utilisée pour estimer le rapport entre le flux de méthane et l'amplitude du signal associé et permettre ainsi d'estimer le flux de méthane. À ces distances, l'augmentation des concentrations en méthane lors de la traversée du panache est relativement faible (de l'ordre de quelques dizaines à quelques centaines de ppb) nécessitant l'utilisation d'appareils de mesures suffisamment précis pour être capables de détecter de telles variations de concentrations. La méthode traceur présente un certain nombre de limites : une mauvaise colocalisation du traceur avec la source de polluant ou la présence de sources diffuses sur le site étudié (rendant la question de colocalisation d'autant plus complexe) et les variations temporelles des sources peuvent notamment entraîner des erreurs importantes dans l'estimation des émissions avec cette méthode. De plus, elle permet de donner une estimation des émissions totales d'un site mais peut plus difficilement être utilisée pour estimer séparément les émissions des différentes sources du site.

D'autres méthodes font appel à des modèles de dispersion atmosphérique à l'échelle locale, comme les modèles gaussiens, pour simuler le transport du polluant de sa source à l'endroit où sont réalisées les mesures. Ces modèles, basés sur le principe de conservation de la masse, utilisent les données météorologiques pour prédire l'augmentation des concentrations d'une espèce dans l'espace en fonction de la localisation de sa source et de son flux d'émission. Les concentrations mesurées permettent alors de déduire une estimation du flux de l'espèce étudiée. Ces modèles sont aussi bien capables de prendre en compte des points sources que des sources étalées ou des sources multiples et permettent ainsi en théorie de déterminer séparément les émissions des différentes sources d'un site. Le principe de cette méthode est relativement simple mais le modèle de transport présente des incertitudes, notamment le transport sur de courtes distances caractérisé par des structures turbulentes complexes qui sont difficiles à modéliser.

Enfin, l'inversion statistique permet d'obtenir des estimations des émissions des différentes sources en tenant compte de ces incertitudes liées au modèle et aux mesures et en exploitant une connaissance *a priori* sur ces sources, mais l'estimation de ces incertitudes et de l'incertitude sur la connaissance *a priori* des flux que l'on cherche à estimer reste l'une des difficultés de cette approche.

Cette étude a pour objectif de développer une méthode robuste de quantification des émissions de méthane à l'échelle du site en combinant la méthode traceur et un modèle gaussien dans un protocole d'inversion statistique. Le principe repose sur l'utilisation de l'information apportée par les concentrations en traceur mesurées, connaissant le flux émis, pour caractériser les conditions atmosphériques durant les mesures et optimiser le choix des paramètres du modèle gaussien. Les concentrations en traceur mesurées nous permettent également d'évaluer l'erreur liée au modèle dans le système d'inversion statistique.

Le principe des différentes composantes combinées dans cette nouvelle approche est présenté en détail dans ce chapitre, à savoir la méthode traceur (section 2.1), le modèle gaussien (section 2.2) et l'inversion statistique (section 2.3.3). Puis l'inversion statistique contrainte par la méthode traceur et son application à une série de cas tests académiques avec des émissions de traceur et de méthane contrôlées, qui sont l'objet d'un article joint à ce chapitre, sont détaillées dans la section 2.4.

## 2.1 Mesures atmosphériques et méthode traceur

### 2.1.1 Principe de la méthode traceur

L'utilisation de gaz traceurs a déjà été largement employée par le passé dans de nombreuses études afin d'évaluer l'efficacité des modèles à représenter la dispersion atmosphérique et à prédire les champs de concentrations en polluants à proximité de sources industrielles (Lamb et al., 1978) ou de certaines structures susceptibles de provoquer des turbulences, comme celles engendrées par des véhicules roulant à grande vitesse sur les autoroutes (Eskridge et al., 1979). La méthode traceur a par la suite été développée pour quantifier directement ces émissions locales pour des polluants tels que le méthane. Cette méthode consiste à émettre un gaz traceur à un flux connu le plus près possible des sources de méthane. Lorsque les sources de traceur et de méthane sont parfaitement colocalisées, constantes dans le temps et que le transport atmosphérique est linéaire (les gaz sont considérés comme non réactifs étant donné les échelles de temps et d'espace étudiées), les variations spatiales et temporelles de leurs concentrations dans l'atmosphère sont similaires. En mesurant donc leurs concentrations au travers d'une section de leur panache d'émission, le flux d'émission du méthane peut être estimé grâce au flux du gaz traceur en utilisant la formule ci-dessous :

$$f_m = f_t \times \frac{p_m}{p_t} \quad (2.1)$$

Dans cette équation,  $f_m$  est le flux de méthane de la source que l'on cherche à estimer,  $f_t$  est le flux de traceur émis de façon contrôlée,  $p_m$  et  $p_t$  sont des indicateurs de l'amplitude des concentrations en méthane et en traceur au-dessus de leur concentration de fond mesurées au travers d'une section de leur panache d'émission.

Les premières études utilisant la méthode traceur faisaient appel à des mesures statiques du panache d'émission dans lesquelles les concentrations de méthane et de traceur étaient mesurées à certaines localisations fixes en aval des sources dans la direction du vent et donc dans le panache d'émission pendant la plus grande partie de l'expérience (Lamb et al., 1978). Czepiel et al. (1996) sont les premiers à avoir fait appel à des mesures mobiles à travers les panaches afin de quantifier les émissions d'une décharge. D'une part, ces mesures mobiles en temps réel permettent d'avoir une meilleure idée de la forme générale du profil des concentrations à travers le panache puisque les concentrations sont mesurées sur l'ensemble de la section plutôt qu'au niveau de quelques points. D'autre part, elles donnent la possibilité de s'adapter à un changement de la direction du vent et de savoir rapidement si les panaches d'émission du traceur et du méthane sont bien colocalisés grâce à l'étude de leur forme relative.

Le déploiement de la méthode traceur dynamique nécessite l'installation des instruments de mesures à bord d'un véhicule afin de pouvoir mesurer de façon quasi-instantanée l'augmentation des concentrations en traceur et en gaz étudié au travers de leur panache d'émission par rapport à leur concentration de fond (figure 2.1). Cette technique a par la suite été utilisée dans plusieurs études et a permis de quantifier les émissions de méthane provenant de différents types de sources tels que des exploitations de gaz naturel (Goetz et al., 2015; Roscioli et al., 2015), des zones urbaines (Lamb et al., 1995), des exploitations agricoles élevant des ruminants (Marik and Levin, 1996), des décharges (Czepiel et al., 1996; Hensen and Scharff, 2001; Mønster et al., 2015) ou des stations d'épuration (Yver Kwok et al., 2015).

Le ratio entre le signal du méthane et celui du traceur peut être calculé en utilisant la concentration maximale mesurée lors de la traversée d'une section du panache d'émission de chacun des deux gaz. Il est également possible d'intégrer l'aire entre les concentrations mesurées lors de ces traversées et les concentrations de fond des deux espèces définies comme la valeur du cinquième percentile des concentrations de chaque traversée. Lorsque le traceur et la source de méthane sont parfaitement colocalisées et toutes deux constantes, ces deux méthodes donnent les mêmes résultats. Cependant, il est souvent difficile de parfaitement colocaliser les sources de traceur et de méthane et/ou d'avoir une source de méthane relativement constante, on préfère donc utiliser le ratio des intégrales de signaux afin de minimiser l'impact que pourrait avoir cette mauvaise colocalisation sur l'estimation des émissions étant donné qu'il est moins sensible aux fines structures turbulentes (Mønster et al., 2014). Les sites industriels sont également susceptibles de présenter de multiples sources dont certaines peuvent être diffuses rendant le principe de la colocalisation du traceur encore plus complexe et entraînant des erreurs dans l'estimation des émissions. Pour essayer de contourner cette difficulté, il est possible d'essayer de quantifier séparément les émissions de chacune des sources du site en plaçant alternativement le traceur au niveau de chacune d'entre elles puis de calculer les émissions totales du site en additionnant les estimations des émissions des différentes sources. Dans ce cas de figure, le rapport des indicateurs de l'amplitude des concentrations en méthane et

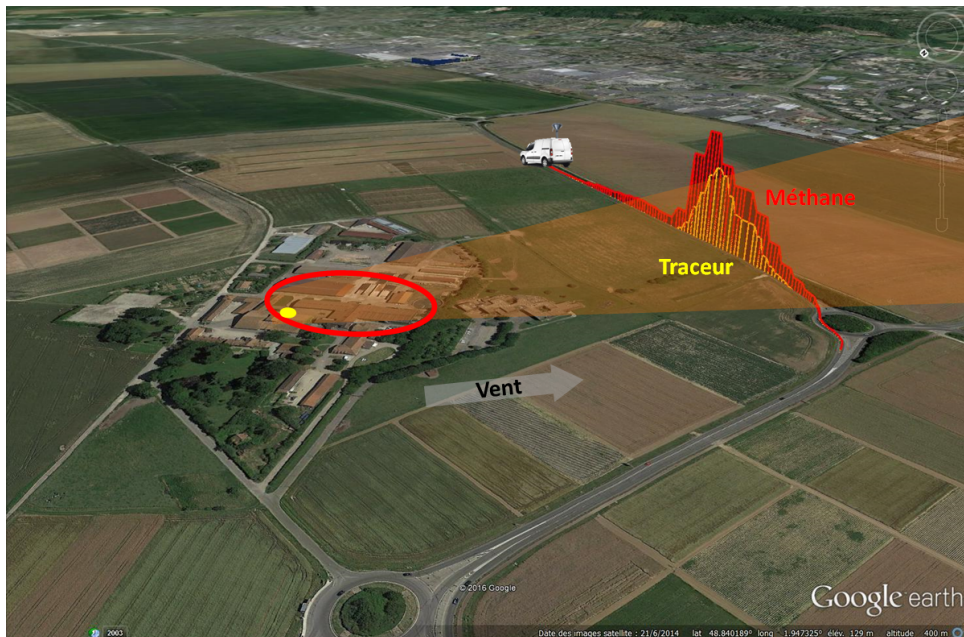


FIGURE 2.1 – Schéma présentant la méthode traceur dynamique, le cercle rouge indique la zone où les émissions de méthane sont susceptibles de se produire, le point jaune signale la position de la source de traceur et les courbes représentent les concentrations en traceur (jaune) et en méthane (rouge) supérieures à leur concentration de fond respective mesurées au travers du panache d'émission provenant de ce site sur une route à proximité.

en traceur ne peut être calculé en intégrant l'aire entre les concentrations mesurées durant les traversées du panache et les concentrations de fond du traceur et du méthane étant donné que les panaches d'émission des différentes sources se chevauchent et ont donc un impact sur la forme et l'aire de la section du panache. Pour prendre uniquement en compte la source étudiée, on utilise le rapport des concentrations maximales du traceur et du pic colocalisé avec le signal du traceur. Il est également possible de calculer le rapport des aires sous les profils de concentrations uniquement pour une partie de la traversée du panache d'émission où le signal de la source étudiée est cohérent spatialement avec celui du traceur. La sélection de la partie du panache d'émission utilisée est effectuée en calculant la corrélation entre les concentrations de méthane et d'acétylène. La figure 2.2 donne un exemple de profil de concentrations mesuré pour un site ayant plusieurs sources de méthane. Les concentrations en méthane et en acétylène (traceur) mesurées lors de la traversée d'une section du panache d'émission sont respectivement présentées sur les graphiques du haut et du bas. Le graphique du milieu présente les corrélations entre les concentrations en méthane et en acétylène calculées sur une zone de taille croissante à partir du début du panache d'émission. Sur ce profil, on remarque que dans un premier temps les concentrations de méthane et d'acétylène augmentent simultanément, atteignent un maximum de concentration puis diminuent. Pour toute cette partie de la traversée correspondant au panache d'émission de la source de méthane colocalisée au traceur, on va avoir une corrélation entre les concentrations de méthane et d'acétylène importante ( $\approx 0,9$ ). Puis les concentrations de méthane augmentent de nouveau, du fait des émissions d'une autre source alors que les concentrations d'acétylène atteignent de nouveau leur concentration de fond entraînant une diminution de leur corrélation. La partie de la traversée sélectionnée pour l'intégration des aires entre les concentrations mesurées et les valeurs de fond des deux espèces correspond donc au début du panache, lorsque les corrélations entre les deux concentrations sont les plus élevées (partie entre pointillés).

L'estimation séparée des émissions des différentes sources du site est toutefois difficile à mettre en œuvre car elle nécessite de répéter l'opération pour chaque source et cela peut devenir fastidieux de traverser une dizaine de fois le panache d'émission pour chaque source lorsque le site en comprend cinq ou six. De plus, cette approche nécessite des conditions météorologiques spécifiques permettant d'avoir des panaches d'émission des différentes sources partiellement séparés.

Lors des diverses études évoquées précédemment, différents gaz traceurs ont été utilisés. Le premier d'entre eux est l'hexafluorure de soufre ( $\text{SF}_6$ ) qui présente l'inconvénient d'être un gaz à effet de serre

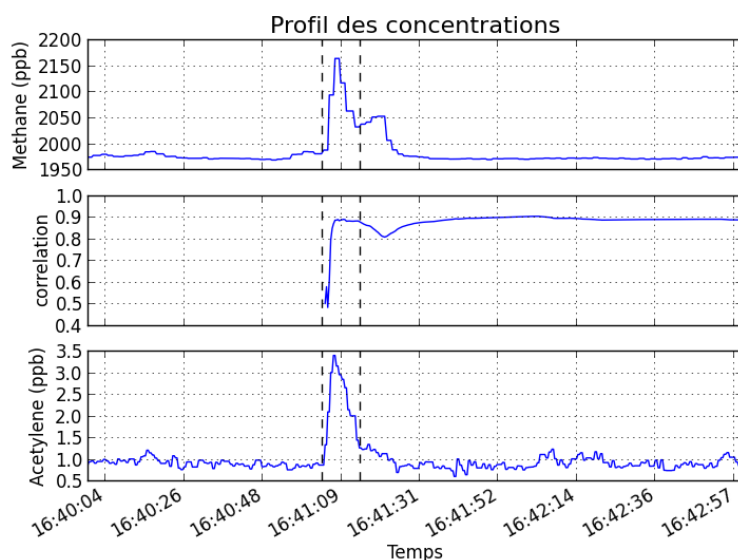


FIGURE 2.2 – Exemple de l’utilisation de la corrélation entre le méthane et l’acétylène pour sélectionner une partie du signal où le traceur est colocalisé avec la zone à estimer pour le calcul des émissions. Les concentrations en méthane et en acétylène sont respectivement présentées sur les graphiques du haut et du bas. Le graphique du milieu représente la corrélation entre ces deux concentrations calculées sur une zone de taille croissante à partir du début du panache d’émission. Dans cet exemple, on voit que dans un premier temps les deux signaux sont bien corrélés, puis que cette corrélation diminue par la suite du fait de l’influence des sources de méthane non-colocalisées avec le traceur. La zone sélectionnée pour le calcul des émissions est donc celle entre pointillés où la corrélation entre les deux signaux est la plus importante.

avec un très fort pouvoir de réchauffement global (PRG) de 23 500 pour une durée considérée de 100 ans (IPCC, 2013). Il a donc très vite été remplacé par d’autres gaz tels que le protoxyde d’azote ( $N_2O$ ) qui est lui aussi un gaz à effet de serre mais dont le PRG est nettement inférieur à celui du  $SF_6$  (298 pour 100 ans (IPCC, 2013)). Plus récemment, le gaz traceur utilisé est l’acétylène ( $C_2H_2$ ) qui n’a pas d’impact direct sur l’effet de serre. Il présente toutefois l’inconvénient d’être inflammable et son utilisation requiert donc un certain nombre de précautions. Ces changements de gaz traceur ont été permis grâce au développement d’instruments de mesures de plus en plus performants, capables de mesurer ces espèces et pouvant être utilisés pour des applications mobiles.

### 2.1.2 Méthode de mesure : la spectroscopie à cavité résonnante

La mesure mobile de faibles concentrations de méthane et de traceur à travers leur panache d’émission nécessite un instrument peu sensible aux secousses, précis et possédant un temps de réponse rapide. Plusieurs types de d’instruments reposant sur différentes techniques d’analyse ont déjà été utilisés comme la spectroscopie à diode laser accordable (TDL) (Hensen and Scharff, 2001) ou la spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR) (Scheutz et al., 2011). L’instrument utilisé au cours de cette étude repose sur le principe de spectroscopie à cavité résonnante (CRDS) développé par O’Keefe and Deacon (1988). Ce système est composé d’une cavité contenant un système de miroirs dans laquelle le gaz à analyser est introduit sous des conditions de pression et de température contrôlées (140 Torr et 45 °C). Comme le montre la figure 2.3, une impulsion laser est émise au sein de la cavité et se réfléchit sur le système de miroirs. La décroissance de l’intensité du signal est mesurée à l’aide d’un détecteur situé derrière l’un des miroirs.

Lorsque la cavité est vide, la diminution de l’intensité lumineuse du faisceau laser dépend uniquement du pouvoir réflecteur des miroirs et de la longueur de la cavité. Lorsque la cavité est remplie de gaz, l’exci-

tation des molécules entraîne des pertes supplémentaires d'intensité lumineuse et donc une décroissance plus rapide de l'intensité lumineuse.

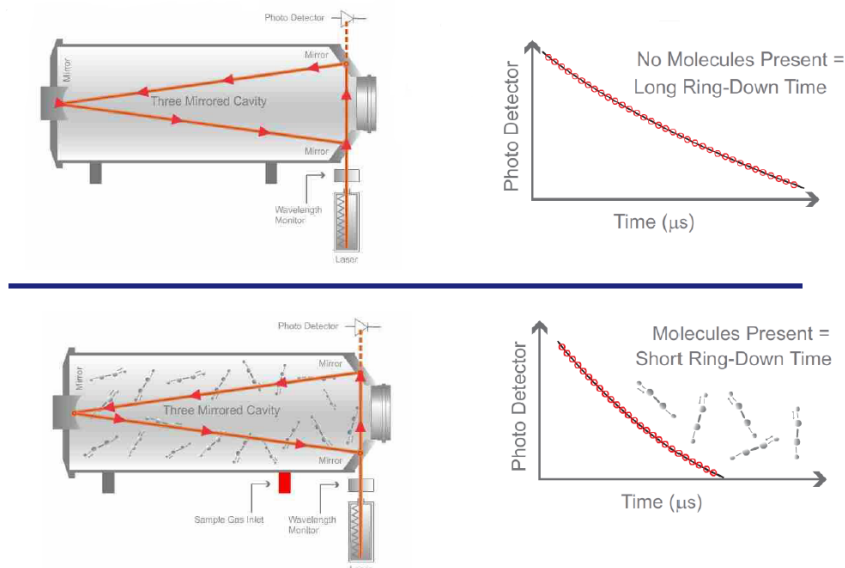


FIGURE 2.3 – Schéma représentatif du fonctionnement de la spectroscopie à cavité résonnante. La courbe du haut représente la diminution de l'intensité lumineuse lorsque la cavité est vide et la courbe du bas lorsque la cavité est remplie de gaz à analyser (Schéma tiré de la documentation Picarro (<https://www.picarro.com/>)).

Ce phénomène est illustré par la figure 2.3 sur laquelle le schéma du haut représente la diminution de l'intensité lumineuse lorsque la cavité est vide et le schéma du bas cette même décroissance en présence d'un gaz à analyser. Le temps de décroissance de l'intensité lumineuse est mesuré et permet de déterminer la concentration du gaz étudié au sein de la cavité.

Cette technique présente l'avantage d'être d'une très grande sensibilité du fait de son système de miroirs permettant de travailler avec une longueur de chemin optique équivalente à plusieurs dizaines de kilomètres. De plus, la spectroscopie à cavité résonnante mesure la décroissance temporelle de l'intensité lumineuse à l'intérieur de la cavité, ce qui permet de s'affranchir de la sensibilité aux fluctuations d'intensité de la source laser. L'avantage de ce type d'instrument est qu'il nécessite beaucoup moins de calibrations que les techniques utilisées antérieurement (i.e. spectroscopie infrarouge non dispersive) puisque, pour les précisions de 3 ppb requises dans ce travail, une calibration mensuelle est suffisante tout en assurant une très bonne précision des mesures. Pour le méthane, la précision de ce genre d'instrument est de l'ordre de quelques ppb (1-10 ppb) convenant parfaitement pour les signaux de plusieurs dizaines à plusieurs centaines de ppb que nous cherchons généralement à mesurer.

### 2.1.3 Mise en œuvre de l'instrumentation

#### 2.1.3.1 Plateforme analytique utilisée

L'analyseur CRDS utilisé au cours des différentes campagnes (modèle G2203, Picarro, Inc., Santa Clara CA) possède deux modes de mesures différents :

- Un mode dans lequel il mesure simultanément le dioxyde de carbone et le méthane.
- Un mode dans lequel il mesure simultanément le méthane et l'acétylène.

Afin d'utiliser l'instrument de façon mobile, celui-ci est branché à un système comprenant un convertisseur permettant d'utiliser directement la batterie du véhicule comme source d'énergie et un système de pompes afin d'augmenter le débit d'analyse et ainsi améliorer le temps de réponse de l'instrument. Pour compléter ce système, un GPS de haute précision (Hemisphere A21 Antenna) permet d'obtenir les coordonnées de

chaque point de mesure. Ce système a déjà été utilisée pour la quantification des émissions de méthane d'une station d'épuration (Yver Kwok et al., 2015).

### 2.1.3.2 Test des performances de l'instrument

Un certain nombre de paramètres de l'analyseur utilisé lors de nos différentes campagnes de mesures, tels que la répétabilité de ses mesures en continue, sa répétabilité à court terme ou sa répétabilité à long terme, ont été testés afin de s'assurer qu'il permette la mesure de concentrations de méthane au travers des sections de panaches d'émission sur des échelles de temps relativement courtes. Ces paramètres nous permettent notamment de tester le bruit des mesures de l'instrument. Les résultats obtenus pour chacun de ces tests sont présentés dans le tableau 2.1.

TABLE 2.1 – Tableau récapitulatif des résultats obtenus lors des tests réalisés sur l'analyseur CRDS.

	Répétabilité des mesures en continue (1 min)	Répétabilité des mesures en continue (1 h)	Répétabilité à court terme	Répétabilité à long terme	Dépendance des mesures à la température
CH <sub>4</sub>	0,24 ppb	0,09 ppb	0,12 ppb	0,14 ppb	0,2 ppb/°C

La répétabilité des mesures continues (RMC), souvent nommée précision dans les documents techniques, correspond à la justesse des mesures obtenues avec l'instrument. Elle correspond à l'écart-type des mesures calculé selon la formule :

$$\sigma = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (x_i - \bar{x})^2} \quad (2.2)$$

où N est le nombre de mesures,  $x_i$  correspond à chacune des mesures et  $\bar{x}$  est la moyenne de l'ensemble de ces mesures.

En pratique, la RMC est déterminée en analysant un même gaz de concentration connue pendant une période de 24 heures et en utilisant la formule 2.2 sur la série de mesures obtenue. Cette RMC peut être déterminée pour différentes échelles de temps en moyennant les concentrations mesurées sur ces périodes. Les concentrations mesurées lors de ce test sont présentées sur le graphique 2.4a pour lequel les points oranges, rouges et noirs représentent respectivement les concentrations moyennées toutes les 5 secondes, toutes les minutes et toutes les heures. Sur ce graphique, on remarque qu'il est important de préciser sur quelle période est calculée la RMC puisque l'écart-type diminue lorsque les concentrations sont moyennées sur une plus longue durée. Ces tests ont permis de déterminer que notre instrument avait respectivement une précision pour le méthane de 0,24 et 0,09 ppb pour une période d'une minute et d'une heure (une traversée de panache dure généralement 1 à 2 minutes).

La répétabilité à court terme (RTC) évalue la capacité d'un instrument à obtenir la même valeur d'un échantillon lorsqu'on intercale la mesure d'un autre échantillon. Il est testé en analysant une bouteille de gaz de concentration en méthane connue toutes les 20 minutes en alternance avec de l'air ambiant pendant quelques heures et en calculant l'écart-type de la concentration moyenne de chaque séquence. Ce paramètre est d'autant plus important que durant nos campagnes, nous sommes généralement amenés à traverser le panache d'émission à plusieurs reprises sur une période relativement courte de l'ordre d'une à deux heures. Les résultats obtenus pour ce test sont présentés sur le graphique 2.4b, la RTC de l'instrument pour le méthane est estimée à 0,12 ppb.

La répétabilité à long terme (RLT) évalue la stabilité de l'instrument sur le long terme. Ce paramètre est testé en analysant une bouteille de gaz de concentration en méthane connue toutes les 5 heures en alternance avec de l'air ambiant sur une durée totale de 30 heures et en calculant l'écart-type de la concentration moyenne de chaque séquence. Les résultats obtenus pour ce test sont présentés sur le graphique 2.4c, la RLT de l'instrument pour le méthane est estimée à 0,14 ppb.

Le dernier paramètre testé de l'analyseur CRDS est l'influence de la température sur ses mesures. Pour ce faire, une bouteille dont la concentration en méthane est connue est analysée de façon continue tout en modifiant la température ambiante sur une plage de 20 à 32 °C. Les résultats obtenus lors de ce test sont présentés sur le graphique 2.4d et nous permettent d'estimer que l'instrument a une dépendance de 0,2 ppb/°C pour le méthane.

Cette série de tests a permis de montrer que l'analyseur CRDS utilisé est parfaitement adapté aux mesures mobiles étant donné que l'augmentation des concentrations typiques de méthane mesurées au

travers des panaches d'émission sont généralement comprises entre 10 et 500 ppb, la RMC de l'instrument ainsi que sa RCT et sa RLT sont donc largement suffisantes pour notre utilisation. Sa légère dépendance aux changements de température pour le méthane n'est pas non plus un problème étant donné qu'il est installé dans un véhicule dont la température intérieure est relativement régulable à plus ou moins 5 °C.

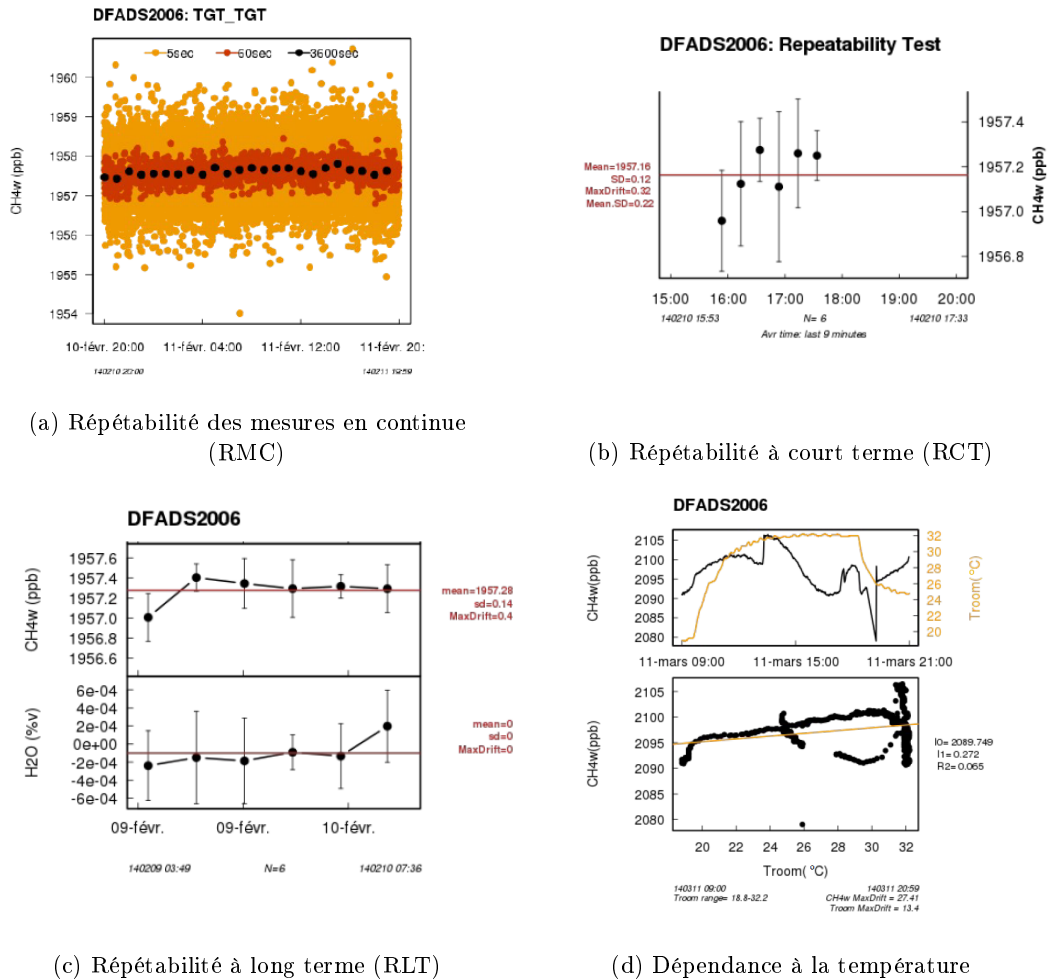


FIGURE 2.4 – Résultats des différents tests réalisés sur l'instrument afin de déterminer la répétabilité de ses mesures en continue (a), sa répétabilité à court terme (b), sa répétabilité à long terme (c) et sa dépendance à la température pour le méthane (d).

Les capacités analytiques de l'instrument pour l'acétylène n'ont pas pu être testées car nous ne disposions pas de bouteille de gaz de concentration suffisamment importante pour réaliser ces tests. Cependant les bonnes performances de l'instrument pour le méthane en accord avec les spécifications données par le constructeur nous permettent d'être confiant quant aux performances annoncées pour l'acétylène, à savoir une répétabilité des mesures en continue inférieure à 600 ppt pour une période de 2 secondes largement suffisante pour mesurer des concentrations supérieures à 1 ppb (les signaux mesurés habituellement sont de l'ordre de 2 à 10 ppb).

## 2.2 Modélisation atmosphérique

### 2.2.1 Modèles de dispersion

Un modèle est une représentation d'une réalité physique. Il se matérialise le plus souvent par un ensemble d'équations permettant de décrire cette réalité physique à partir de paramètres qui sont intégrés pour obtenir des diagnostics ou des prévisions. Dans le cas de la pollution atmosphérique, les paramètres comprennent entre autres les données météorologiques, la topographie du domaine ou le cadastre

d'émission. Les équations décrivent le transport des polluants dans l'atmosphère qui est principalement influencé par la météorologie, les turbulences que l'on peut notamment rencontrer au niveau de la couche limite, mais également les transformations physico-chimiques et les processus de perte pouvant se produire pour certains composés. L'équation de base est donc une équation d'advection-diffusion issue de la loi de conservation de la masse. Les entrées à renseigner sont les paramètres météorologiques et les conditions aux limites (par exemple : des émissions de surface, puits, concentrations aux limites latérales et au sommet du domaine...) et les sorties obtenues avec ces modèles sont les champs de concentrations des polluants d'intérêts pour l'étude.

Parmi les différents types de modèles existants, diverses approches sont envisageables suivant les situations et les échelles modélisées, c'est à dire la taille du domaine sur lequel les calculs sont effectués. On distingue généralement l'échelle locale (jusqu'à quelques dizaines de kilomètres), l'échelle régionale (quelques centaines de kilomètres), l'échelle continentale (quelques milliers de kilomètres) et l'échelle planétaire. Les modèles les plus utilisés à l'heure actuelle pour couvrir ces différentes échelles sont présentés ci-dessous :

- **les modèles gaussiens** simulent le transport des polluants à l'échelle locale. Sous certaines hypothèses simplificatrices, les concentrations dans des panaches ou des bouffées de polluants peuvent être calculés avec cette approche. Ces modèles présentent l'avantage d'avoir un coût de calcul très faible et sont présentés plus en détail dans la section 2.2.2.
- **les modèles eulériens de chimie-transport** (CTM) constituent une approche déterministe qui peut être utilisée à l'échelle régionale et continentale. Le domaine est discrétisé par l'intermédiaire d'un maillage plus ou moins complexe en paramétrisant les phénomènes sous-maille (turbulences, convection nuageuse...).
- **les modèles de mécanique des fluides** (CFD, Computational Fluid Dynamics) sont utilisés pour des échelles "très" locales pour simuler avec une bonne précision des écoulements complexes. Pour cela, les équations de Navier-Stokes sont résolues sur un maillage fin et adapté à l'objet d'étude.
- **les modèles lagrangiens particuliers** modélisent la trajectoire d'un grand nombre de particules émises à partir d'une ou plusieurs sources. Le mouvement de chacune de ces particules est composé d'une composante déterministe liée au champ de vent moyen et d'une composante stochastique décrivant la variabilité due à la turbulence. Les concentrations en polluants sont évaluées en fonction de la répartition de ces particules. Ce type d'approche peut être utilisé pour des échelles locales à continentales.
- **les modèles système Terre** permettent de représenter les interactions entre l'atmosphère, les océans et les surfaces continentales à l'échelle de la planète. La surface est également divisée en mailles plus ou moins grandes et les interactions d'une maille à l'autre sont modélisées par un certain nombre d'équations qui traduisent la conservation de diverses quantités physiques (masse, énergie, quantité de mouvement...).

Dans cette thèse, j'ai principalement utilisé un modèle gaussien adapté à l'échelle locale et à des sites présentant une topographie simple. J'ai également eu l'occasion de mettre en œuvre un modèle CFD dans le cas d'une topographie plus complexe (section 4.1.4).

## 2.2.2 Simulation du transport atmosphérique à l'échelle locale à l'aide d'un modèle de panache gaussien

Un modèle gaussien décrit la dispersion d'un gaz passif du fait de la seule action du vent. Ce type de modèle ne prend pas en compte l'influence de la topographie et d'obstacles susceptibles d'introduire des perturbations importantes de l'écoulement de l'air. La zone étudiée doit donc être relativement homogène, plate et sans trop d'obstacles, hypothèse raisonnable pour la plupart des sites industriels étudiés dans cette thèse qui sont situés en zone péri-urbaine voir rurale, souvent un peu à l'écart. La diffusion moléculaire est négligée devant la diffusion turbulente, ce qui implique que la vitesse du vent doit être au minimum de 1 à 2  $\text{m.s}^{-1}$  (Arya, 1999). Ce type de modèle est utilisé pour la modélisation de la dispersion des polluants à l'échelle locale, sur quelques centaines de mètres à quelques kilomètres. Il nécessite des données météorologiques simples telles que la vitesse et la direction du vent, les conditions de stabilité atmosphérique et des données sur la quantité et les caractéristiques des espèces dispersées.

En absence de diffusion moléculaire, en considérant la diffusion turbulente homogène et isotrope et un champ de vent et une stabilité atmosphérique uniforme dans l'espace, le panache émis par une source



punctuelle est modélisé selon une loi de distribution gaussienne dans deux directions (horizontale orthogonale au vent et verticale) comme l'illustre la figure 2.5. Toutes ces approximations sont pertinentes étant donné que l'on travaille à l'échelle de sites industriels et que nos mesures ont une durée d'une à deux heures en général et que le méthane peut être considéré comme un gaz passif.

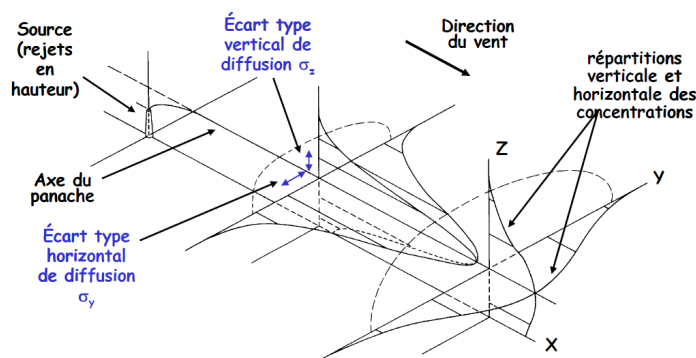


FIGURE 2.5 – Répartition gaussienne de la concentration dans un panache de gaz passif.

En plaçant l'axe  $x$  dans la direction du vent, la concentration en polluant est donnée par la formule analytique suivante (Korsakissok, 2009) :

$$C(x, y, z) = \frac{Q_s}{2\pi\sigma_y\sigma_z\bar{u}} \exp\left(-\frac{(y-y_s)^2}{2\sigma_y^2}\right) \times \left[ \exp\left(-\frac{(z-z_s)^2}{2\sigma_z^2}\right) + \exp\left(-\frac{(z+z_s)^2}{2\sigma_z^2}\right) \right] \quad (2.3)$$

où  $(x_s, y_s, z_s)$  représente les coordonnées de la source ponctuelle,  $C$  la concentration en polluant en un point de coordonnées  $(x, y, z)$ ,  $Q_s$  le flux constant émis par la source, et  $\bar{u}$  la vitesse du vent moyen. Cette formule prend en compte l'influence du sol mais pas les dépôts.  $\sigma_y$  et  $\sigma_z$  sont les écarts-types de diffusion horizontal et vertical et sont estimés à partir de formules empiriques reposant sur la stabilité de l'atmosphère que nous verrons plus en détail par la suite.

Les modèles gaussien nécessitent peu de données d'entrée et sont simples à utiliser mais présentent des limites car la topographie doit rester simple et les conditions météorologiques sont considérées stationnaires sur des zones pouvant aller jusqu'à une dizaine de kilomètres alors qu'elles peuvent en réalité varier dans le temps et l'espace.

La difficulté dans un modèle gaussien est donc d'évaluer la diffusion turbulente représentée par les écarts-types de diffusion  $\sigma_y$  et  $\sigma_z$ . Ces coefficients dépendent des caractéristiques de l'écoulement, de la stabilité de l'atmosphère et de la rugosité de la surface. Ils sont déterminés expérimentalement à partir d'essais à grande échelle. Il existe plusieurs façon de déterminer ces écarts-types, notamment en utilisant la distance d'éloignement entre la source de rejet et la localisation étudiée (Pasquill, Turner, Briggs, Hosker) ou bien le temps de transfert entre ces deux points (Doury).

### Polyphemus : un système de modélisation de la qualité de l'air

Le système de modélisation de la qualité de l'air Polyphemus, développé par le CEREAs (Mallet et al., 2007), rassemble différents types de modèles permettant la représentation de la dispersion atmosphérique d'un certain nombre de polluants, tels que des gaz passifs, des radionucléides ou des aérosols, de l'échelle locale à l'échelle continentale (Korsakissok and Mallet, 2009).

Étant donné les conditions de vent relativement stables nécessaires aux mesures avec la méthode traceur, la discrétisation du panache d'émission en bouffées n'est pas nécessaire dans notre étude et nous avons donc choisi d'utiliser le modèle de panache gaussien de la plateforme Polyphemus pour notre étude. De plus, ce type de modèle est parfaitement adapté à nos travaux à l'échelle du site où nous supposons que le méthane est un gaz passif et que les conditions météorologiques requises pour nos mesures atmosphériques sont suffisamment constantes.

Parmi les différentes façon de déterminer les écarts-types de dispersion du modèle gaussien, Polyphemus propose de choisir entre les paramétrisations de Doury, Pasquill et Briggs (Korsakissok and Mallet, 2009). La détermination des écarts-types de diffusion  $\sigma_y$  et  $\sigma_z$  dans chacune de ces paramétrisations

est dépendante de la stabilité de l'atmosphère. Si les échanges horizontaux sont essentiellement liés au transport par le vent, le transport vertical des polluants est principalement dû à la turbulence d'origine thermique. La turbulence atmosphérique est souvent associée à la notion de stabilité qui dépend du gradient thermique vertical. Une particule d'air sec qui s'élève à partir du sol et prend progressivement de l'altitude se détend et se refroidit alors d'environ  $1^\circ$  tous les 100 mètres conformément à la loi des gaz parfaits, cette transformation physique porte le nom de transformation adiabatique sèche.

Pendant la journée, l'air se réchauffe à proximité du sol du fait du rayonnement solaire incident et se refroidit rapidement avec l'altitude. L'atmosphère est alors dite instable car le gradient thermique que suit une masse d'air est plus grand que le gradient adiabatique. Dans cette situation, une masse d'air qui s'élève en altitude sous l'effet du vent rencontre de l'air plus froid et donc plus dense, ce qui favorise un déplacement vertical de l'air. Cette masse d'air a donc tendance à s'élever, la turbulence est donc très importante et la dispersion est favorisée. Au cours de la nuit, un phénomène d'inversion de température se produit le plus souvent, la température augmente avec l'altitude, ce qui va produire l'effet inverse et fortement stabiliser la colonne d'air. Dans cette situation, le gradient thermique que suit une masse d'air est plus faible que le gradient adiabatique. Une masse d'air qui s'élève sous l'effet du vent rencontre alors de l'air plus chaud. Étant plus dense, la montée s'arrête et la masse d'air retourne vers son point de départ. Une atmosphère stable freine donc la dispersion verticale des polluants. Une classification de la stabilité de l'atmosphère a été établie par Pasquill (1974) permettant de distinguer 6 classes de A à F, de l'atmosphère la plus instable à la plus stable. Les classes de stabilité sont associées à des conditions météorologiques données, à savoir la vitesse du vent et le rayonnement solaire incident, comme le montre la figure 2.6.

Vitesse du vent à 10 m	JOUR			NUIT	
	Rayonnement solaire incident			Nébulosité	
[m/s]	Fort	Modéré	Faible	entre 4/8 et 7/8	<3/8
<2	A	A-B	B	F	F
2-3	A-B	B	C	E	F
3-5	B	B-C	C	D	E
5-6	C	C-D	D	D	D
>6	C	D	D	D	D

FIGURE 2.6 – Les différentes classe de stabilité de Pasquill suivant les conditions météorologiques rencontrées.

Après avoir testé les différents types de paramétrisation pour modéliser les concentrations en traceur, nous avons choisi de travailler avec la paramétrisation Briggs du modèle gaussien pour le reste de cette étude car elle prend en compte à la fois la stabilité de l'atmosphère et la présence ou non de bâtiments autour du site, ce qui la rend beaucoup plus modulable et adaptée que les autres paramétrisations.

### Formules de Briggs

Les formules de Briggs font partie des paramétrisations qui se basent sur les essais de Pasquill. Ces formules sont une tentative de synthétiser différentes paramétrisations existantes en les interpolant pour des terrains ruraux ou urbains. Les écarts-types de Briggs sont donnés sous la forme générale :

$$\sigma_y = \frac{\alpha x}{\sqrt{1 + \beta x}} \quad \text{et} \quad \sigma_z = \alpha x(1 + \beta x)^\gamma \quad (2.4)$$

où  $x$  est la distance à la source dans la direction du vent et  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\gamma$  sont des coefficients dépendants de la classe de stabilité. Ces formules sont données dans le tableau 2.2 pour le cas rural et le tableau 2.3 pour les terrains urbains.

La figure 2.7 présente les concentrations obtenues pour les différentes classes de stabilité dans l'axe du vent ainsi que dans une de ses sections transversales pour un flux d'émission de  $1 \text{ g.s}^{-1}$  et une vitesse de vent de  $5 \text{ m.s}^{-1}$ . On s'aperçoit de façon attendue que plus l'atmosphère est stable et plus le modèle donne des concentrations élevées lorsque l'on se trouve près de la surface. Il nous est également possible de constater que le mode rural permet d'obtenir des concentrations plus importantes que le mode urbain,

TABLE 2.2 – Formules de Briggs pour terrain rural en fonction de la classe de stabilité de Pasquill et de la distance  $x$  à la source dans la direction du vent.

Stabilité atmosphérique	$\sigma_y$ (m)	$\sigma_z$ (m)
A	$0,22x(1 + 0,0001x)^{-1/2}$	$0,20x$
B	$0,16x(1 + 0,0001x)^{-1/2}$	$0,12x$
C	$0,11x(1 + 0,0001x)^{-1/2}$	$0,08x(1 + 0,0002x)^{-1/2}$
D	$0,08x(1 + 0,0001x)^{-1/2}$	$0,06x(1 + 0,0015x)^{-1/2}$
E	$0,06x(1 + 0,0001x)^{-1/2}$	$0,03x(1 + 0,0003x)^{-1}$
F	$0,04x(1 + 0,0001x)^{-1/2}$	$0,016x(1 + 0,0003x)^{-1}$

TABLE 2.3 – Formules de Briggs pour terrain urbain en fonction de la classe de stabilité de Pasquill et de la distance  $x$  à la source dans la direction du vent.

Stabilité atmosphérique	$\sigma_y$ (m)	$\sigma_z$ (m)
A-B	$0,32x(1 + 0,0004x)^{-1/2}$	$0,24x(1 + 0,001x)^{1/2}$
C	$0,22x(1 + 0,0004x)^{-1/2}$	$0,20x$
D	$0,16x(1 + 0,0004x)^{-1/2}$	$0,14x(1 + 0,0003x)^{-1/2}$
E-F	$0,11x(1 + 0,0001x)^{-1/2}$	$0,08x(1 + 0,0015x)^{-1}$

ceci s'explique par le fait que la présence de bâtiments du mode urbain va déstabiliser l'atmosphère par rapport au mode rural. En regardant le profil des concentrations dans un axe transversal à l'axe du vent, on peut voir que l'instabilité de l'atmosphère se traduit par un étalement du panache du fait de la turbulence moins importante.

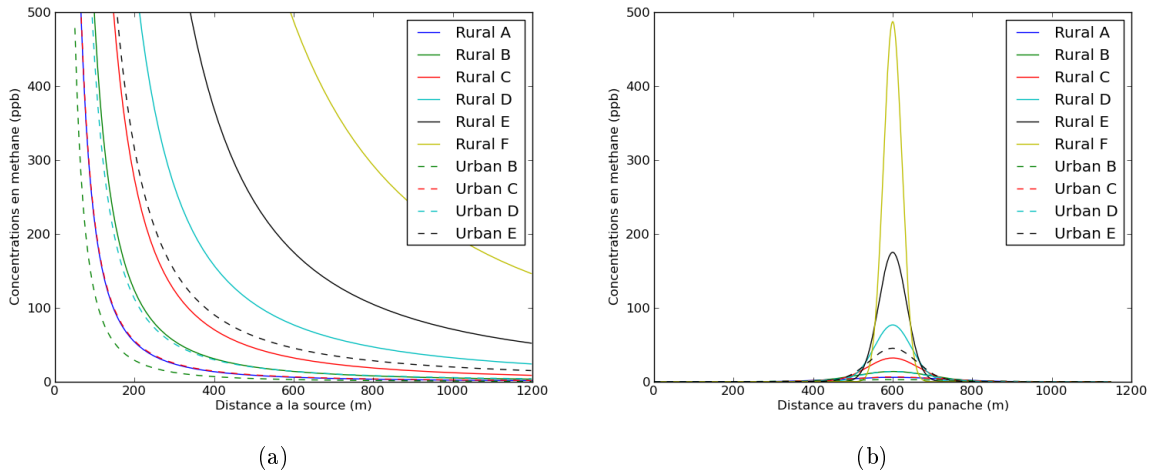


FIGURE 2.7 – Sensibilité du modèle gaussien aux différentes classes de stabilité des modes urbain et rural de la paramétrisation Briggs (a) dans l'axe du vent à une hauteur de 1 mètre du sol et (b) dans une section transversale du panache d'émission située à 600 mètres de la source. Les courbes en pointillés correspondent aux concentrations modélisées avec le mode urbain pour les différentes classes de stabilité et les courbes en trait continu correspondent au mode rural.

La figure 2.8 décrit la sensibilité du modèle en fonction de la vitesse du vent rencontrée lors des campagnes expérimentales. Il nous est possible de constater que pour une classe de stabilité donnée, plus la vitesse du vent est faible et plus les concentrations modélisées sont importantes.

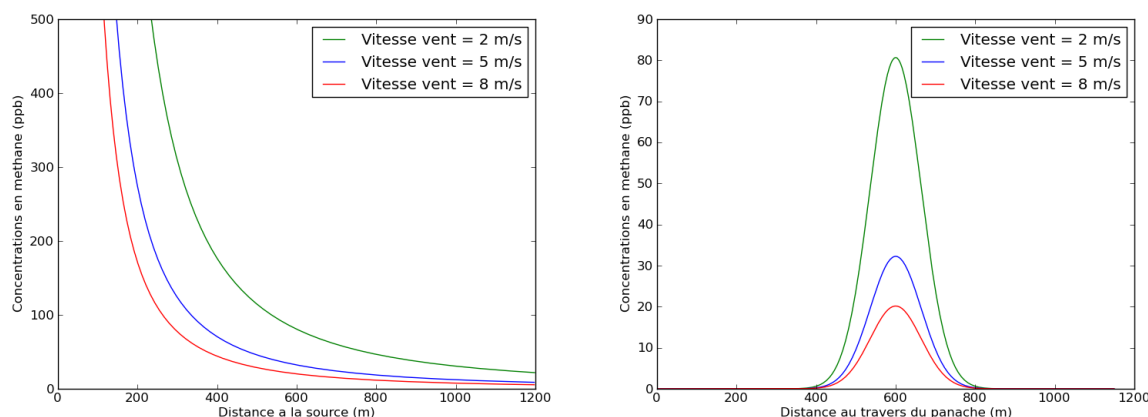


FIGURE 2.8 – Sensibilité du modèle gaussien à la vitesse du vent pour le mode rural de la paramétrisation Briggs (a) dans l’axe du vent à une hauteur de 1 mètre du sol et (b) dans une section transversale du panache d’émission située à 600 mètres de la source.

## 2.3 Méthode d’inversion

### 2.3.1 Inversion déterministe

Le but des méthodes inverses est d’estimer, à partir d’observations, certaines valeurs des paramètres du modèle soit parce que ces paramètres constituent les variables d’intérêt caractérisées indirectement par les observations, soit pour se rapprocher au mieux d’observations (par exemple pour la réanalyse et la prévision des variables physiques correspondant aux champs de sortie des modèles). Dans le domaine de l’inversion atmosphérique des flux de gaz à effet de serre, les paramètres du modèle de transport atmosphérique à estimer correspondent aux flux d’émission des différentes sources de polluants et les observations utilisées sont les concentrations de ces polluants en différents points de l’espace. Le modèle de transport atmosphérique permet de faire le passage entre l’espace des flux et l’espace des concentrations via la matrice  $H$ , également appelée opérateur d’observation. En considérant un ensemble d’observations représenté par un vecteur  $p$  utilisé pour déterminer un ensemble de paramètres du modèle regroupé dans un vecteur  $f$ , ce système peut s’écrire sous la forme :

$$p = Hf \quad (2.5)$$

Dans le cas simple où le nombre d’observations est égal au nombre de paramètres du modèle à déterminer, la matrice  $H$  est inversible et peut être directement utilisée pour déterminer ces paramètres, en l’occurrence les flux d’émission.

### 2.3.2 Inversion statistique sans prior (moindres carrés)

Aussi précise que puisse être une mesure, elle n’est jamais parfaite et la prise en compte de ces erreurs ainsi que les erreurs associées au modèle de transport (qui ne simule pas parfaitement le transport "réel") dans le problème inverse est cruciale. En considérant  $\varepsilon_0$  l’ensemble des erreurs associées aux mesures et au modèle, l’équation 2.5 s’écrit alors :

$$p = Hf + \varepsilon_0 \quad (2.6)$$

En pratique, la méthode inverse consiste à minimiser la différence entre l’observation et la prévision pour une variable (les concentrations de polluants) en tenant compte des incertitudes afin de mieux estimer les émissions dont celle-ci dépend. On fait l’hypothèse que ces erreurs sont gaussiennes et non biaisées, c’est la raison pour laquelle elles peuvent être représentées par une matrice de covariance  $R$ . L’équation de minimisation de cette différence peut alors s’écrire sous la forme quadratique suivante :

$$J(f) = \frac{1}{2}(p - Hf)R^{-1}(p - Hf)^T \quad (2.7)$$

### 2.3.3 Inversion statistique avec une approche bayésienne

Dans le cadre de la modélisation inverse appliquée à l'estimation des sources de gaz à effet de serre, le problème inverse est généralement mal posé du fait de la quantité d'observations disponibles pouvant impliquer une non-unicité de la solution du problème inverse. L'approche bayésienne de l'inversion statistique consiste à utiliser une connaissance *a priori* de ces flux que l'on cherche à estimer afin de régulariser le problème inverse (Tarantola, 2005). Selon Bayes, la fonction de densité de probabilité (FDP) des erreurs de l'estimation *a posteriori* en ayant une connaissance *a priori*  $\rho(f | p)$  dépend directement des FDPs des erreurs sur l'*a priori*  $\rho(f)$  et sur la vraisemblance d'une observation en fonction de la valeur des flux  $\rho(p | f)$  (Bocquet, 2012). Le théorème de Bayes s'écrit alors :

$$\rho(f | p) = K \rho(f) \rho(p | f) \quad (2.8)$$

où  $K$  est une constante.

En considérant que les fonctions de densité de probabilité  $\rho(f)$  et  $\rho(p | f)$  suivent une loi gaussienne, on peut écrire :

$$\begin{cases} \rho(p | f) = K_1 \exp \left( -\frac{1}{2} (Hf - p)^T R^{-1} (Hf - p) \right) \\ \rho(f) = K_2 \exp \left( -\frac{1}{2} (f - f^b)^T B^{-1} (f - f^b) \right) \end{cases} \quad (2.9)$$

$f^b$  est l'estimation *a priori* du vecteur de l'état des flux que l'on cherche à estimer et les erreurs associées à cette connaissance *a priori* sont caractérisées par la matrice  $B$ .  $R$  est la matrice de covariance d'erreur d'observation et  $K_1$  et  $K_2$  sont des constantes.

En substituant les deux équations précédentes dans le théorème de Bayes, on obtient l'expression de la FDP de l'estimation *a posteriori* :

$$\rho(f | p) = K_3 \exp \left( -J(f) \right) \quad (2.10)$$

avec l'expression de  $J$  suivante :

$$\begin{aligned} J(f) &= \frac{1}{2} \left[ (p - Hf) R^{-1} (p - Hf)^T \right] + \frac{1}{2} \left[ (f^b - f) B^{-1} (f^b - f)^T \right] \\ &= J_{obs} + J_{apriori} \end{aligned} \quad (2.11)$$

Ainsi la fonction de coût  $J$  mesure comment la solution  $f$  satisfait à la fois les observations ( $J_{obs}$ ) et l'information *a priori* ( $J_{apriori}$ ) pondérée par les erreurs sur l'*a priori* et les erreurs d'observation contenant l'erreur modèle. La solution optimale est alors obtenue en maximisant  $\rho(f | p)$ , ce qui revient à minimiser la fonction  $J$ .

L'hypothèse sur la gaussianité des FDPs des observations et de la connaissance *a priori* implique que la FDP de l'état *a posteriori* est également gaussienne. On peut ainsi écrire  $\rho(f | p)$  sous la forme :

$$\rho(f | p) = K' \exp \left( -\frac{1}{2} (f^a - f) A^{-1} (f^a - f)^T \right) \quad (2.12)$$

La matrice  $A$  est la matrice de variance/covariance d'erreur sur le flux optimal (erreur d'estimation) et le vecteur  $f^a$  est le flux optimal. Finalement l'expressions du flux optimal est :

$$f^a = f^b + K(p - Hf^b) \quad \text{avec} \quad K = BH^T(R + HBH^T)^{-1} \quad (2.13)$$

et l'expression de la variance /covariance associée :

$$A = (B^{-1} + H^T R^{-1} H)^{-1} \quad (2.14)$$

Suivant la taille du problème, on peut construire explicitement ces matrices (petite taille) ou bien faire appel à des méthode de résolution par minimisation de la fonction coût (grande taille) et estimer les incertitudes par des approches de Monte Carlo (Chevallier et al., 2005, 2007). La modélisation inverse appliquée à l'estimation des sources et et des puits de gaz à effet de serre est très courante à l'échelle mondiale et régionale (Gurney et al., 2002; Peylin et al., 2005; Broquet et al., 2011). Une étude récente menée par Albertson et al. (2016) utilise cette inversion statistique bayésienne contrainte par des mesures mobiles pour estimer les émissions fugitives de méthane provenant de l'exploitation des énergies fossiles. Cette méthode utilise un modèle gaussien et ne requiert pas d'émission de gaz traceur pour donner une estimation des émissions fugitives de méthane réparties sur une grande zone géographique.

## 2.4 Nouvelle méthode : inversion statistique gaussienne paramétrée avec les données du gaz traceur

J'ai décrit jusqu'à présent la méthode traceur, le modèle gaussien adapté pour la modélisation à l'échelle locale et le principe de l'inversion statistique avec une approche bayésienne. Ces différentes composantes ont été combinées afin d'essayer de dépasser certaines de leurs limitations afin d'améliorer l'estimation des émissions de méthane des sites industriels. Je décris maintenant les principes de l'inversion statistique (section 2.3.3) avant de détailler la méthode développée pendant ma thèse (section 2.4), et de l'appliquer à des cas académiques dans un cadre contrôlé (section 2.4.2). Ces deux sections sont un résumé de ce qui est donné plus en détail dans l'article (section 2.4.3).

### 2.4.1 Principe de la combinaison de la méthode traceur et du modèle gaussien dans le cadre d'une inversion statistique

#### 2.4.1.1 Grands principes

Nous avons développé une nouvelle méthode de quantification des émissions de méthane provenant de sites industriels en combinant les différentes approches de modélisation et d'estimation décrites dans les paragraphes précédents afin de compenser leurs faiblesses respectives. En effet comme nous l'avons vu, l'estimation des émissions de méthane sur site avec la méthode traceur peut être faussée par un certain nombre de paramètres tels qu'une mauvaise colocalisation du traceur et des sources de méthane, la présence de sources diffuses très étendues comme les bassins des stations d'épuration ou encore lorsqu'il y a plusieurs sources de méthane au sein d'un même site. Le modèle Gaussien et l'inversion statistique vont permettre de prendre en compte ces différentes sources d'erreur afin de donner une estimation plus robuste des émissions de méthane de ces sites. L'inversion statistique améliore l'inversion déterministe en régularisant les solutions grâce à l'introduction d'informations *a priori* sur les sources et de leur statistique d'erreur. Elle permet également de quantifier séparément les différentes sources au sein d'un même site, ce qui s'avérait difficile avec la méthode traceur. Cependant, l'inversion statistique présente des incertitudes liées au modèle utilisé contrairement au traceur qui est un proxy parfait pour le transport d'un point source constant aux observations.

Le principe de la nouvelle approche développée ici consiste à utiliser la connaissance parfaite du transport depuis la source de traceur donnée par la relation entre les émissions contrôlées de traceur et les concentrations mesurées pour optimiser la calibration du modèle. Ce modèle calibré est ensuite utilisé pour représenter le transport des sources de méthane étudiées qui peuvent éventuellement être diffuses. Le cadre de l'inversion statistique permet d'exploiter un nombre quelconque d'information jugée utile pour l'estimation des émissions des différentes sources du site et permet donc d'utiliser l'ensemble des traversées du panache d'émission réalisées durant chaque campagne. La différence entre les concentrations en traceur mesurées et modélisées avec les paramètres optimisés pour chaque traversée permet de déterminer les erreurs d'observation de la matrice diagonale de variance/covariance  $\mathbf{R}$  pour l'inversion statistique. Il est ainsi possible de déterminer la capacité du modèle à plus ou moins bien représenter chaque traversée et leur donner un poids différent dans l'inversion statistique. Il est à noter que dans cette étude, on réalise une optimisation de la paramétrisation du modèle traversée par traversée en minimisant l'écart entre les concentrations en traceur mesurées et modélisées. Cependant, l'inversion statistique est réalisée sur un ensemble de traversées et nous aurions également pu minimiser cet écart pour l'ensemble des traversées plutôt que pour chaque traversée indépendamment des autres.

#### 2.4.1.2 Mise en pratique

Les concentrations en traceur mesurées sont d'une part utilisées pour caractériser les conditions atmosphériques lors de chaque expérience et ainsi choisir la paramétrisation du modèle Gaussien la plus adaptée. Pour cela, le modèle utilise le flux connu du traceur ainsi que les conditions météorologiques observées durant les campagnes de mesures pour les différentes classes de stabilité du modèle. Puis les concentrations en traceur modélisées au niveau de la route où ont été réalisées les mesures sont comparées aux concentrations en traceur mesurées. En pratique, cette comparaison est effectuée de façon quantitative en regardant les valeurs des intégrales des concentrations au dessus du niveau de fond mais également de façon qualitative en faisant visuellement attention à ce que la forme du panache modélisé corresponde

bien à celle du panache mesuré. Cette sélection de la paramétrisation du modèle ajustant au plus près les sorties du modèle aux observations est réalisée pour chaque traversée du panache indépendamment. La comparaison des concentrations en traceur mesurées et modélisées a également permis de mettre en évidence un décalage spatial plus ou moins constant de ces deux panaches d'émission. Ce décalage est causé par le temps de réponse de l'instrument et la vitesse du véhicule de mesure. Bien que l'analyseur ait un temps de réponse relativement rapide d'environ 15 secondes, le déplacement du véhicule à une vitesse de  $40 \text{ km.h}^{-1}$  entraîne un décalage des mesures d'un peu plus de 160 mètres. Ce décalage est significatif à l'échelle de nos mesures puisque les traversées de panache s'étendent généralement sur 800 à 1 000 kilomètres. Ce décalage spatial n'a aucune influence sur le calcul des flux d'émission avec la méthode traceur étant donné qu'il s'agit d'un simple déplacement des panaches sans modification de leur aire. La prise en compte de ce décalage est cependant nécessaire dans le cadre de l'inversion statistique et est réalisé grâce aux concentrations en traceur. En effet, les concentrations en traceur mesurées sont décalées temporellement afin de faire en sorte qu'elles se superposent aux concentrations modélisées, ce décalage temporel est ensuite appliqué aux concentrations de méthane pour l'inversion statistique. La figure 2.9 présente un exemple de traversée du panache d'émission du traceur et illustre le choix de la paramétrisation du modèle Gaussien et son décalage spatial. Les concentrations en traceur mesurées sont représentées en pointillés noirs, les concentrations modélisées en bleu. La courbe en trait plein noir correspond aux concentrations mesurées ayant été décalées temporellement afin de correspondre aux concentrations modélisées. Dans cet exemple, on remarque que les concentrations modélisées avec la classe de stabilité B du modèle Gaussien sont les plus proches des concentrations mesurées et que ces deux courbes ont une forme similaire, c'est donc cette classe de stabilité qui va être choisie pour modéliser les concentrations en méthane de cette traversée. Pour l'exemple donné dans la figure 2.9, l'erreur trouvée pour la classe de stabilité C est de 17 %.

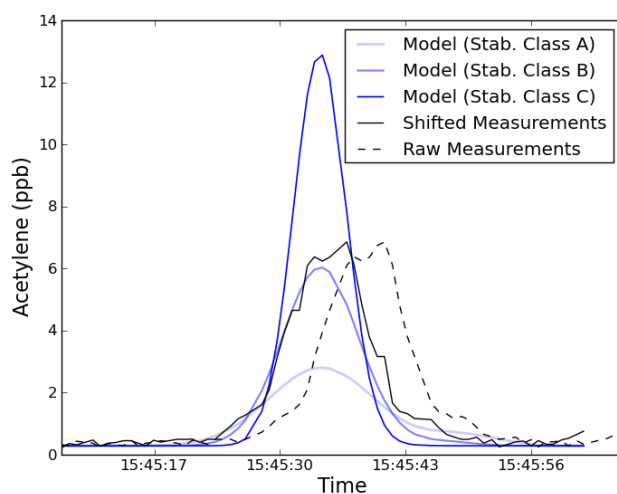


FIGURE 2.9 – Exemple de traversée du panache d'émission du traceur illustrant le choix de la classe de stabilité du modèle Gaussien. Les concentrations mesurées avant et après décalage sont représentées respectivement en pointillés noirs et en trait plein noir, les concentrations modélisées avec les différentes classes de stabilité sont représentées en bleu.

## 2.4.2 Application dans le cadre d'émissions contrôlées de méthane

### 2.4.2.1 Conditions d'expérience

Plusieurs séries de mesures ont été réalisées en contrôlant à la fois les émissions de traceur, mais aussi de méthane afin d'évaluer les capacités de la méthode traceur classique et de la nouvelle méthode combinée à donner une bonne estimation de ces émissions. Ces mesures ont été réalisées sur le parking du Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE) situé sur le plateau de Saclay au sud de Paris en France (longitude :  $48,708831^\circ$ , latitude :  $2,147613^\circ$ , altitude asl : 163 m) durant plusieurs jours en mars

2016. Le relief de la zone de mesure est plat et seuls quelques bâtiments sont susceptibles d'influencer le transport atmosphérique du parking à la route où les mesures sont réalisées, située 150 mètres plus loin. Pour chaque configuration, les panaches d'émission du méthane et de l'acétylène sont traversés entre 20 et 40 fois sur une période de 1 à 2 heures. Les panaches d'émission d'acétylène et de méthane ont des concentrations qui vont respectivement de 3 à 15 ppb et de 50 à 500 ppb.

Le traceur et le méthane sont émis sous forme de points sources à l'aide de bouteilles de gaz dont le débit est régulé par un débitmètre. Les débits sont vérifiés en pesant chaque bouteille avant et après chaque test.

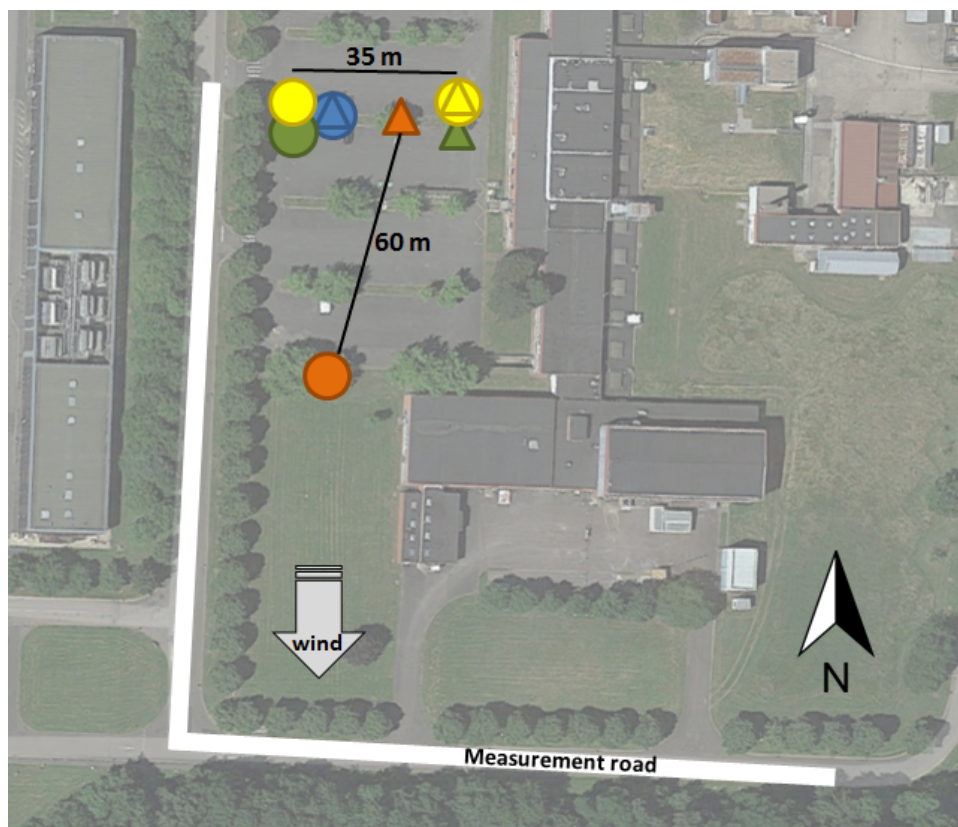


FIGURE 2.10 – Présentation des quatre configurations de sources testées. Les triangles représentent les différentes localisations des sources de traceur et les cercles la position des sources de méthane. Chaque couleur représente une configuration : le bleu correspond à la configuration 1, le rouge à la configuration 2, le vert à la configuration 3 et le gris à la configuration 4.

La figure 2.10 illustre les différentes configurations des sources testées. Dans la configuration 1, les sources de traceur et de méthane sont parfaitement colocalisées, ce qui va permettre d'estimer la précision de la méthode et de notre système et d'avoir une idée de l'erreur de mesure dans des conditions optimales. Les bouteilles de traceur et de méthane sont reliées par un tube de plusieurs mètres de long afin de s'assurer de leur parfaite colocalisation et de leur mélange. En principe, dans de telles conditions, la méthode traceur classique devrait donner un meilleur proxy du transport atmosphérique et donc une meilleure estimation des émissions que l'inversion statistique qui repose sur la modélisation toujours imparfaite, bien qu'optimisée, des panaches d'émission dispersé par le vent et la turbulence atmosphérique. En effet, lorsque les sources de traceur et de méthane sont parfaitement colocalisées, les seules erreurs imputables à la méthode traceur sont les erreurs liées aux mesures et les incertitudes sur les débits de traceur en sortie de bouteille alors que l'inversion statistique cumule les erreurs de mesures, les erreurs de transport et les incertitudes sur les flux de traceur émis. Cette configuration n'est pas représentative du type de situation que l'on est amené à rencontrer lors de campagnes de mesures sur des sites industriels puisqu'il est souvent difficile de positionner notre traceur de sorte qu'il soit colocalisé avec les sources de méthane. C'est pour cette raison que d'autres configurations ont été testées puisqu'elles vont permettre de tester l'impact d'une mauvaise colocalisation du traceur vis-à-vis des sources de méthane.



Dans la configuration 2, le traceur est placé approximativement 60 mètres en amont de la source de méthane par rapport à la direction du vent. Dans cette situation, on s'attend à ce que la méthode traceur classique surestime les émissions en méthane étant donné que le signal du traceur va être moins important que si les deux sources avaient été colocalisées. En effet, dans ce cas, le rapport du signal du méthane sur celui du traceur dans l'équation 2.1 est plus important, ce qui entraîne une surestimation du flux de méthane.

Dans la configuration 3, les sources de traceur et de méthane sont décalées latéralement d'environ 35 mètres par rapport à la direction du vent. Ce décalage latéral ne devrait pas avoir de conséquences sur l'estimation des émissions étant donné que le signal est simplement déplacé sans aucune modification de sa forme et de son amplitude. Cependant les conditions de l'expérience ne sont pas parfaites, la route où les mesures sont réalisées n'est pas parfaitement rectiligne et orthogonale à la direction du vent et le vent n'est pas constant. Pour toutes ces raisons, la méthode traceur classique peut donner une estimation des émissions erronée même avec ce type de décalage.

La configuration 4 permet de tester l'influence de la présence de plusieurs sources de méthane sur l'estimation du flux total d'émission avec les différentes approches. Pour cela, un système de tubes connectés à la bouteille de méthane permet d'émettre du méthane à deux localisations différentes avec un débitmètre à chaque extrémité afin de réguler les émissions. La source de traceur est colocalisée avec l'un des points source de méthane.

Cette différence du nombre de sources pour les configurations 1, 2 et 3 et pour la configuration 4 engendre une différence dans le traitement des données et notamment dans la définition du vecteur d'observation  $p$ . Pour les configurations 1, 2 et 3 pour lesquelles nous n'avons à estimer les émissions que d'une seule source de méthane,  $p$  correspond à la valeur de l'intégration du panache entier alors que pour la configuration 4 présentant deux sources de méthane, le panache d'émission est divisé en 5 parties équivalentes qui sont intégrées et rassemblées dans le vecteur d'observation  $p$ .

#### 2.4.2.2 Résultats des essais réalisés avec des émissions contrôlées de méthane

Pour chaque configuration testée, le flux de méthane est estimé à l'aide de la méthode traceur classique et de la méthode combinée puis les résultats sont comparés aux flux réels émis afin d'illustrer leur capacité à donner une bonne estimation des émissions. L'incertitude associée aux estimations de chacune des méthodes est calculée différemment. Pour la méthode combinée, l'analyse de la matrice de covariance  $A$  permet de définir l'incertitude totale prenant en compte l'impact de l'erreur du modèle, des mesures et de l'estimation *a priori* (variances et covariances). En ce qui concerne la méthode traceur classique, l'incertitude est estimée en combinant une erreur aléatoire correspondant à l'impact aléatoire des erreurs de mesures (essentiellement la différence entre les structures turbulentes des panaches de traceur et de méthane qui modifie l'aire du panache) et un biais correspondant à l'impact systématique de la non-colocalisation des sources de traceur et de méthane. L'erreur aléatoire est définie en calculant l'écart-type des estimations des différentes traversées rapporté à la racine carrée du nombre de traversée (i.e.  $\frac{STD}{\sqrt{n}}$

avec  $n$  le nombre de traversée). D'autre part le biais associé à la non-colocalisation des sources de traceur et de méthane est déterminé en utilisant le modèle Gaussien (voir article). Les concentrations au travers des panaches d'émission du méthane et du traceur sont modélisées en utilisant les flux réels émis et la position exacte des sources, ces signaux sont intégrés afin de calculer le flux d'émission théorique du méthane grâce à la formule de la méthode traceur. Ce flux théorique est ensuite comparé au flux réel de méthane pour déterminer l'erreur systématique associée à la non-colocalisation du traceur. L'erreur totale est déterminée en faisant la racine carrée de la somme des carrés de l'aléatoire et du biais associé à la mauvaise colocalisation du traceur et des sources de méthane. L'ensemble des résultats est présenté dans le tableau 2.4.

Pour la configuration 1, les émissions de méthane sont respectivement estimées à  $454 \pm 50$  (50 ; 0) et  $472 \pm 2$   $\text{g.h}^{-1}$  avec la méthode traceur classique et la méthode combinée pour un flux réellement émis de  $382 \pm 7$   $\text{g.h}^{-1}$ . Comme on pouvait s'y attendre dans ce cas où les sources de méthane et de traceur sont parfaitement colocalisées, le traceur est un meilleur indicateur du transport atmosphérique que le modèle et la méthode traceur classique donne donc une meilleure estimation des émissions. Un écart relatif de 19% entre l'estimation des émissions de méthane avec la méthode traceur et le flux réellement émis est observé. Cet écart est typique de la méthode traceur et peut être associé aux erreurs de mesures et de quantités de traceur émises. Il est à noter que les incertitudes sur les estimations *a posteriori* obtenues

après inversion pour cette configuration comme pour les autres sont très faibles et semblent montrer que le système est un peu optimiste quant à sa capacité à réduire ces incertitudes.

Dans le cas des trois autres configurations pour lesquelles le traceur n'est pas colocalisé avec la source de méthane, la méthode combinée donne une meilleure estimation des émissions réelles que la méthode traceur. Pour la configuration 2, la méthode combinée donne une estimation de  $464 \pm 1 \text{ g.h}^{-1}$  des émissions pour un flux réellement émis de  $428 \pm 7 \text{ g.h}^{-1}$  alors que la méthode traceur classique donne une estimation de  $551 \pm 299$  (44; 296)  $\text{g.h}^{-1}$ . Comme prévu, la méthode traceur classique surestime les émissions de méthane du fait de la position de la source de traceur en amont de la source de méthane. La méthode combinée prend en compte cet écart et donne une meilleure estimation.

Une amélioration similaire est observée pour la configuration 3 où les émissions totales sont estimées à  $360 \pm 2 \text{ g.h}^{-1}$  et pour la configuration 4 où elles sont estimées à  $482 \pm 25 \text{ g.h}^{-1}$ . Pour la configuration 3, l'écart relatif entre l'estimation du flux de méthane par la méthode traceur classique et le flux réellement émis est comme on pouvait s'y attendre moins important que pour la configuration 2 du fait du type de décalage et se trouve être du même ordre de grandeur que pour la configuration 1. On peut donc en déduire qu'un décalage latéral du traceur n'a pas de forte influence sur l'estimation des émissions.

Dans chacun de ces cas, l'inversion statistique donne une incertitude sur les émissions *a posteriori* très faible (compris entre 1 et 2 ppb pour les configurations 1, 2 et 3 et de 25 ppb pour la configuration 4) qui montre que, comme pour la configuration 1, l'inversion statistique ne prend probablement pas en compte toutes les causes d'erreur.

La méthode combinée présente également l'avantage de donner la possibilité d'estimer séparément les émissions provenant de différentes sources au sein d'un même site et a été appliquée à la configuration 4 afin de tenter d'estimer séparément chacune des deux sources. L'inversion statistique donne une estimation des émissions de  $173 \pm 14 \text{ g.h}^{-1}$  et  $310 \pm 25 \text{ g.h}^{-1}$  (moyenne 241) alors que les deux sources émettaient un flux de  $241 \pm 7 \text{ g.h}^{-1}$ . Malgré l'excellent résultat obtenu pour la somme des deux sources, le système à tout de même des difficultés à séparer les deux sources, ce qui peut s'expliquer par leur proximité géographique. Ces problèmes de séparabilité sont confirmés par la forte corrélation négative de l'incertitude *a posteriori* sur ces deux sources (-0,41) diagnostiquée à partir de la matrice de covariance A.

TABLE 2.4 – Estimation des émissions en méthane avec la méthode traceur et la méthode combinée et comparaison avec le taux de méthane réellement émis lors de chaque configuration. Les incertitudes associées à la méthode traceur sont détaillées ainsi : incertitude totale (incertitude aléatoire ; incertitude liée à la non-colocalisation des sources de traceur et de méthane).

	Configuration 1	Configuration 2	Configuration 3	Configuration 4
Méthane émis de façon contrôlée ( $\text{g.h}^{-1}$ )	$382 \pm 7$	$428 \pm 7$	$360 \pm 7$	$482 \pm 7$
Estimations avec la méthode traceur ( $\text{g.h}^{-1}$ )	$454 \pm 50$ (50; 0)	$551 \pm 299$ (44; 296)	$421 \pm 158$ (89; 131)	$760 \pm 358$ (65; 352)
Écart relatif au flux réel (%)	19	29	17	58
Estimations avec la méthode combinée ( $\text{g.h}^{-1}$ )	$472 \pm 2$	$464 \pm 1$	$360 \pm 2$	$482 \pm 25$
Écart relatif au flux réel (%)	24	8	0	0

### 2.4.3 Publication : Statistical inversion of gas emissions from point sources coupling the tracer release technique and Gaussian plume modelling : a methane test case in controlled conditions

# Statistical atmospheric inversion of small-scale gas emissions by coupling the tracer release technique and Gaussian plume modeling: a test case with controlled methane emissions

Sébastien Ars<sup>1</sup>, Grégoire Broquet<sup>1</sup>, Camille Yver Kwok<sup>1</sup>, Yelva Roustan<sup>2</sup>, Lin Wu<sup>1</sup>, Emmanuel Arzoumanian<sup>1</sup>, and Philippe Bousquet<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Laboratoire des sciences du climat et de l'environnement (LSCE/IPSL), CNRS-CEA-UVSQ, Université de Paris-Saclay, Centre d'Etudes Orme des Merisiers, Gif-sur-Yvette, France

<sup>2</sup>CEREA, Joint Laboratory École des Ponts ParisTech / EDF R&D, Université Paris-Est, Champs-sur-Marne, France

## Abstract

This study presents a new method for estimating the pollutant emission rates of a site and its main facilities using a series of atmospheric measurements across the pollutant plumes. This approach is based on a combination of the tracer release method, a Gaussian atmospheric transport model and a statistical atmospheric inversion approach. The conversion between the tracer controlled emission and the measured atmospheric concentrations across the plume provides knowledge on the atmospheric transport. The concept of the method consists of using this knowledge to optimize the configuration of the Gaussian model parameters and the model uncertainty statistics in the inversion system. The pollutant rates of each source are inverted to optimize the match between the concentrations simulated with the Gaussian model and the pollutants' measured atmospheric concentrations, accounting for the Gaussian model uncertainty. This new approach is evaluated with a series of inversions of controlled methane point sources using acetylene as a tracer gas. In these experiments, different configurations of methane and acetylene point source locations are tested to assess the efficiency of this method in comparison with the classic tracer release technique to cope with the distances between the different methane and acetylene sources. The results from these controlled experiments demonstrate that when the targeted and tracer gases are not well collocated, this new approach provides a better estimate of the emission rates than the tracer release technique. As an example, the relative error between the estimated and actual emission rates is reduced from 29% with the tracer release technique to 8% with the combined approach in the case of a tracer located 60 metres upwind of a methane source. This method also enables an estimate of different sources within the same site to be provided.

## 1 Introduction

Atmospheric pollution due to anthropogenic activities is a major issue for air quality and for climate change because of the increase in the atmospheric concentrations of greenhouse gases. Industrial sites are known to emit a significant part of the pollutants and greenhouse gases. For instance in France, industrial emissions represent between 10 and 30% of major air pollutants, such as carbon and nitrous oxides (Bort and Langeron, 2016). Currently, industries must list their emissions through national inventory reports, and some of them commit to reducing these emissions. However, the choice of an appropriate mitigation policy and the verification of its results require a good understanding of the emitting processes and a precise quantification of the emission rates. Industrial emissions are difficult to model and quantify

because of the diversity and the time variability of the emitting processes. Many emitting industrial sites have a typical size of 100–500 m<sup>2</sup>, and they emit pollutants from very specific locations within this area. The transport of these pollutants in the atmosphere over distances from 0.1 to several kilometres from such sites can be viewed as a plume from point sources. One approach developed to quantify the surface emissions from such sites involves atmospheric concentration measurements around the site, particularly across these emission plumes, and a proxy of the atmospheric transport. This proxy is used to estimate emission rates from such observed concentrations, providing information about the structure and the amplitude of the plume. Among the different techniques to estimate emissions from concentrations is the tracer release method, which is used to provide estimates of the transitory emissions of a site (typically for a few hours during a given day). This method is based on mobile continuous measurements across the emission plumes of the studied pollutant and of a tracer purposely emitted as close as possible to the pollutant source with a known rate (Lamb et al., 1995). Because the atmospheric transport can be considered as linear for most of the pollutants for short distances (since they can be assumed to act as passive species over very short time scales), the plumes of the targeted gas and of the tracer should have the same structure if both gases are perfectly co-emitted at the same location and with the same time variations. In such a configuration, the knowledge of the ratio between the tracer controlled emission rate and the tracer plume magnitude can be used as an estimate of the ratio between the targeted gas emission rate and the targeted gas plume magnitude such that the measurement of the targeted gas plume magnitude can be converted into an estimate of the targeted gas emission rate.

This approach is relatively simple to implement and enables punctual estimations for a large number of sites. Nevertheless, this technique encounters some limitations, particularly when it is difficult to position the tracer emission close to the sources, as well as when the sources are spread over a significant area compared with the distance between the sources and the location of the measured concentrations, or when targeting individual estimates of the different emission rates from multiple sources whose plumes overlap over a given site. Typically, in industrial sites, pollutant sources may be sporadic and diffusive over a large area and their locations are not always precisely known. In these cases, the tracer release method can induce errors in the flux estimation since the tracer plume by itself cannot be used as an accurate proxy of the local transport from the targeted gas sources to the measurement locations. Moreover, this approach can hardly be used to provide an estimate of the different sources within a site. Even with the use of different tracer release points, the technique in itself does not provide solutions to separate the overlapping tracer and/or targeted gas plumes associated with different point sources.

Other techniques exploit atmospheric measurements using local atmospheric dispersion models to simulate the transport of the targeted gas from its sources to the measurement locations (Lushi and Stockie, 2010). Such models are driven by data on the meteorological conditions and are based on mass conservation to predict how a given emission rate for a given source impacts the 3D atmospheric concentration field of a pollutant. This can be used to infer the linear relationship between a given emission rate at a source and the concentration at a given location, the amplitude, or the integral of a measured transect through the gas plume. An estimate of the emission rate can thus be inferred from the measurements and from simple mathematical inversion using this linear relationship. In theory, the model and the inversion can be applied for a point source or for a source whose spread is known. The model can also be applied to multiple sources, and the same number of concentration measurements or measurement integrals appropriate to dissociate these different sources could be exploited. In such cases, a simple mathematical inversion of the invertible linear relationship between the emission rates and measurement indices should allow for estimation of the different emission rates associated with the different sources. The principle of this technique is relatively simple, but the transport model, the representation of the emission spread in this model, and the separation of the different plumes associated with different sources present some uncertainties. In particular, the transport over short distances is characterized by complex turbulent structures whose processes are difficult to model and can hardly be matched. Moreover, the simple mathematical inversion artificially requires extending or limiting the number of data extracted from the measurements to the number of sources to be quantified, which can represent a loss of information or can hide the fact that the problem is underconstrained.

Accounting for uncertainties in the model and addressing under- or overconstrained mathematical problems when using the correct number of data that corresponds to the complementary pieces of information in the measurements can be addressed using a statistical inversion framework, which can be viewed as a generalized inversion technique. In such a framework, a statistical estimate of the emission rates for the different targeted sources is derived to optimize the fit to the measurements, accounting for

the statistical uncertainties in the source and transport modelling, in the measurements and in the prior knowledge about the source location and magnitude (Goyal et al., 2005). Statistical inversions using atmospheric transport models and atmospheric concentration measurements have been used for decades to infer surface sinks and/or sources of pollutants and greenhouse gases at the continental to the city scales (Gurney et al., 2003; Bréon et al., 2015). However, the skill of such approaches strongly relies on the transport and source modelling accuracy and on the ability to quantify this accuracy.

This study aims at combining the tracer release technique, Gaussian plume modelling and a statistical inversion framework to develop a robust technique to improve the estimation of gas emissions from one or several point sources in an industrial site-scale configuration. The concept consists of using the knowledge on the transport given by the tracer controlled emission and concentration measurements to optimize the calibration of the Gaussian model parameters and to assess the statistics of the model errors for the configuration of the inversion system.

This method is tested for the quantification of transient methane emissions (for a given time window of several hours) using acetylene as a tracer gas and mobile measurements across the methane plumes for several hours. Methane is an important greenhouse gas with largely unknown point source emissions (Saunio et al., 2016). Typical methane emitting sites due to anthropogenic activities include waste processing plants (wastewater treatment plants and landfills), oil and gas extraction and compressing sites and farms (Czepiel et al., 1996; Yver Kwok et al., 2015; Marik and Levin, 1996). A precise and easy-to-implement method for estimating methane emissions could help operators of such sites in their local action plans to mitigate their emissions in the context of climate change. While a continuous monitoring of such emissions would help characterize the dependence of such emissions on meteorological conditions and on the change in the site processes through time, punctual estimates through a dedicated measurement campaign can help to detect and provide a useful order of magnitude for such sources that are generally poorly known (Yver Kwok et al., 2015).

We conduct a series of controlled experiments with known emissions of methane from one or two sources and of acetylene from one source and with concentration measurements through the methane and acetylene plumes at an appropriate distance from the source, as described below. The known emission of methane is used to validate the inversion results and thus to assess the efficiency of our new approach. In particular, the fit between these results and the actual emissions is compared with the one obtained with the more traditional computation associated with the tracer release technique to demonstrate the asset of the statistical inverse modelling framework. In section 2, we detail the theory and specific framework for the monitoring of methane sources with the tracer release technique, of the local dispersion modelling and statistical inversion exploited here, and of our method that combines these different techniques and tools. Then, we describe the specific experimental set-up and the inversion configuration used in this study (section 3), and finally, we discuss the results of these controlled experiments (section 4).

## 2 Methods

### 2.1 Framework to monitor of transient pollutant sources using mobile measurements across the atmospheric plumes

The methods described below correspond to a specific configuration of generic techniques for the atmospheric monitoring of gas emissions, focusing on the estimation of transient emission rates. They are based on the principle of measuring the concentrations across the emission plume of a targeted gas emitted by an industrial site at an appropriate distance several times over the course of a few hours. Crossing the emission plume allows the increase of its concentration above a background concentration to be measured, which corresponds to the concentration upwind of the industrial site that has not been affected by the sources within the site. Ideally, the background concentration is relatively smooth since other major gas emitters would be located away from this location and because atmospheric diffusion should cause their plume to vanish when air reaches the targeted site. The methods apply to inert non-reactive gases, and thus, the representation of atmospheric transport, linking emissions to concentrations, can be considered to be linear.

The choice of the measurement distances should follow several criteria. The distance has to be high enough such that the transport from the source to the measurement is correctly characterized with a transport model or the proxy from the tracer release (which depends on the spread of the single or multiple

targeted sources and thus indirectly on the size of the industrial site). However, the distance should be short enough such that the amplitude of the measured concentrations is high enough compared to the measurement and model precision. Finally, the distances should be adapted to the need for conducting measurements on roads located downwind of the point sources (depending on the specific wind directions during the measurement campaigns) when using instruments onboard cars as in this study.

The conversion of the concentration measurements through the plumes into emission rates is performed through proxies of the source spread and atmospheric transport, which links gas emission rates from one or several sources to the atmospheric concentrations through the observation equation:

$$p = Hf + \varepsilon_0 \quad (1)$$

where  $f$  is the control vector that contains the targeted emission rates of the methane sources,  $p$  is the observation vector,  $H$  is the observation operator (i.e. the combination of an operator representing the source spread and an atmospheric transport operator), and  $\varepsilon_0$  represents the sum of errors in the observation operator and in the measurements.

The observation vector is constructed from the gas concentrations measured for each cross-section of the pollutant plume. The atmospheric transport operator is constructed using either the relationship between known collocated tracer emission and concentrations in the tracer release technique (section 2.2) or using a physical atmospheric transport model (section 2.3). While the model allows for addressing multiple sources or sources with a significant spread far better than proxies based on collocated tracers, such models have limited ability for simulating local transport dispersion. The sources are generally considered to be small enough so that they can be reduced to point sources, but the transport models used here allow for their spread over significant areas within the observation operator to be taken into consideration. Inferring gas emissions from gas concentrations implies inverting the atmospheric transport to express  $f$  as a function of  $p$ . If the size of  $f$  is the same as that of  $p$  (i.e. if the number of data points derived from the concentration measurements is set equal to the number of targeted sources), then the atmospheric transport matrix is invertible in a mathematical sense, and this inversion is straightforward (sections 2 and 2.3). As discussed in the introduction, such an inversion can hardly account for the amount of useful information provided by the measurements (typically, missing the shape of the emission plume when targeting a single source) and for uncertainties in the measurements and observation operator. To overcome these issues, one can perform a statistical inversion (section 2.4). Here, we propose a new method (section 2.5), combining the tracer release method, a local-scale Gaussian model, and a statistical inversion framework to overcome the issues associated with these different approaches and tools as discussed above.

This method is tested for the quantification of methane sources using acetylene as a tracer gas. Both of these gases are inert and can be considered non-reactive at the time scale and over the space scales corresponding to the time and distance between the release of molecules at the source and the measurement of concentrations downwind in the plume, with the lifetimes of methane and acetylene being approximately 10 years and 2–4 weeks, respectively (Logan et al., 1981)). In this study, the methane and acetylene concentrations are measured in a continuous manner along a line crossing the emission plume using an accurate analyser placed in a car. Our preliminary analysis shows that we obtain satisfying results when concentrations are typically measured at a distance of 100 to 1000 metres from methane sources of 1500 to 100000  $\text{gCH}_4 \cdot \text{h}^{-1}$  and spread within an area of  $100 \times 100 \text{ m}^2$  to  $500 \times 500 \text{ m}^2$ .

## 2.2 The tracer release method

The tracer release method was developed to quantify pollutant emissions and has already been used in a wide range of studies to estimate the sources of various types of gases such as methane (Babilotte et al., 2010), carbon monoxide (Möllmann-Coers et al., 2002) and isoprene (Lamb et al., 1986). This method consists of releasing a tracer gas with a known rate close to the targeted gas source when this source is clearly localized or in the middle of a site when numerous sources, diffuse or not, are present on the emitting site.

When both the released tracer and targeted sources are perfectly collocated and constant in time, they have the same spatial and temporal relative variations of their concentrations in the atmosphere (i.e. the same plumes ignoring a multiplication factor). By measuring their concentrations in a section of the downwind emission plumes and knowing the released tracer emission rate, the targeted emission

rate can be estimated using the following formula:

$$f_m = f_t \times \frac{p_m}{p_t} \quad (2)$$

where  $f_m$  is the targeted emission rate,  $f_t$  is the measured tracer release rate, and  $p_m$  and  $p_t$  are indices of the amplitude of the measured targeted gas concentrations and the measured released tracer concentrations above the background, respectively. Various indices of the ratio between the targeted gas and the released tracer increased concentrations can be used. Typically on the one hand, it can be calculated using the maximum concentrations (peak heights of the signals) of both gases, and on the other hand, it can be established using the areas under both plume signals and above the background concentrations (Mønster et al., 2014). If the sources of the released and targeted gases are perfectly collocated and if their emission rates are constant, both of these approaches provide the same result given that both emission plumes are identical. However, if the collocation of both sources is not perfect or if the targeted emissions vary in time, then the shapes of the emission plumes of the released tracer and of the targeted gas can differ. To minimize the impact of this difference, the ratio of the integrated plumes is generally chosen because this index is less sensitive to the impact of thin turbulent structures than the peak height ratio (Mønster et al., 2014).

Such a computation is generally repeated several times (approximately 10–15 times in general), which means that the emission plumes are crossed several times, and equation 2 is applied for each crossing. The mean and standard deviation of the different results are used as the best estimate and uncertainty assessment for the source quantification. Plume crossings with a low correlation between the variations of the targeted gas and the released tracer along the measurement line are generally ignored in the computation of these statistics. Such statistics allow to account, at least partly, for the potential temporal variations of the emissions, for the measurement errors, and for the potential impact of the non-perfect collocation of the sources.

However, a mislocation of the tracer source too far from the targeted source can generate biases in the series of computations, which would impact the average estimate of the source without being reflected in the standard deviation of the individual emissions computations. Moreover, this technique provides an overall estimate of the emissions of a site but, when the site has several sources located quite close to each other, it cannot provide individual estimates of these sources.

### 2.3 Local scale transport simulation using a Gaussian plume model

Many types of transport models are used to simulate the dispersion of pollutants at the local scale (over distances from a few metres to 1 or 2 kilometres) (Baklanov and Nuterman, 2009).

While LES and CFD models allow for turbulent patterns over such spatial scales to be generated and for changes in the terrain topography and for buildings to be accounted for (Letzel et al., 2008; Britter and Hanna, 2003), they can hardly be set-up or controlled to perfectly match the turbulent patterns at a given time and location downwind of a source. Gaussian plume models provide a stationary and average view of the pollutant plumes driven by meteorological conditions that are stationary in time and homogeneous in space within the study period and area. This is a decent approximation for the modelling of dispersion over 1–2 minutes (i.e. the typical timescale associated with our experiments) and an area of approximately 1 km<sup>2</sup> when the wind speed is relatively high. These models cannot precisely account for the local topography and buildings. However, this type of model is suitable for many configurations of industrial sites located in nearly flat suburban to rural areas, and it is easily set up and applied for the simulation of local-scale transport.

The Polyphemus air quality modelling system, developed by the CEREAs (Mallet et al., 2007), gathers several types of transport models allowing the representation of the dispersion in the atmosphere of diverse pollutants, such as passive gases, radionuclides or aerosols, from the local to continental scale. In this study, the Gaussian model of Polyphemus is used because it has been proven to be adapted for estimating gas emissions from local sites (Korsakissok and Mallet, 2009).

Gaussian models are based on a simple formula that provides the concentration of the pollutant at a location generated by a point source depending on the weather conditions. The Gaussian plume formula

is expressed as:

$$C(x, y, z) = \frac{Y}{2\pi\sigma_y\sigma_z\bar{u}} \exp\left(-\frac{(y-y_s)^2}{2\sigma_y^2}\right) \times \left[ \exp\left(-\frac{(z-z_s)^2}{2\sigma_z^2}\right) + \exp\left(-\frac{(z+z_s)^2}{2\sigma_z^2}\right) \right] \quad (3)$$

where  $C$  is the concentration of the pollutant at a location of coordinates  $(x,y,z)$ ,  $Y$  is the source emission rate, and  $\bar{u}$  is the wind speed. In this formula, the  $x$  axis corresponds to the the wind direction,  $y_s$  is the pollutant source ordinate and  $z_s$  is the release height above the ground. Instead of being deposited, the emission plume rebounds when it reaches the ground, which is a decent approximation regarding the studied gases.  $\sigma_y$  and  $\sigma_z$  are the horizontal and vertical Gaussian plume standard deviations and characterize the atmospheric conditions during the measurements. The modelled concentrations are strongly dependent on these two parameters. Polyphemus proposed several ways to parameterize these constants: the Doury formulas (Doury, 1976), the Pasquill-Turner formulas (Pasquill, 1961) and the Briggs formulas (Briggs, 1973). The Gaussian model and its parameterizations have been described by Korsakissok and Mallet (2009).

Briggs parameterization is the most adjustable parameterization of Polyphemus: not only does this parameterization consider the stability of the atmosphere via six classes from A (extremely unstable) to F (extremely stable) but it also takes into account the type of environment where the emissions occurred with an urban mode when the site is surrounded by buildings and a rural mode for the isolated sites. The standard deviations with Briggs parameterization are given by the following equations:

$$\sigma_y = \frac{\alpha x}{\sqrt{1 + \beta x}} \quad \text{and} \quad \sigma_z = \alpha x(1 + \beta x)^\gamma \quad (4)$$

where  $x$  is the downwind distance from the source and  $\alpha$ ,  $\beta$  and  $\gamma$  are coefficients that are dependent on the stability classes. All these coefficients can be found in Arya (1999).

Different source spatial extensions can be taken into account in this model. However, its configuration imposes the emission  $f_i$  of a given source to be spread homogeneously over such an extension. Simulations with the model for each individual source (ignoring the other one) can be used to compute each column of the  $H$  matrix in equation 1 and thus the full matrix and its inverse  $H^{-1}$ . Consequently,  $H^{-1}$  can be directly used for the inversion of the emission of the different sources as a function of the same number of indices on the measurements through their plumes:

$$f = H^{-1} p \quad (5)$$

## 2.4 Statistical inversion

The Bayesian principle of statistical inversion is to update a prior statistical knowledge (i.e. a prior estimate  $f^b$  and the uncertainties in it) of the emission rates  $f$  with statistical information from observations  $p$ . This update accounts for the statistical uncertainties in the observations, in the source, and in the transport model  $H$ , which is used to connect the emissions to the concentrations (Tarantola, 2005).

Since this theoretical framework allows for a control vector  $f$  and an observation vector  $p$  with different sizes to be taken into account, it can be used to assimilate the data from all plume crossings to compute the emission rate at once rather than repeating the computation and deriving statistics for the emission estimates out of the ensemble of computations as for the other techniques presented above. Furthermore, the previous techniques require a selection of the cases when the confidence in the tracer proxy or in the model is good enough to strengthen the robustness of the average (since the model and the tracer proxy skills highly depend on the shape and location of the plume during a given crossing). By assigning model and measurement uncertainties as a function of the plume crossing, this method allows the information from each crossing to be weighted differently according to its uncertainty when deriving the best estimate of the emissions.

The prior estimate of the emission  $f^b$  has to be independent of the atmospheric observations and can be provided by expert knowledge, emission inventories or process-based models. In practice, it is generally assumed that the uncertainties in  $f^b$ , in the observations and in the model have unbiased and Gaussian distributions. The prior uncertainty and the sum (henceforth called observation error) of the uncertainties in the measurement based on data  $p$  and on the observation operator  $H$  are thus



characterized by their covariance matrices  $B$  and  $R$ , respectively. Following these assumptions, the "posterior" statistical distribution of the emission rate knowing  $f^b$  and  $p$  is Gaussian and is characterized by its optimal estimate  $f^a$  and its covariance matrix  $A$  (which thus characterizes the unbiased and Gaussian uncertainty in  $f^a$ ) (Bocquet, 2012) given by equations:

$$f^a = f^b + BH^T(R + HBH^T)^{-1}(p - Hf^b) \quad (6)$$

$$A = (B^{-1} + H^T R^{-1} H)^{-1} \quad (7)$$

## 2.5 A statistical inversion based on tracer release and Gaussian transport modeling

This study aims to develop a new method to estimate the emission rate of a pollutant by merging the previously described methods to overcome the issues associated with their individual usage. This new method is based on the statistical inversion framework described above, where the  $H$  matrix is derived from Gaussian model simulations for each point or spread source.

The main concept is to use the very accurate information on the atmospheric transport in the area of interest from the tracer release method and the Gaussian model simulations of the tracer plume to optimize the configuration of the Briggs parameters in the Gaussian model and to assess this model uncertainty for the configuration of the observation errors in the statistical inversion framework. Different configurations of the Gaussian model are forced with the known tracer emission rate, and the configuration whose simulation of the tracer concentrations best fits the tracer concentration measurements is taken as the optimal one. In practice, this fit is primarily checked for the indices chosen for the definition of  $p$  (i.e. the integration of the plume concentrations above the background for a given plume crossing), but it is also checked in a qualitative way by analysing the shape of the modelled and measured signals.

The knowledge of the tracer emission and the measured tracer concentration is also used to correct for part of the measurement uncertainty. As will be explained in section 3.2, there is a type of spatial offset between the measured plume and the actual plumes due to the lag between the air intake and the concentration measurement, which can be significant in the measurement framework discussed in this study. The spatial offset between the modelled and measured tracer plume is thus applied to the modelled plume of the targeted gas. This offset does not impact the computation of the areas under the emission plumes and thus the tracer release technique. However, it can impact some statistical inversions using more complex indices for the observation vector, typically when attempting to individually invert several sources based on the identification of their overlapping plumes (see section 3.5).

The statistics of the misfits between the tracer measurements and the model-based indices when using the optimal model configuration are used to set-up the covariances of the observation (measurement and model) error  $R$ . This optimization of the model parameters and/or characterization of the observation errors can be performed for each individual crossing of the plume or for all plume crossings together. If the wind conditions evolve rapidly or if there is a weak confidence in the fact that the Briggs parameters are the main source of uncertainty in the model (such that optimizing these parameters would only compensate for other sources of errors), the use of a specific optimization of the model for each plume crossing may be preferable. Using general statistics of the tracer model data misfits from all plume crossings would prevent weighting of the observation error and thus the information for each plume crossing depending on the modelling skills. Deriving different observation errors for each plume crossing requires the extrapolation of the single set of tracer model misfits into statistics for each plume crossing. These different options need to be chosen depending on the experimental case (see section 3.5 for the options taken for the specific test case of this study).

We apply this new combined approach to the specific framework described in section 3.1 for the quantification of methane sources using acetylene as the tracer gas. The following sections describe the experiments under controlled conditions for both acetylene and methane that are used to evaluate this method.

### 3 Description of the set up

#### 3.1 General principle of controlled experiments

The following sections describe the experiments under controlled conditions for both acetylene and methane used to evaluate the approach detailed in section 2.5. A campaign was organized during two days of March 2016 at the Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE) in France (longitude: 48.708831°, latitude: 2.147613°, altitude asl: 163 m). One or two methane sources and one acetylene point release were generated with cylinders in the parking lot of the LSCE, which is located in a rural area in the southern region of Paris. The topography of this area is very flat, and only few buildings of small size can influence the atmospheric transport from the parking lot to the road where the concentrations are measured. This road is located approximately 150 metres away from the controlled sources. No major methane or acetylene sources in the vicinity of the LSCE could disturb the measurements. During this campaign, the methane and acetylene sources were dispersed in four different configurations to estimate the accuracy of the proposed method and the uncertainties linked to the misplacement of the tracer gas regarding the methane source. For each configuration, the methane and acetylene emission plumes were crossed 20–40 times (see table 1), and each serie of crossings were performed on the same day on a timescale of 1-2 hours. The usual increases in the acetylene and methane concentrations are 3–15 ppb and 50–500 ppb, respectively. Each measurement day was selected by taking the weather forecast into account and choosing days with a strong wind coming from the north to be able to measure the emissions from the parking lot on the measurement road. The average weather conditions of each campaign are summarized in table 1. The following sections describe the different components of the experimental and modelling systems used for the inversion of the methane sources.

Table 1 – Weather conditions during the four tests and configuration of the observation vector for the statistical inversion.

Trace gas configuration	Weather conditions (avg.)			Total number of transects	Number of selected transects	Configuration of the observation vector for the statistical inversion
	Temperature (°C)	Wind direction (degree)	Wind speed (m.s <sup>-1</sup> )			
Configuration 1	9.9 ± 0.3	N	3.2 ± 0.6	29	11	Integration of the entire plume
Configuration 2	9.2 ± 0.1	N	3.7 ± 0.8	20	9	Integration of the entire plume
Configuration 3	8.4 ± 0.8	N	2.5 ± 0.7	35	10	Integration of the entire plume
Configuration 4	11.3 ± 0.3	NW	2.0 ± 0.7	40	8	Integration of slices of the plume

#### 3.2 Analytical equipments

Downwind gas concentrations were measured using a G2203 cavity ring-down spectrometer (Picarro, Inc., Santa Clara CA), which continuously measures acetylene (C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>), methane (CH<sub>4</sub>) and water vapor (H<sub>2</sub>O). Based on infrared spectroscopy, the high precision of the system (precisions of 3 ppb and < 600 ppt for methane and acetylene, respectively, on 2 second interval) is due to its very long path length ( $\simeq$  20 km) and the small size of its measurement cell (< 35 mL). Mobile measurements with such an instrument have already been successfully performed and published in previous studies (Mønster et al., 2014; Yver Kwok et al., 2015), thus demonstrating the potential of this method.

During the field campaigns that we organized for this study, the system was set-up in a car and powered by the car's battery. The air sampler was placed on the roof at approximately 2 metres above the ground with a GPS (Hemisphere A21 Antenna) to provide the location of the measurements. The sampled air was sent into the instrument by an external pump system allowing a short response time between the sample inlet and the measurements (less than 30 seconds). Despite the relatively fast response time of this system, the direct comparison of the measured and modelled tracer concentrations introduced a time shift that was more or less constant (see section 2.5). The corresponding spatial offset is well characterized by the comparison between the modelled and measured acetylene plumes, and it is accounted for when comparing the modelled and simulated methane plumes (see section 3.5).

### 3.3 Tracer and target gas release

Acetylene is commonly used as a tracer. Due to its low concentration in the atmosphere ( $\simeq 0.1\text{--}0.3$  ppb), any release is easily detected. Acetylene also presents the benefit of being inert, and thus, negligible loss during the transport process is expected (Whitby and Altwicker, 1977). Other gases are suitable as tracers, such as  $\text{SF}_6$ , but acetylene is preferred because it is not a greenhouse gas. However, due to its flammability, its use requires specific precautions.

An acetylene cylinder (20 L) containing acetylene with a purity  $> 99.6\%$  was used as the tracer source. A methane cylinder (50 L) with a purity of  $99.5\%$  was used for controlled methane release. The flows of both gases were controlled by a 150 mm flow metre (Sho-rate, Brooks) able to measure fluxes between 0 and  $1500 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ . The different acetylene and methane emission rates were checked by weighing the cylinders before and after each test and timing the release duration. The amount of acetylene emitted was adjusted such that its emission plume can be detected on the roads where the measurements were performed while keeping it at the lowest rate possible to limit the risks associated with its flammability. In this study, we used emission rates from  $65$  to  $90 \text{ g}\cdot\text{h}^{-1}$  for acetylene. During the measurement campaigns, the cylinders were attached with straps to a fixed frame to avoid any accidents.

### 3.4 Tested configurations

This section details the four configurations utilized during this campaign for estimating the accuracy of the proposed method and the uncertainties linked to the misplacement of the tracer gas regarding the methane source (figure 1). The first configuration consisted of a collocated emission of acetylene and methane. This configuration enabled us to estimate the accuracy of the method and our system under optimal conditions. One cylinder of methane and one cylinder of acetylene were placed on a parking lot and connected together by a tube with a length of a few metres. This system aimed at ensuring the mixing of both gases and was designed to be as close as possible to the ideal situation in which methane and acetylene are emitted at the same location and under the same conditions. In principle, under such conditions, the tracer release experiment should provide a perfect proxy of the methane transport and should provide better estimates with the classic tracer release method than with the statistical inversion that relies on an imperfect, although optimized, modelling of the methane plume.

In reality, in industrial sites, methane source locations are not always well known, or it may be difficult to access these sources and place a tracer cylinder next to them. The second and third configurations tested the impact of non-collocated emissions. To represent this situation, one cylinder of methane and one cylinder of acetylene were used, and the methane cylinder was moved i) approximately 60 metres downwind from the acetylene bottle location (second configuration) and ii) approximately 35 metres laterally compared with the wind direction (third configuration).

Finally, during measurements on real industrial sites, several sources of methane may be encountered within the same site. The fourth configuration tested the influence of several methane sources on the estimation of their fluxes when one tracer source is used. For this purpose, a system of two tubes was connected to the methane cylinder, splitting its exhaust into two locations approximately 35 metres apart. The acetylene cylinder was collocated with one of the exhausts.

The advantage of the combined method proposed in section 2.5 over the traditional tracer release technique (which relies on the collocation of the target and the tracer gas sources) should be revealed in these last three experimental configurations. In the fourth case, the ability to quantify the total emissions from different sources (which cannot be achieved with the tracer release technique in our experimental framework due to the strong overlapping of the plumes from individual sources) is evaluated.

### 3.5 Gaussian model and inversion settings

In this section, we provide details on how the parameters of the Gaussian model are adjusted and how we set-up the different matrices and vectors corresponding to the application of equation 6 for the statistical inversion.

As explained in section 2.1,  $f$  is the control vector, which contains the targeted emission rates of the methane sources, and  $p$  is the observation vector. In this study, two different possibilities of calculating this vector are used. On the one hand, when we want to estimate the emission rate of a single source of methane (such as in configurations 1, 2 and 3),  $p$  corresponds to the integration of the entire methane

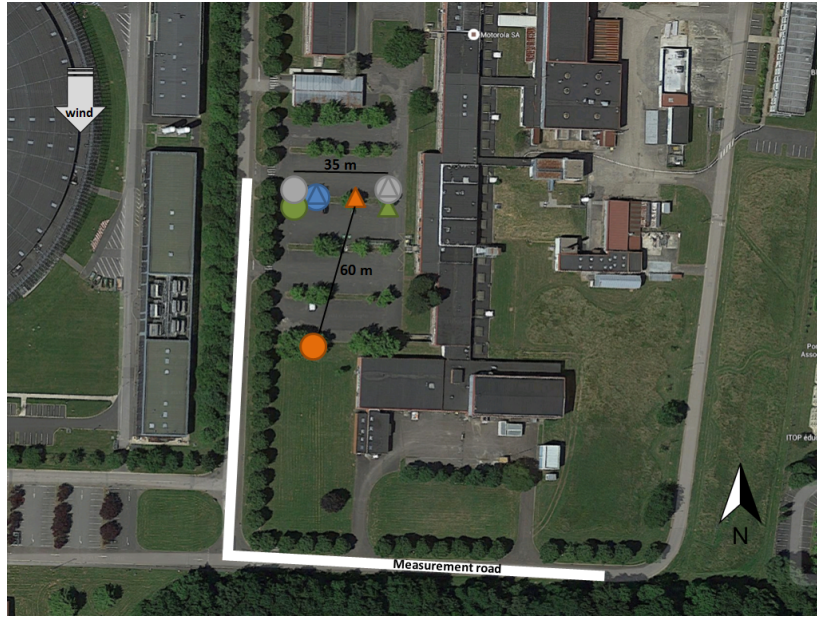


Figure 1 – The four tracer release configurations tested. Triangles represent the tracer source locations, and the circles mark methane sources. Each colour represents a configuration: blue is configuration 1, red is configuration 2, green is configuration 3 and, grey is configuration 4.

plume concentrations above the background and thereby called  $p^{ent}$ . On the other hand, for estimating the emission rates of several sources of methane, the observed methane signal is divided into five slices of equal time, with each slice  $p_i$  being integrated and gathered into the observation vector  $p^{stc}$ .

Regarding the observation operator  $H$ , which describes the atmospheric transport from the point sources to the measurement transects simulated with the Gaussian model, the model responses are simulated for the methane sources with a unit rate and the specific wind conditions of each cross-section. In a way that is consistent with the definition of  $p$ , depending on the number of methane sources, the modelled methane concentrations above the background are either entirely integrated for a single source or split into five parts equal in time, with each part being integrated for several methane sources. These model responses are simulated with the Gaussian model parameters selected based on the acetylene data. Indeed, for each transect, the measured tracer concentrations are compared with the modelled tracer concentrations forced with the known tracer emission rate for different Briggs stability classes. The selected Briggs parameterization corresponds to the parameterization for which the integration of the modelled tracer concentrations above the background is the closest to the value of the measured tracer concentration integration. The background concentration for each plume is defined as the value of the 5<sup>th</sup> percentile of the transect concentrations. Figure 2 illustrates this model parameterization selection. In this example, the concentrations modelled with the stability class B best fit the measured concentrations, which are represented in black. In some cases, the model cannot "reasonably" reproduce the observations due to the presence of large turbulent structures or transport conditions that are extremely unfavorable for the model (swift wind change and/or low wind conditions). When the relative error between the modelled integrated concentrations and the measured integrated concentrations is higher than 70%, the transect is removed from the analysis. This value of 70% is an empirical choice that has been defined with our dataset. In theory, the strategy of computing the statistics of the model error as a function of such misfits should ensure that the weight given to these transects in the inversion is low. However, in practice, we conservatively prefer to remove transects for which the confidence in the model is extremely low.

As explained in section 2.5, the modelling of the methane plume is shifted in time for comparison with

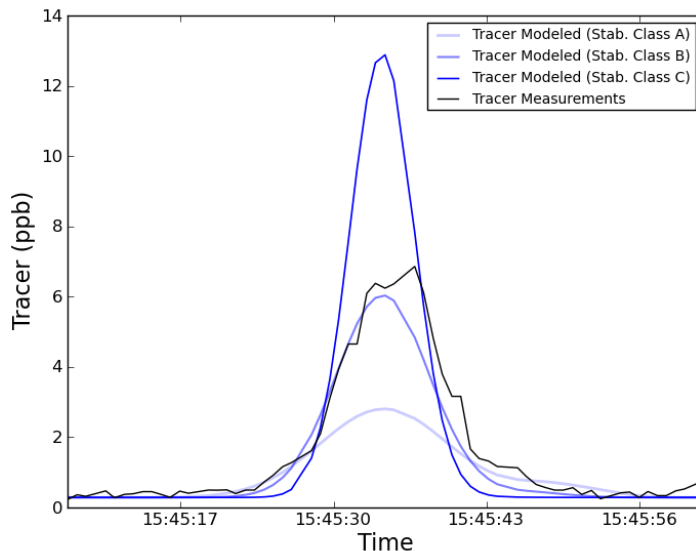


Figure 2 – Example of the Briggs parameterization selection with the acetylene data for peak 5 of configuration 2. The measured concentrations are presented in black, and the modelled concentrations with different stability classes are shown in blue.

the methane measurements using the offset between the tracer modelled and measured plumes. This offset is defined as the time between the maximum modelled tracer concentration and the maximum measured tracer concentration.

The modelled vs. measured tracer concentrations when using the optimized configuration of the transport model are used to set-up the variances of the observation error in the inversion configuration (i.e. the diagonal of the covariance matrix  $R$ ). In the case of a unique methane source, we use the absolute value of the difference between the modelled vs. measured integration of the plume concentrations above the background to set-up the standard deviation of the observation error for the corresponding observation (i.e. for the corresponding transect). When there are several methane sources within a site, we use the absolute value of the difference between the modelled vs. measured integration of each slice of the divided plume concentrations above the background to set-up the standard deviation of the observation error for the corresponding observation (i.e. for the corresponding slice of a given transect). We assign a minimum value for these standard deviations to prevent one transect or slice of a transect to dominate too much over the others in the inversion process. In the least squares minimization process associated with the statistical inversion, a data assimilated with a considerably lower observation error than the others may fully drive the inversion results. However, for some transects, an excellent fit may occur between the model and the measurements in terms of integration of the emission plumes whereas, the shapes of the modelled and measured tracer plumes can be significantly different, revealing some significant model and/or measurement errors. Applying a threshold to the observation errors limits the impact of their underestimation through the objective comparison between the modelled and measured integrated tracer concentrations within the emission plumes or slices of plumes. We make the assumption that there is no correlation of the errors when modelling or measuring plume slices from one slice to the other slice of a given transect or from one transect to another one such that the  $R$  matrix is set up diagonally.

As explained in section 2.4, the Bayesian principle of statistical inversion exploits the statistical prior knowledge on the emission rate, i.e. their estimate  $f^b$  and the associated uncertainties. When monitoring methane emissions from waste treatment sites, farms, or gas extraction or compression sites, the typical

prior knowledge of the emissions (from process models, typical national- to regional-scale factors) can bear more than 100% uncertainty and for many of these sites, the order of magnitude of the uncertainty in the emissions is not known. Despite working in the framework of a controlled release experiment, we attempt to set-up the inversion system to have the same conditions as when monitoring the emissions from such sites, and we thus set the standard deviation of the prior uncertainty in the targeted (even though well known) methane emission rate to 80% of their prior estimate, which is taken as  $1440 \text{ g.h}^{-1}$  its actual value in configurations 1, 2, and 3 and  $288 \text{ g.h}^{-1}$  for each methane in configuration 4. We also assumed that there is no correlation between the uncertainties in the methane emissions from different targeted sources within a site since they generally correspond to different processes (e.g. the aeration process and the clarification process in wastewater treatment plants (Yver Kwok et al., 2015)).

### 3.6 Using the Gaussian model and a theoretical experiment with synthetic data to estimate the errors due to the mislocation of the tracer emission when using the traditional tracer release technique

The Gaussian model is used to quantify the error induced by spatial offsets between the tracer and methane sources via a type of observing system simulation experiment (OSSE) with synthetic data (Rayner et al., 1996; Chevallier et al., 2007). Different sets of locations and thus spatial offsets between the tracer and methane sources are tested. Initially, the different configurations mentioned above are tested to provide estimates of this error for the actual computations with real data, except for the first configuration, where the tracer and methane sources are perfectly collocated. In homogeneous meteorological conditions, if the measurement road is orthogonal to the wind direction, a lateral offset between the methane and tracer sources (i.e. orthogonal to the wind direction and parallel to the road) has in principle no impact on the estimate calculated with the tracer release technique, unlike a downwind or an upwind shift. Their emission plumes are simply shifted without any impact on the integral of the concentrations. However, in our configuration 3, the meteorological conditions are not homogeneous even if homogeneous meteorological conditions are assumed in the OSSEs, and the road is curvilinear, and thus, the measurements are not perfectly orthogonal to the wind direction, which induces an error due to the mislocation of the tracer. This is the reason for why this error is estimated with the OSSEs for configuration 3.

Then, the theoretical upwind and downwind offsets (from 20 to 200 metres) between the methane and tracer sources are tested to obtain more insights about the evolution of this error as a function of the spatial offset. In the corresponding OSSEs, we assume that the true methane and acetylene emission rates are those used for the experiments with real data. The synthetic methane and acetylene concentrations are simulated with the Gaussian model forced with these emission rates and similar weather conditions as during the campaign. The corresponding emission plume transects for both gases are integrated along the same paths as during the campaign as well as for hypothetical orthogonal paths across the plumes at different distances (from 100 to 2750 metres) from the methane source to provide a general assessment of the evolution of the error due to spatial offsets between the methane and acetylene sources as a function of such a distance. The plume integrations are used to estimate the methane emission rate using the same formula as the tracer release technique (equation 2). The resulting methane emission rates are compared to the "true" one. The comparison provides a direct estimate of the error associated with the fact that the location of the tracer emission does not accurately fit with the location of the methane emission since in these computations, the same model configuration is used to simulate the acetylene and methane concentrations, and we ignore measurement errors.

## 4 Results

We now present and discuss the methane emission estimates from controlled point sources calculated with the tracer release technique (section 4.2) and with the combined statistical approach detailed in the previous sections 2 and 3 (section 4.3). These results are compared with the known methane emission rate to illustrate the ability of each method to derive a good estimate of the emissions. We also analyse the covariance matrix  $A$  of the theoretical uncertainty in the emission estimates when using the statistical approach (equation 7), which provides a complementary assessment, according to the inversion of our

own diagnostics, of the reliability of the results and of the level of separability between the two methane sources in configuration 4 of the experiments.

Standard deviations from this A matrix should provide the total uncertainty in the emission estimates, accounting for all sources of error when using statistical inversion, assuming that they are random and unbiased and have a Gaussian distribution. When using the tracer release technique, one way to estimate the uncertainty in the average estimate is to analyse the standard deviation  $STD_{tr}$  of the individual inversions based on each measurement transect and to derive it as  $\frac{STD_{tr}}{\sqrt{n}}$ , where  $n$  is the number of transects. This would assume that the sources of errors have the same statistical distribution for each transect, whereas the statistical inversion is set-up based on transect-specific diagnostics of the model error. Furthermore, the error associated with the mislocation of the tracer emission is assumed to generate a bias in the computation rather than a random error since the measurements are taken in a relatively narrow range of downwind positions. We thus use estimates of this error from the OSSEs (see section 3.6) to complement the assessment of uncertainty in the results from the tracer technique, with the standard deviation of the total uncertainty being taken as the root sum square of the bias due to the mislocation of the tracer estimate and of the standard deviation of the random uncertainty derived from the variability of the results from one transect to the other one (i.e.  $\frac{STD_{tr}}{\sqrt{n}}$ ). Therefore the error bars associated with the results from the tracer release technique and from the statistical inversions rely on different assumptions depending on the approach but they can still be compared in the sense that they should in principle both cover all sources of uncertainties.

#### 4.1 Observing system simulation experiments to estimate errors due to a mislocation of the tracer

This section presents the results from the OSSEs described in section 3.6. The bias in the estimates of the methane source with the tracer release technique due to the mislocation of the tracer regarding the methane sources is estimated to be 69.2% for configuration 2, 36.3% for configuration 3 and 73.0% for configuration 4 when the measurements are taken along the transects corresponding to the actual experiments with real data. Considering the amplitude of these errors, we can expect that our combined statistical approach has a high potential for providing better estimates than the tracer release approach for configurations 2, 3 and 4.

OSSEs are also used to examine the evolution of this error as a function of the spatial offset and to provide more insights about the influence of the distance between the sources and the measurements. The impact of several theoretical offsets along the wind direction (upwind and downwind) between the methane and tracer (from 20 to 200 metres) is evaluated for different configurations of the measurements with transects through the emission plumes at 100 to 2750 metres from the methane source. The corresponding estimates of errors are presented in figure 3 (with the results for the downwind and upwind shifts provided in figures 3a and 3b, respectively). The OSSEs confirm the importance of the collocation between the tracer and methane sources for the tracer release technique when the offset between the tracer and methane sources is along the wind direction.

When the tracer is released upwind of the methane source, the emission rate is overestimated because of the atmospheric diffusion, which makes the integral of the released tracer concentrations through the emission plume lower than if both sources were collocated. The opposite occurs if the released tracer is placed downwind of the methane emission location. In the following, we characterize the biases by their absolute value and the fraction of the actual source that they represent.

When the tracer source is either upwind or downwind of the methane source by more than 100 metres and the measurements are taken at less than 300 metres, the bias exceeds 40% of the actual value of the source. The errors due to upwind shifts are generally similar to the errors due to downwind shifts over the same distances. The more distant the measurements are performed, and the less impact the shift distance has. When the measurements are taken at more than 1200 metres, the bias due to the mislocation of the tracer becomes less than 20% of the actual value of the emissions but at such distances, the signal to measurement noise ratio would likely be too small to derive precise estimates of the emissions.

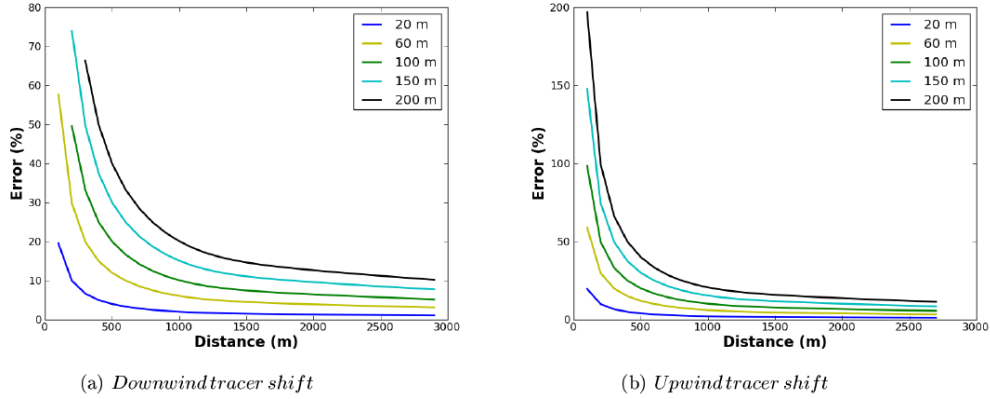


Figure 3 – Error in plume estimation with the tracer method depending on the measurement distance to the methane source and a shift of 20, 60, 100 150 and 200 m of the tracer location relative to the methane source using our Gaussian model.

## 4.2 Tracer release method estimates

The time series of acetylene and methane measurements for each tracer release experiment are shown in figure 4. Figure 5 presents one example of the measured acetylene and methane cross-sections used for calculating the methane emission rate for each campaign. For the first campaign, both the acetylene and methane profiles are similar due to the collocation and the mixing of the sources, but we can still observe a significant difference between both emission plumes. The shift between the sources is reflected by a smaller relative amplitude and a higher relative width of the acetylene plume compared to the methane plume in configuration 2 than in configuration 1 and by a lateral shift of the acetylene plume compared to the methane plume in configuration 3. At first sight, we distinguish only one methane emission plume in the measurements for configuration 4 because the plumes of the two methane sources strongly overlap, which does not strongly support the separation of these sources when analysing such a signal but which should help the tracer release technique to derive the total estimate of the emissions from the two sources. The emission rates calculated using the tracer release technique in this section are the averages of the rates calculated with the different crossings, and the corresponding estimates of uncertainty are described in the introduction of this section 4. Table 2 lists the estimated methane emission rates and the methane emission rates actually released for each configuration tested.

In the first configuration, the average methane emission rate is estimated to be  $454 \pm 50 \text{ g.h}^{-1}$  using the plume integration approach. The set of the methane emission estimates for each cross-section follows a Gaussian distribution. The actual controlled methane release rate was  $382 \pm 7 \text{ g.h}^{-1}$ , which is 19% lower than the averaged emission estimate and slightly more than one standard deviation of the assumed uncertainty in this average estimate. This misfit is associated with the measurement error because we are working with low emission sources, which can be challenging to quantify and which have an important influence on the measurement error.

The second configuration with the released tracer emitted 60 m upwind regarding the methane source provides an estimation of  $551 \pm 299 \text{ g.h}^{-1}$  of methane using the plume integration approach, whereas the actual amount of methane released was  $428 \pm 7 \text{ g.s}^{-1}$ . The relative difference between the estimated and actual values of the emissions is thus 29% and is logically larger than that in configuration 1. The uncertainty in the estimate encompasses the actual value of the emissions, mainly due to the bias associated with the mislocation of the tracer release.

In the third configuration, where acetylene is emitted with a lateral shift of 35 metres from the methane emission location, the estimated rate is  $421 \pm 158 \text{ g.h}^{-1}$  for an actual methane emission rate of  $360 \pm 7 \text{ g.h}^{-1}$  (plume integration approach). The relative difference between the values is 17% and is on the same order of magnitude as when the acetylene and methane sources are collocated, which can



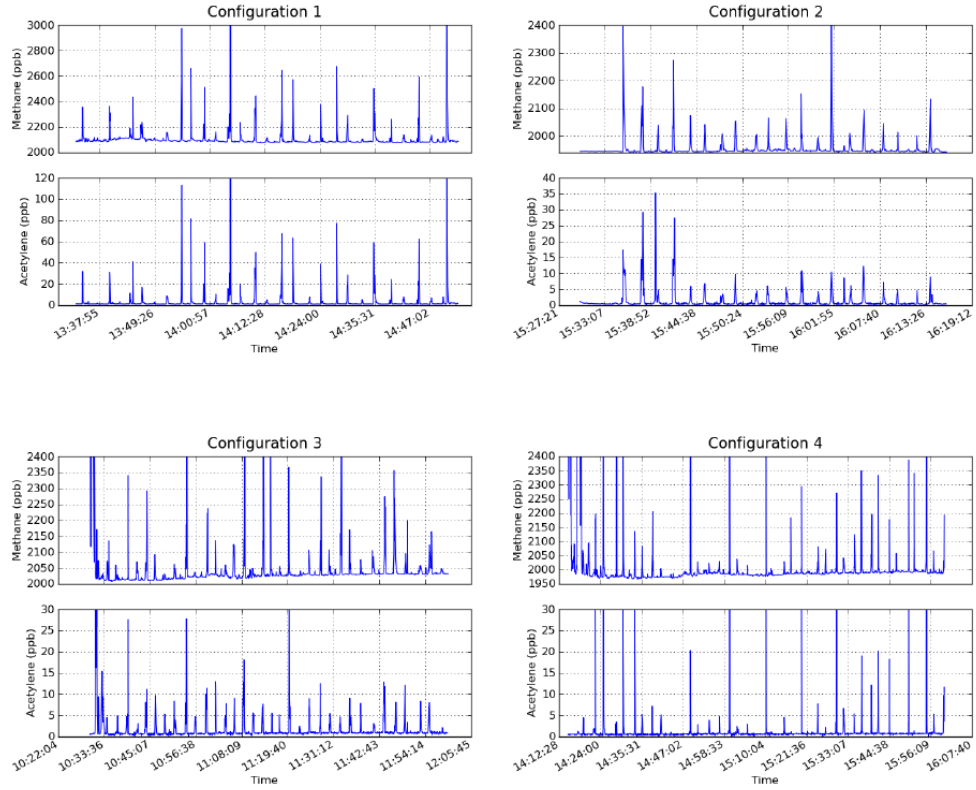


Figure 4 – Concentrations of methane and acetylene during the four tracer release experiments.

be explained by the weak impact, in theory, of the lateral shifts on the tracer (see section 4.1) and by the fact that given the short distance between the two emission points, both emission plumes are subject to similar meteorological conditions. The uncertainty in the estimate of the emission rate again well encompasses the actual value of the emissions.

In the fourth configuration, we attempted to use the tracer release technique to retrieve the total emission rate of two methane sources separated by 35 metres with the tracer collocated with one of the methane sources. The total actual methane emission rate was  $482 \pm 7 \text{ g.h}^{-1}$ , and this flux was equally split into  $241 \pm 7 \text{ g.h}^{-1}$  at each location. Using the tracer release method and the plume integration approach, the total emission rate is estimated to be  $760 \pm 358 \text{ g.h}^{-1}$ . The relative difference between this estimation and the actual estimation is thus 58%, which is considerably larger than in the previous configurations. However, the actual emissions are within the range of one standard deviation of the uncertainty in the emission estimate for which the bias due to the tracer mislocation should be very large.

### 4.3 Combined approach

Figure 6 presents examples of results obtained using the combined statistical approach with one or several methane sources. The behaviour of the inversion system and the values in the concentration and observation space are illustrated for one transect only. The graphs on the left side show the prior and the posterior fluxes in blue and green, respectively, which are compared with the real emission rate in white with one methane source in the upper case and two sources in the lower case. The graphs in

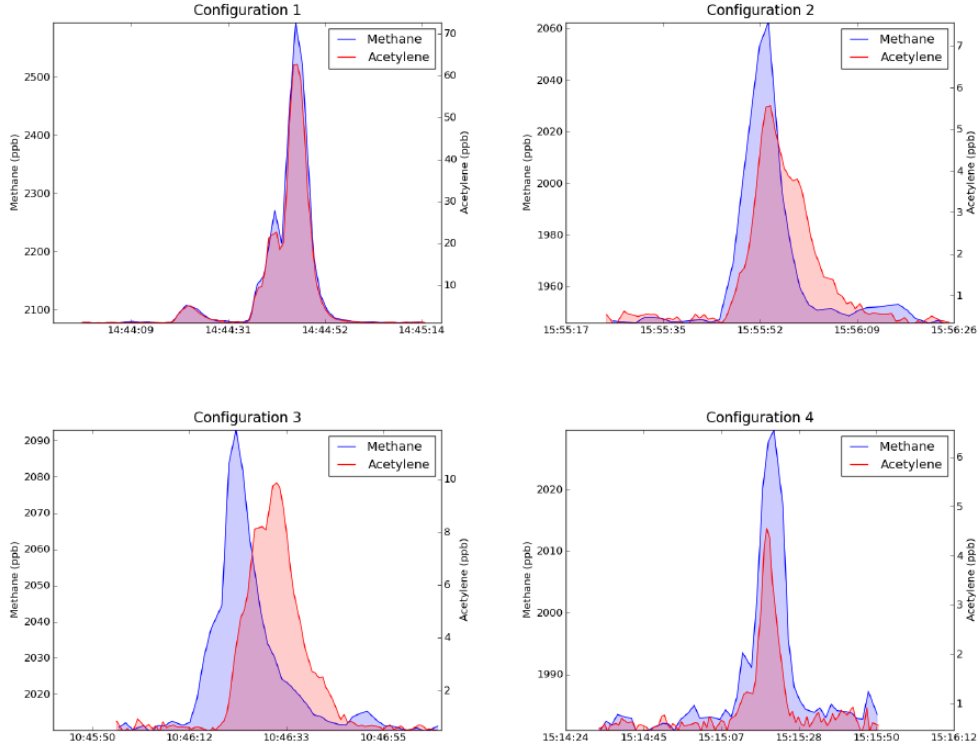


Figure 5 – Examples of cross-sections of the measured emission plumes of acetylene and methane (in red and blue, respectively) for each configuration.

Table 2 – Methane emission rates of the different controlled release configurations estimated with the different approaches and methane fluxes actually emitted during these tests. The uncertainties given with the tracer release method are detailed as follows: total uncertainty (standard deviation of the random uncertainty derived from the variability of the results from one transect to the other one ; bias due to the mislocation of the tracer).

	Configuration 1	Configuration 2	Configuration 3	Configuration 4
<b>Controlled methane release</b> ( $\text{g}\cdot\text{h}^{-1}$ )	$382 \pm 7$	$428 \pm 7$	$360 \pm 7$	$482 \pm 7$
<b>Tracer release method estimates</b> ( $\text{g}\cdot\text{h}^{-1}$ )	$454 \pm 50$ (50 ; 0)	$551 \pm 299$ (44 ; 296)	$421 \pm 158$ (89 ; 131)	$760 \pm 358$ (65 ; 352)
Relative difference to the control release (%)	19	29	17	58
<b>Combined approach estimates</b> ( $\text{g}\cdot\text{h}^{-1}$ )	$472 \pm 2$	$464 \pm 1$	$360 \pm 2$	$482 \pm 25$
Relative difference to the control release (%)	24	8	0	0

the centre present modelled concentrations with the prior and the posterior fluxes in comparison with the measured concentrations. The graphs on the right side present the indices used in the observation vector, i.e. integrations of the atmospheric emission plume above the background. In the upper case with one methane source, the entire plume is integrated, and in the lower case with two methane sources, the plume is divided into five slices equal in time and the observations correspond to the integrals over each of these slices (see section 3.5). These graphs illustrate that the posterior estimates of the fluxes have a better fit to the actual emission rate than the prior estimate. They also show that the simulated concentrations fit the measurements far better after inversion than when considering the prior simulation.

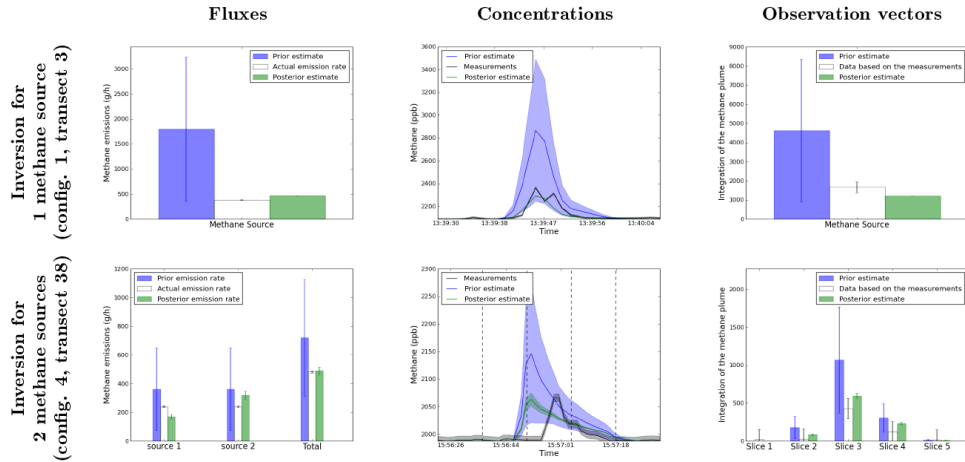


Figure 6 – Examples of prior, posterior and measured values of emission rates, concentrations and values of the observation vector for cases in configuration 1 and 4 (observations from a single transect shown).

For the first configuration, the methane emission is estimated to be  $472 \pm 2 \text{ g.h}^{-1}$ . Although this estimate is on a good order of magnitude, as expected, the tracer release method provides a better estimate (table 2). Indeed in this configuration, where the tracer and the methane are collocated and well mixed, the tracer is a better proxy of the atmospheric transport than the model. Again, this case is rare in real industrial cases.

For configuration 2, the statistical inversion provides an estimate of the total methane emission of  $464 \pm 1 \text{ g.h}^{-1}$ , which is a better estimate than with the tracer release method. The combined approach can clearly reduce the estimate error linked to a downwind or an upwind mislocation of the tracer. A similar improvement can be observed for configuration 3, where the statistical inversion provides an estimate of  $360 \pm 2 \text{ g.h}^{-1}$ , and for configuration 4 (with two methane sources, one located next to the tracer) where the estimate of the total emitted methane is  $482 \pm 25 \text{ g.h}^{-1}$ . In all these cases, the statistical inversion predicts a very low standard deviation of the posterior uncertainty in the emission estimates. This could appear optimistic (the diagnostics of these errors strongly rely on our set-up of the prior uncertainty and in our derivation of the model uncertainty), and in practice, for configurations 1 and 2, this standard deviation does not encompass the actual emissions. However, this weak estimate of the posterior uncertainty still reflects the very good fit between the inverted and actual total emissions in configurations 3 and 4. In general, the lower bars of uncertainties that we derived for the statistical inversion than for the tracer release are supported by the better results obtained with the combined approach.

For the partitioning of the two sources in configuration 4, the combined approach provides an estimate of  $173 \pm 14 \text{ g.h}^{-1}$  and  $310 \pm 25 \text{ g.h}^{-1}$  for the two methane sources when both sources actually emitted  $241 \pm 7 \text{ g.h}^{-1}$ . This weak ability to separate the signal from each source because of their close location is confirmed by the strongly negative correlations (-0.41) of the posterior uncertainties in these sources (diagnosed from matrix A).

## 5 Conclusions

We propose a new atmospheric concentration measurement-based method for estimating the transient emissions of gas from point sources or more generally from industrial sites. This method is based on a combination of the tracer release technique, Gaussian plume modelling and a statistical inversion framework. The concept is to optimize the model parameters based on the knowledge provided by the tracer release and concentration measurement and to exploit tracer model – measurement misfits to

prescribe the statistics of the modelling error in the statistical inversion framework. Compared to the traditional tracer release technique, the method has the advantage of exploiting the knowledge on the atmospheric transport provided by the known tracer known release and measured concentration without relying on the collocation of the tracer emission and of the targeted gas emission (which can hardly occur in real study cases). The statistical framework accounts for the different sources of uncertainties in the source estimate and for solving different targeted sources together and to consider any valuable number of pieces of information in the measurement of the targeted gas for such an inversion.

The advantage of this approach compared to the traditional tracer release technique is evaluated with field experiments close to our laboratory of controlled emissions of tracer gas (acetylene) and targeted gas (methane) under four spatial configurations and of mobile measurements of the acetylene and methane concentrations across their emission plumes. This set of experiments allowed us to prove that both approaches can provide consistent estimates of the transient targeted emission rates for each configuration. We showed that in the simplest case with one source of methane collocated with the tracer and well mixed, the tracer release method is the best approach for estimating the targeted emission rate since the tracer is a better proxy of the atmospheric transport than the Gaussian model, even if the configuration of the latter is optimized based on the tracer release and concentration measurements. However, this case is the most unlikely for real industrial sites, where the released tracer may be located away from the targeted sources which are generally multiple and spread over significant surfaces. We demonstrated that the mislocation of the released tracer induces large errors that depend not only on the distance between the tracer and the targeted sources but also on the distance between the measurements and the sources based on OSSEs. In these cases, we illustrated that the calibration of a Gaussian model using the tracer release method and the integration of the calibrated model in a statistical inversion framework help to reduce this error and to provide a better estimate of the point total emissions. We also illustrated the potential ability of the statistical inversion to separately estimate the different emission rates from multiple sources even if the two targeted sources of methane were too close such that their plumes were hardly separated by the inversion in the experiments conducted for this study.

During measurement campaigns on actual industrial sites, the locations of the methane sources are not exactly known as in our tests. This lack of information could induce additional uncertainties to our estimates. Another source of uncertainty is the fact that in the tested configurations, methane point sources were used whereas during field campaigns, spread and fugitive sources may be encountered.

The methodology proposed herein should thus now be evaluated and potentially refined for the monitoring of sources in actual industrial sites. Finally, this study and the tracer release technique target transient estimates of the emissions due to the inability to release a tracer continuously over long time periods. However, the combined tracer and modelling approach proposed here open the possibility to continuously monitor the emissions from a site using fixed continuous measurements and routine statistical atmospheric inversion. Sets of tracer release experiments for typical wind conditions would be used to optimize the model and inversion parameters for the continuous inversion of the emissions.

## Acknowledgement

Funding for this research was provided by Climate-KIC. The authors thank Philippe Ciais and the industrial chair BridGES (Thales Alenia Space, Veolia, UVSQ, CEA, CNRS) for their support in this research. We would also like to acknowledge LSCE for the permission to conduct the measurements in the parking lot, particularly Pascal Doira for his availability and his help.

## References

- Arya, S. P.: Air Pollution Meteorology and Dispersion, Oxford University Press, 1999.
- Babilotte, A., Lagier, T., Fiani, E., and Taramini, V.: Fugitive Methane Emissions from Landfills: Field Comparison of Five Methods on a French Landfill, *Journal of Environmental Engineering*, 136, 777–784, doi:10.1061/(ASCE)EE.1943-7870.0000260, URL [http://dx.doi.org/10.1061/\(ASCE\)EE.1943-7870.0000260](http://dx.doi.org/10.1061/(ASCE)EE.1943-7870.0000260), 2010.

- Baklanov, A. A. and Nuterman, R. B.: Multi-scale atmospheric environment modelling for urban areas, *Adv. Sci. Res.*, 3, 53–57, doi:10.5194/asr-3-53-2009, URL <http://www.adv-sci-res.net/3/53/2009/>, 2009.
- Bocquet, M.: An introduction to inverse modelling and parameter estimation for atmosphere and ocean sciences, vol. Special Issue, pp. 461–493, 2012.
- Bort, R. and Langeron, J.: Rapport National d’Inventaire pour la France au titre de la Convention cadre des Nations Unies sur les changements climatiques et du protocole de Kyoto, CITEPA, 2016.
- Brantley, H. L., Hagler, G. S. W., Kimbrough, E. S., Williams, R. W., Mukerjee, S., and Neas, L. M.: Mobile air monitoring data-processing strategies and effects on spatial air pollution trends, *Atmospheric Measurement Techniques*, 7, 2169–2183, doi:10.5194/amt-7-2169-2014, 2014.
- Briggs, G. A.: Diffusion estimation of small emissions, *Atmospheric Turbulence and Diffusion Laboratory Contribution*, pp. 83–145, 1973.
- Britter, R. E. and Hanna, S. R.: Flow and Dispersion in Urban Areas, *Annual Review of Fluid Mechanics*, 35, 469–496, doi:10.1146/annurev.fluid.35.101101.161147, URL <http://dx.doi.org/10.1146/annurev.fluid.35.101101.161147>, 2003.
- Bréon, F. M., Broquet, G., Puygrenier, V., Chevallier, F., Xueref-Remy, I., Ramonet, M., Dieudonné, E., Lopez, M., Schmidt, M., Perrussel, O., and Ciais, P.: An attempt at estimating Paris area CO<sub>2</sub> emissions from atmospheric concentration measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 1707–1724, doi:10.5194/acp-15-1707-2015, URL <http://www.atmos-chem-phys.net/15/1707/2015/>, 2015.
- Chevallier, F., Bréon, F.-M., and Rayner, P. J.: Contribution of the Orbiting Carbon Observatory to the estimation of CO<sub>2</sub> sources and sinks: Theoretical study in a variational data assimilation framework, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 112, D09 307, doi:10.1029/2006JD007375, URL <http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1029/2006JD007375/abstract>, 2007.
- Czepiel, P. M., Mosher, B., Harriss, R. C., Shorter, J. H., McManus, J. B., Kolb, C. E., Allwine, E., and Lamb, B. K.: Landfill methane emissions measured by enclosure and atmospheric tracer methods, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 101, 16 711–16 719, doi:10.1029/96JD00864, URL <http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1029/96JD00864/abstract>, 1996.
- Desroziers, G. and Ivanov, S.: Diagnosis and adaptive tuning of observation-error parameters in a variational assimilation, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 127, 1433–1452, doi:10.1002/qj.49712757417, 2001.
- Desroziers, G., Berre, L., Chapnik, B., and Poli, P.: Diagnosis of observation, background and analysis-error statistics in observation space, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 131, 3385–3396, doi:10.1256/qj.05.108, URL <http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1256/qj.05.108/abstract>, 2005.
- Doury, A.: Une méthode de calcul pratique et générale pour la prévision des pollutions véhiculées par l’atmosphère, Rapport CEA-R-4280, 1976.
- Goyal, A., Small, M. J., von Stackelberg, K., Burmistrov, D., and Jones, N.: Estimation of Fugitive Lead Emission Rates from Secondary Lead Facilities using Hierarchical Bayesian Models, *Environmental Science & Technology*, 39, 4929–4937, doi:10.1021/es035465e, 2005.
- Griffith, D. W. T., Bryant, G. R., Hsu, D., and Reisinger, A. R.: Methane Emissions from Free-Ranging Cattle: Comparison of Tracer and Integrated Horizontal Flux Techniques, *Journal of Environment Quality*, 37, 582, doi:10.2134/jeq2006.0426, URL <https://www.agronomy.org/publications/jeq/abstracts/37/2/582>, 2008.
- Gurney, K. R., Law, R. M., Denning, A. S., Rayner, P. J., Baker, D., Bousquet, P., Bruhwiler, L., Chen, Y.-H., Ciais, P., Fan, S., Fung, I. Y., Gloor, M., Heimann, M., Higuchi, K., John, J., Kowalczyk, E., Maki, T., Maksyutov, S., Peylin, P., Prather, M., Pak, B. C., Sarmiento, J., Taguchi, S., Takahashi, T., and Yuen, C.-W.: TransCom 3 CO<sub>2</sub> inversion intercomparison: 1. Annual mean control results

- and sensitivity to transport and prior flux information, *Tellus B*, 55, 555–579, doi:10.1034/j.1600-0889.2003.00049.x, URL <http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1034/j.1600-0889.2003.00049.x/abstract>, 2003.
- Korsakissok, I. and Mallet, V.: Comparative Study of Gaussian Dispersion Formulas within the Polyphemus Platform: Evaluation with Prairie Grass and Kincaid Experiments, *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 48, 2459–2473, doi:10.1175/2009JAMC2160.1, URL <http://journals.ametsoc.org/doi/abs/10.1175/2009JAMC2160.1>, 2009.
- Kuppel, S., Chevallier, F., and Peylin, P.: Quantifying the model structural error in carbon cycle data assimilation systems, *Geosci. Model Dev.*, 6, 45–55, doi:10.5194/gmd-6-45-2013, 2013.
- Lamb, B., Westberg, H., and Allwine, G.: Isoprene emission fluxes determined by an atmospheric tracer technique, *Atmospheric Environment* (1967), 20, 1–8, doi:10.1016/0004-6981(86)90201-5, 1986.
- Lamb, B. K., McManus, J. B., Shorter, J. H., Kolb, C. E., Mosher, B., Harriss, R. C., Allwine, E., Blaha, D., Howard, T., Guenther, A., Lott, R. A., Siverson, R., Westburg, H., and Zimmerman, P.: Development of Atmospheric Tracer Methods To Measure Methane Emissions from Natural Gas Facilities and Urban Areas, *Environmental Science & Technology*, 29, 1468–1479, doi:10.1021/es00006a007, URL <http://dx.doi.org/10.1021/es00006a007>, 1995.
- Letzel, M. O., Krane, M., and Raasch, S.: High resolution urban large-eddy simulation studies from street canyon to neighbourhood scale, *Atmospheric Environment*, 42, 8770–8784, doi:10.1016/j.atmosenv.2008.08.001, URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1352231008007036>, 2008.
- Logan, J. A., Prather, M. J., Wofsy, S. C., and McElroy, M. B.: Tropospheric chemistry: A global perspective, *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 86, 7210–7254, doi:10.1029/JC086iC08p07210, URL <http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1029/JC086iC08p07210/abstract>, 1981.
- Lushi, E. and Stockie, J. M.: An inverse Gaussian plume approach for estimating atmospheric pollutant emissions from multiple point sources, *Atmospheric Environment*, 44, 1097–1107, doi:10.1016/j.atmosenv.2009.11.039, URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1352231009009935>, 2010.
- Mallet, V., Quélo, D., Sportisse, B., Ahmed de Biasi, M., Debry, ., Korsakissok, I., Wu, L., Roustan, Y., Sartelet, K., Tombette, M., and Foudhil, H.: Technical Note: The air quality modeling system Polyphemus, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 5479–5487, doi:10.5194/acp-7-5479-2007, 2007.
- Marik, T. and Levin, I.: A new tracer experiment to estimate the methane emissions from a dairy cow shed using sulfur hexafluoride (SF<sub>6</sub>), *Global Biogeochemical Cycles*, 10, 413–418, doi:10.1029/96GB01456, URL <http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1029/96GB01456/abstract>, 1996.
- Möllmann-Coers, M., Klemp, D., Mannschreck, K., and Slemr, F.: Determination of anthropogenic emissions in the Augsburg area by the source–tracer-ratio method, *Atmospheric Environment*, 36, Supplement 1, 95–107, doi:10.1016/S1352-2310(02)00212-1, URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1352231002002121>, 2002.
- Mønster, J., Samuelsson, J., Kjeldsen, P., and Scheutz, C.: Quantification of methane emissions from 15 Danish landfills using the mobile tracer dispersion method, *Waste Management*, 35, 177–186, doi:10.1016/j.wasman.2014.09.006, URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0956053X14004280>, 2015.
- Mønster, J. G., Samuelsson, J., Kjeldsen, P., Rella, C. W., and Scheutz, C.: Quantifying methane emission from fugitive sources by combining tracer release and downwind measurements – A sensitivity analysis based on multiple field surveys, *Waste Management*, 34, 1416–1428, doi:10.1016/j.wasman.2014.03.025, 2014.
- Pasquill, F.: Estimation of the dispersion of windborne material, *Meteor. Mag.*, 90, 33–49, 1961.

- Rayner, P. J., Enting, I. G., and Trudinger, C. M.: Optimizing the CO<sub>2</sub> observing network for constraining sources and sinks, *Tellus B*, 48, 433–444, doi:10.1034/j.1600-0889.1996.t01-3-00003.x, URL <http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1034/j.1600-0889.1996.t01-3-00003.x/abstract>, 1996.
- Saunois, M., Bousquet, P., Poulter, B., Peregon, A., Ciais, P., Canadell, J. G., Dlugokencky, E. J., Etiope, G., Bastviken, D., Houweling, S., Janssens-Maenhout, G., Tubiello, F. N., Castaldi, S., Jackson, R. B., Alexe, M., Arora, V. K., Beerling, D. J., Bergamaschi, P., Blake, D. R., Brailsford, G., Brovkin, V., Bruhwiler, L., Crevoisier, C., Crill, P., Curry, C., Frankenberg, C., Gedney, N., Höglund-Isaksson, L., Ishizawa, M., Ito, A., Joos, F., Kim, H.-S., Kleinen, T., Krummel, P., Lamarque, J.-F., Langenfelds, R., Locatelli, R., Machida, T., Maksyutov, S., McDonald, K. C., Marshall, J., Melton, J. R., Morino, I., O’Doherty, S., Parmentier, F.-J. W., Patra, P. K., Peng, C., Peng, S., Peters, G. P., Pison, I., Prigent, C., Prinn, R., Ramonet, M., Riley, W. J., Saito, M., Schroeder, R., Simpson, I. J., Spahni, R., Steele, P., Takizawa, A., Thornton, B. F., Tian, H., Tohjima, Y., Viovy, N., Voulgarakis, A., van Weele, M., van der Werf, G., Weiss, R., Wiedinmyer, C., Wilton, D. J., Wiltshire, A., Worthy, D., Wunch, D. B., Xu, X., Yoshida, Y., Zhang, B., Zhang, Z., and Zhu, Q.: The Global Methane Budget: 2000–2012, *Earth System Science Data Discussions*, pp. 1–79, doi:10.5194/essd-2016-25, 2016.
- Scheutz, C., Samuelsson, J., Fredenslund, A. M., and Kjeldsen, P.: Quantification of multiple methane emission sources at landfills using a double tracer technique, *Waste Management*, 31, 1009–1017, doi:10.1016/j.wasman.2011.01.015, URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0956053X1100047X>, 2011.
- Tarantola, A.: *Inverse Problem Theory and Methods for Model Parameter Estimation*, SIAM, google-Books-ID: qLSv6fpeMowC, 2005.
- Van Poppel, M., Peters, J., and Bleux, N.: Methodology for setup and data processing of mobile air quality measurements to assess the spatial variability of concentrations in urban environments, *Environmental Pollution*, 183, 224–233, doi:10.1016/j.envpol.2013.02.020, URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0269749113000961>, 2013.
- Whitby, R. A. and Altwicker, E. R.: Acetylene in the atmosphere: sources, representative ambient concentrations and ratios to other hydrocarbons, *Atmospheric Environment*, 12, 1289–1296, 1977.
- Wu, L., Bocquet, M., Chevallier, F., Lauvaux, T., and Davis, K.: Hyperparameter estimation for uncertainty quantification in mesoscale carbon dioxide inversions, *Tellus B*, 65, doi:10.3402/tellusb.v65i0.20894, 2013.
- Yver Kwok, C. E., Müller, D., Caldw, C., Lebègue, B., Mønster, J. G., Rella, C. W., Scheutz, C., Schmidt, M., Ramonet, M., Warneke, T., Broquet, G., and Ciais, P.: Methane emission estimates using chamber and tracer release experiments for a municipal waste water treatment plant, *Atmos. Meas. Tech.*, 8, 2853–2867, doi:10.5194/amt-8-2853-2015, URL <http://www.atmos-meas-tech.net/8/2853/2015/>, 2015.

---

## Deux applications des méthodes d'estimation des émissions de méthane : une exploitation agricole et une installation de distribution de gaz

---

### Sommaire

3.1	Exploitation agricole : la "ferme de Grignon" . . . . .	53
3.1.1	Description du site . . . . .	53
3.1.2	Mesures atmosphériques . . . . .	54
3.1.3	Estimation des émissions de méthane avec la méthode traceur . . . . .	55
3.1.4	Optimisation du modèle gaussien à l'aide des concentrations en traceur mesurées	55
3.1.5	Estimation du biais causé par la non-colocalisation du traceur avec des OSSEs	57
3.1.6	Estimation des émissions de méthane avec l'inversion statistique paramétrée avec les données du gaz traceur . . . . .	57
3.2	Installation de distribution de gaz naturel située dans le nord de l'Europe . . . . .	67
3.2.1	Description du site . . . . .	67
3.2.2	Mesures atmosphériques . . . . .	68
3.2.3	Estimation des émissions de méthane avec la méthode traceur . . . . .	69
3.2.4	Optimisation du modèle gaussien à l'aide des concentrations en traceur mesurées	69
3.2.5	Estimation du biais causé par la non-colocalisation du traceur avec des OSSEs	70
3.2.6	Estimation des émissions de méthane avec l'inversion statistique paramétrée avec les données du gaz traceur . . . . .	70

---



Dans le chapitre précédent, nous avons présenté les avantages de la combinaison de la méthode traceur et du modèle gaussien intégrés dans une inversion statistique pour estimer les émissions de méthane à l'échelle du site. Après avoir testé cette nouvelle approche avec plusieurs expériences en émissions contrôlées (traceur et méthane), cette méthode va maintenant être mise en œuvre sur deux sites réels pour tester son applicabilité et sa robustesse dans des conditions plus complexes de répartition des sources de méthane (avec un nombre plus élevé de sources, cette fois diffuses plutôt que ponctuelles spatialement). Deux types d'activités connues pour leurs émissions de méthane ont été privilégiées : l'élevage de ruminants dans une exploitation agricole et le transport de gaz avec les risques de fuite du réseau de canalisation associés dans une installation de distribution de gaz. Les sites étudiés sont présentés dans le tableau 3.1. Les émissions de méthane de l'exploitation agricole étudiée proviennent essentiellement du système digestif des ruminants ainsi que de la fermentation de leurs déjections. Les quantités de méthane émises par ce type de site dépendent principalement du type et du nombre de ruminants présents dans le cheptel, les bovins étant les plus gros émetteurs en comparaison des ovins et des caprins. Ces émissions sont également dépendantes du régime alimentaire des animaux, et du mode et du temps de stockage du lisier produit par les animaux qui est susceptible de fermenter dans des conditions anaérobie. Les émissions de méthane rencontrées au niveau des installations de distribution de gaz naturel sont quant à elles plus variables et dépendent de l'état du réseau de canalisations acheminant le gaz et des procédures d'entretien et de maintenance.

TABLE 3.1 – Tableau récapitulatif des sites étudiés, des différentes campagnes réalisées sur ces sites, et des méthodes utilisées pour estimer leurs émissions de méthane.

Sites étudiés	Méthodes d'estimation des émissions de méthane			Autres mesures	Nombre de jours de mesure	Chapitre	
	Méthode traceur	Mesures mobiles et inversion déterministe gaussienne	Mesures statiques et inversion déterministe avec un modèle CFD				Inversion statistique gaussienne contrainte par la méthode traceur
Exploitation agricole de Grignon	✓			✓	Mesures isotopiques	1	3.1
Installation de distribution de gaz du nord de l'Europe	✓			✓	Mesures isotopiques DIAL Mesures des COV	2	3.2

Chacun des deux sites étudiés présente plusieurs zones d'émission de méthane étendues et séparées d'une distance significative en comparaison des distances entre ces sources et les routes où les concentrations au travers des panaches d'émission sont mesurées. Des mesures plus éloignées sont bien souvent impossibles compte tenu des flux émis par ces sites qui ne permettent pas de mesurer des signaux d'amplitude suffisante pour être détectés par nos instruments de mesures actuels. Cela rend le problème de la "co-localisation" du traceur et des sources de méthane discuté en section 2.4 plus important que pour les expériences académiques du chapitre 2 et encourage d'autant plus l'emploi du modèle gaussien et de l'inversion statistique : l'utilisation de la méthode traceur classique pour estimer les émissions totales des sites risque de donner un résultat biaisé alors que l'inversion statistique devrait permettre de mieux prendre en compte le fait que le traceur soit à distance des différentes sources de méthane et que celles-ci soient étendues. De plus, l'utilisation de l'inversion statistique doit également permettre de mieux estimer séparément les différentes sources au sein de chacun des sites. Nous avons effectué des campagnes de mesures sur ces deux sites afin d'estimer leurs émissions de méthane avec la méthode traceur classique ainsi qu'avec l'inversion statistique paramétrée avec les données du gaz traceur comme présentée dans la section 2.4. Sur chaque site, nous avons émis du gaz traceur et mesuré plusieurs fois les concentrations à travers les panaches de traceur et de méthane provenant du site durant environ une heure pour chaque série de mesures, en choisissant les jours où les conditions météorologiques étaient propices à cette technique, à savoir les jours avec un vent relativement constant soufflant avec une vitesse suffisante et dans une direction nous permettant d'avoir accès à une route traversant le panache d'émission. Nous avons émis le gaz traceur de façon constante dans la zone des sources de méthane de chaque site. Les mesures ont été réalisées à l'aide d'un analyseur CRDS installé dans un véhicule. L'application à des configurations des sources d'émission de méthane plus complexes que lors des expériences de validation académique du chapitre 2 ainsi que le peu de connaissances sur ces émissions nous a obligé à adapter la paramétrisation de notre système d'inversion et à mener des expériences de sensibilité aux paramètres de l'inversion (comme l'estimation *a priori* des émissions ou la paramétrisation des statistiques de l'erreur modèle) pour évaluer la robustesse de la méthode et des résultats obtenus.

### 3.1 Exploitation agricole : la "ferme de Grignon"

#### 3.1.1 Description du site

Une campagne de mesures a été réalisée à la ferme de Grignon afin de quantifier ses émissions de méthane. Cette ferme située à 30 km à l'ouest de Paris (longitude : 1,949159°, latitude : 48,840446 °, altitude : 129 m asl) est une exploitation expérimentale qui dépend de l'école d'ingénieurs AgroParisTech. Elle dispose d'environ 180 vaches laitières, de 500 brebis et de 400 ha de cultures permettant de mener des essais aussi bien pour des compléments alimentaires réduisant les émissions de méthane des ruminants que pour des semences et des techniques de culture visant à réduire notre impact environnemental. Un certain nombre d'entreprises privées font régulièrement appel à la ferme de Grignon pour tester l'efficacité de leurs nouveaux produits.

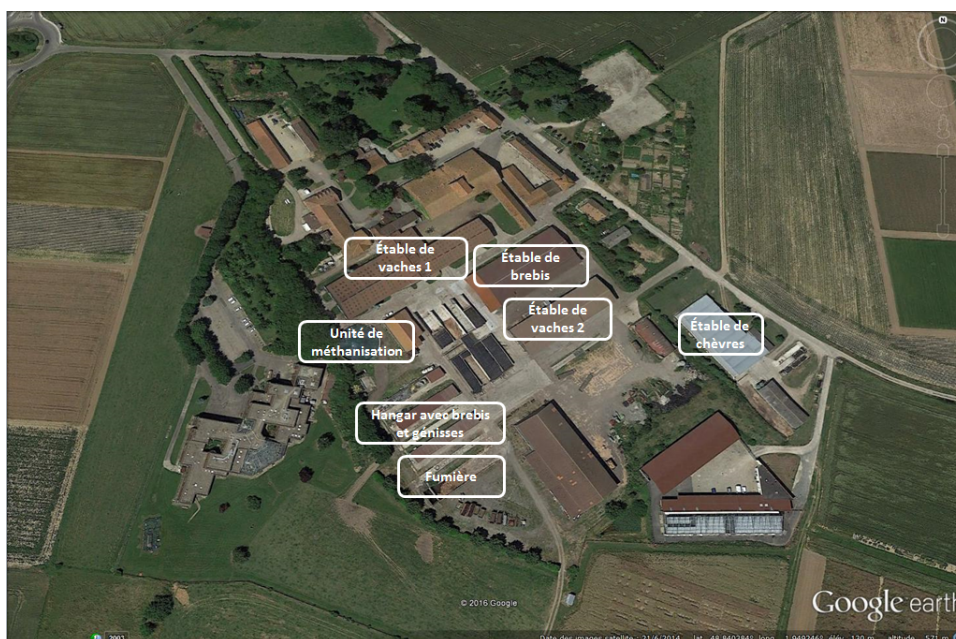


FIGURE 3.1 – Vue aérienne présentant les différentes sources de méthane du site de Grignon.

Les principales sources de méthane de la ferme de Grignon sont d'origine bactérienne puisque le méthane provient de la digestion des ruminants et de la fermentation des déchets agricoles et du lisier.

Les sources de méthane sont présentées sur la figure 3.1 et correspondent aux étables où étaient placés les animaux durant nos mesures ainsi qu'aux endroits où étaient stockées leurs déjections. Différentes espèces de ruminants sont regroupées au niveau du site de Grignon qui possède des vaches et des brebis tandis qu'une installation attenante dépendant de l'INRA élève des chèvres. Ces différentes espèces n'émettent pas les mêmes quantités de méthane, les bovins étant connus pour émettre plus de méthane que les ovins et les caprins (tableau 3.2). Un certain nombre d'études ont déjà été menées afin de caractériser les émissions de méthane moyenne de chaque types de ruminants (Johnson and Johnson, 1995; Murray et al., 1978).

Lors de notre campagne de mesures, 180 vaches laitières étaient placées dans la première étable et 80 génisses dans la seconde, 550 brebis dans la bergerie et le hangar contenait quant à lui 25 génisses et 100 brebis. L'exploitation attenante à la ferme de Grignon élève quant à elle 160 chèvres. Une première estimation des émissions de méthane de la ferme de Grignon de  $105 \text{ kg.j}^{-1}$  peut être déterminée en utilisant les facteurs d'émission propres à chaque espèce provenant du guide du GIEC pour l'inventaire des gaz à effet de serre (IPCC, 2007) regroupés dans le tableau 3.2.

D'autre part, en plus de la fumière où est habituellement stocké le lisier, une unité de méthanisation en cours d'installation lors de notre campagne de mesures contenait une partie du fumier. Ce type d'installation permet la production de biogaz à partir de la fermentation des déchets et des effluents agricoles tels que le lisier, le fumier ou les résidus de cultures. Pour ce faire, les déchets organiques et

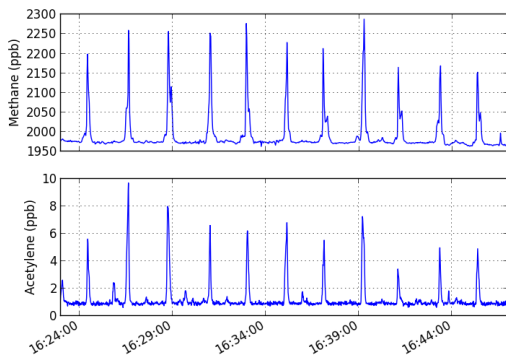
TABLE 3.2 – Facteurs d'émissions associés aux différents types de ruminants selon le guide du GIEC (IPCC, 2007). Ces facteurs prennent uniquement en compte les émissions associées à la digestion des ruminant et n'incluent donc pas les émissions dues à leurs excréments.

Ruminants	Vaches	Génisses	Brebis	Chèvres
Facteur d'émissions (en $\text{kg}\cdot\text{an}^{-1}$ par animal)	117	57	8	5

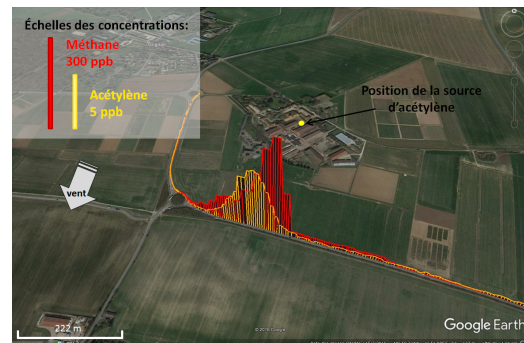
fermentescibles sont stockés à l'intérieur de l'unité de méthanisation dans des conditions anaérobies afin de faciliter la production de biogaz et permettre la production d'électricité et de chaleur. Lors de notre campagne de mesures, le biogaz produit par l'unité de méthanisation n'était pas encore récupéré par le système mais émis dans l'atmosphère.

### 3.1.2 Mesures atmosphériques

La campagne de mesures au sein de la ferme de Grignon s'est déroulée dans la journée du 19 mars 2015. La bouteille d'acétylène était placée à proximité de la source de méthane que l'on suspecte être la plus importante, à savoir l'étable de vaches 1 contenant le plus de bovins, et le flux d'acétylène émis était de  $6,8 \text{ kg}\cdot\text{j}^{-1}$ . Durant la campagne de mesures, les conditions météorologiques étaient relativement stables avec un vent venant du nord suivant un angle de  $19^\circ$  et des vitesses de vent comprises entre  $5$  et  $6 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ . Les mesures ont donc été réalisées sur une route transversale située à  $450$  mètres au sud du site. Le rayonnement solaire incident modéré induisait des conditions atmosphériques relativement stables pouvant être représentées par les classes de stabilité de Pasquill C ou D. Avec de telles conditions de vent, la source ayant le plus de chance de pouvoir être quantifiée individuellement avec l'inversion statistique sans pâtir de problèmes de séparabilité avec les autres sources est l'étable des chèvres. En effet, celle-ci est située un peu à l'écart à l'est des autres sources et a donc plus de chances d'avoir un signal distinct des autres sources de méthane au niveau des mesures au sud du site.



(a) Série temporelle en méthane et acétylène



(b) Exemple de profil de concentrations mesuré au-dessus des concentrations de fond

FIGURE 3.2 – (a) Concentrations en acétylène et en méthane mesurées lors des différentes traversées du panache d'émission provenant de la ferme de Grignon et (b) Exemple du profil des concentrations mesurées au-dessus des concentrations de fond lors de la traversée 5. Les concentrations en acétylène et méthane sont représentées en jaune et rouge respectivement et la position de la source de traceur est indiquée par un point jaune.

La figure 3.2a montre la série temporelle des concentrations en méthane et en acétylène mesurés lors de la campagne à la ferme de Grignon. Nous avons réalisé 11 traversées du panache d'émission sur une période d'une trentaine de minutes. Les concentrations de fond en méthane et en acétylène sont respectivement de  $1\,970$  et  $0,5$  ppb et les maxima de concentrations mesurées lors de chaque traversée varie entre  $2\,150$  et  $2\,300$  ppb pour le méthane et entre  $3$  et  $10$  ppb pour l'acétylène. Ces variations sont essentiellement dues aux fluctuations de la vitesse et de la direction du vent durant les mesures.

L'exemple de la cinquième traversée des panaches de méthane et d'acétylène provenant de la ferme de Grignon est présenté sur la figure 3.2b. Les concentrations en méthane et en acétylène sont représentées en rouge et jaune respectivement et la localisation de la source d'acétylène au sein de la ferme est symbolisée par un point jaune. La forme particulière du panache de méthane que l'on retrouve lors des différentes traversées, plus large et avec plus de maxima locaux que celui de l'acétylène, indique bien que les sources de méthane au sein de l'exploitation agricoles ne sont pas vues comme un unique point source à la distance des mesures et qu'il y a un potentiel pour distinguer les différentes signatures. La superposition des signaux de méthane et d'acétylène reflète le fait que la source de traceur soit placée au milieu des différentes sources de méthane de la ferme de Grignon.

### 3.1.3 Estimation des émissions de méthane avec la méthode traceur

Les estimations des émissions en méthane obtenues pour chaque traversée par la méthode traceur sont comprises entre 129 et 252  $\text{kg}\cdot\text{j}^{-1}$  et sont présentées dans le tableau 3.3. La moyenne de ces différentes estimations nous donne un flux d'émission moyen de  $207 \pm 96$  (12; 95)  $\text{kg}\cdot\text{j}^{-1}$ . L'incertitude donnée correspond à l'incertitude totale qui est calculée comme la racine carrée de la somme des carrés de deux termes donnés entre parenthèses :

- L'écart-type des différentes estimations divisé par la racine carrée du nombre de traversées (erreur type sur l'estimation de la moyenne avec un échantillon de dimension finie)
- Le biais associé à une mauvaise colocalisation du traceur (voir la section 2.4.2.2) et la section suivante).

TABLE 3.3 – Estimations des émissions en méthane de la ferme de Grignon par la méthode traceur. Le flux moyen est calculé à partir des estimations données pour les 11 traversées représentées sur la figure 3.2. Les incertitudes données sont indiquées de la façon suivante : incertitude totale (erreur type sur l'estimation de la moyenne avec un échantillon de dimension finie calculée en divisant l'écart-type des différentes estimations par la racine carrée du nombre de traversées; biais associé à une mauvaise colocalisation du traceur).

Numéro du pic	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
Estimation des émissions de méthane pour chaque traversée ( $\text{kg}\cdot\text{j}^{-1}$ )	242	129	169	252	245	157	204	197	217	225	240
Estimation des émissions de méthane moyenne $\pm$ les incertitudes totales ( $\text{kg}\cdot\text{j}^{-1}$ )	$207 \pm 96$ (12; 95)										

Cette estimation moyenne des émissions en méthane de la ferme de Grignon est deux fois supérieure à celle obtenue avec les facteurs d'émission donnés par le GIEC. Cette différence peut d'une part être expliquée par le fait que l'estimation utilisant les facteurs d'émission ne prend en compte que les émissions de méthane dues à la digestion des animaux et ne considère donc pas celles dues au stockage des déchets agricoles fermentescibles. D'autre part, le nombre important de sources au sein de l'exploitation agricole de Grignon et leur localisation rend le problème de la colocalisation du traceur difficile. Cela peut entraîner un biais important de l'estimation des émissions de méthane avec la méthode traceur classique comme l'atteste le biais important trouvé ici.

### 3.1.4 Optimisation du modèle gaussien à l'aide des concentrations en traceur mesurées

Après avoir recalé spatialement les données (section 2.4), les concentrations en acétylène mesurées permettent de choisir parmi les classes de stabilité C et D celle permettant au modèle gaussien de mieux représenter les panaches atmosphériques lors de chaque traversée étant donné les conditions météorologiques durant nos mesures. Pour cela, les concentrations en traceur sont simulées grâce au modèle gaussien avec ces deux classes de stabilité, le flux d'acétylène utilisé lors de la campagne et les conditions de vent survenues durant la campagne et obtenues grâce au modèle ECMWF (European Centre for Medium-Range Weather Forecasts). Nous avons utilisé les données de vent du modèle ECMWF car celles que nous avons collectées durant la campagne ne sont pas exploitables du fait d'un mauvais positionnement de la station météorologique à proximité des étables à l'origine de turbulences. La classe

de stabilité permettant de modéliser le profil de concentrations présentant l'aire la plus proche de celle calculée sous le profil des concentrations en traceur mesurées est sélectionnée. Les classes de stabilité sélectionnées pour les différentes traversées sont regroupées dans le tableau 3.4.

TABLE 3.4 – Classes de stabilité sélectionnées pour chaque traversée du panache d'émission réalisée lors de la campagne de mesures à la ferme de Grignon et les écarts relatifs entre les aires sous les signaux mesurés et modélisés avec le modèle gaussien pour les classes de stabilité C et D.

Traversée	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
Écart relatif modèle observation avec la classe de stabilité C (%)	56	52	50	23	36	40	24	48	2	11	17
Écart relatif modèle observation avec la classe de stabilité D (%)	45	34	33	3	13	20	28	30	37	22	25
Classe de stabilité sélectionnée	-	D	D	D	D	D	C	D	C	C	C

La figure 3.3 illustre le choix de la classe de stabilité du modèle gaussien à l'aide des concentrations en traceur mesurées. Sur chacun des deux exemples, le profil des concentrations en traceur mesurées lors de la traversée du panache est tracé en noir tandis que les concentrations simulées à l'aide du modèle gaussien avec les classes de stabilité C et D sont en bleu clair et bleu foncé respectivement. Le graphique de gauche présente le profil de la traversée 10 pour laquelle la classe de stabilité C est la plus adaptée tandis que la figure de droite montre le profil de la traversée 4 pour laquelle la classe de stabilité D a été sélectionnée.

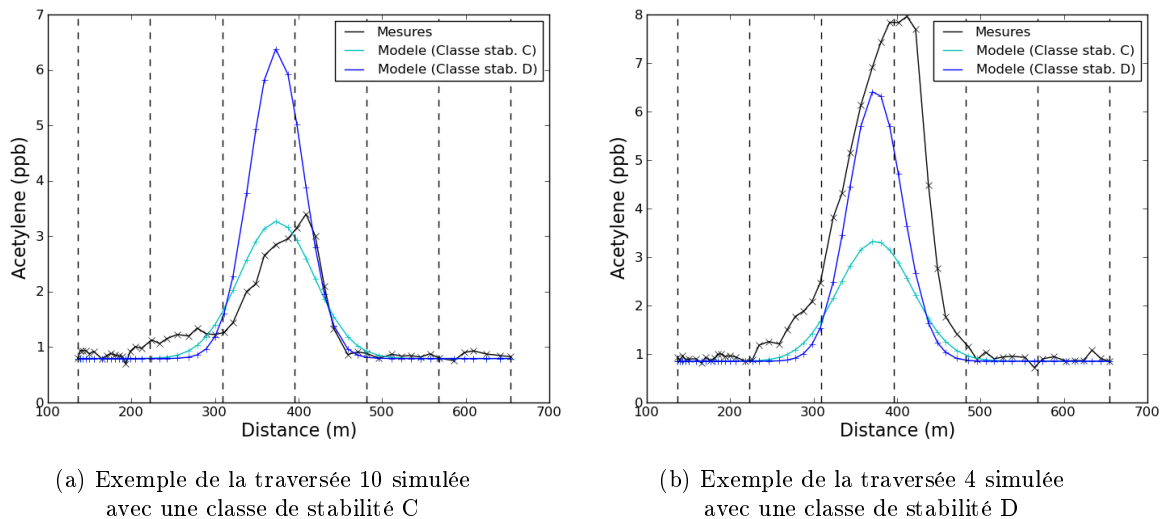


FIGURE 3.3 – Exemple des profils de concentrations en traceur mesurées et modélisées avec le modèle gaussien pour les traversées 4 et 10 réalisées près de la ferme de Grignon. Les concentrations mesurées sont représentées en noir et celles modélisées avec les classes de stabilité C et D en bleu clair et bleu foncé respectivement.

Dix traversées sur onze ont été utilisées pour l'inversion statistique, la première traversée n'a pas été utilisée pour l'inversion statistique car l'écart relatif entre les aires sous les signaux mesurés et modélisés avec chacune des deux classes de stabilité C et D est supérieur à 45 %, aucune de ces classes de stabilité ne permet donc de représenter correctement les panaches atmosphériques.

### 3.1.5 Estimation du biais causé par la non-colocalisation du traceur avec des OSSEs

Comme pour les essais réalisés sur le parking du LSCE présentés en section 2.4.2.2, nous utilisons des OSSEs avec le modèle gaussien pour estimer l'erreur liée au problème de colocalisation du traceur par rapport aux différentes sources de méthane de la ferme de Grignon. Pour cela, des simulations des panaches d'acétylène et de méthane sont réalisées en forçant le modèle gaussien avec le flux d'acétylène émis lors de la campagne, les flux théoriques de méthane répartis sur toute la surface des différentes sources et calculés à partir des facteurs d'émission du GIEC ainsi qu'avec les conditions météorologiques et atmosphériques propres à chaque traversée du panache d'émission (conditions de vent obtenues avec le modèle ECMWF et classe de stabilité déterminées dans la section précédente). Pour chaque traversée, on modélise les profils de concentrations en traceur et en méthane aux localisations où les mesures sont réalisées. Les aires sous les signaux modélisés pour le traceur et le méthane sont utilisées pour estimer le flux de méthane grâce à la formule de la méthode traceur (voir section 2.1). Cette estimation du flux de méthane est comparée au flux total de méthane réellement utilisé dans le modèle afin de déterminer l'erreur liée au fait que le traceur ne puisse être colocalisé avec les différentes sources. Les erreurs relatives au problème de colocalisation du traceur déterminées à l'aide de cette méthode sont comprises entre 39 et 53 % du flux total de méthane utilisé en entrée du modèle selon les traversées étudiées. En faisant la moyenne des erreurs obtenues pour les différentes traversées, on obtient un biais relatif sur l'estimation moyenne des émissions de 46 % ( $\simeq 95 \text{ kg.j}^{-1}$ ). L'importance de cette erreur justifie l'utilisation de l'inversion statistique afin d'être moins dépendant de la colocalisation du traceur et des sources de méthane étudiées.

### 3.1.6 Estimation des émissions de méthane avec l'inversion statistique paramétrée avec les données du gaz traceur

Dans cette section, nous allons détailler les différents vecteurs et matrices utilisés dans l'équation 2.13 de l'inversion statistique ainsi que leur adaptation à la configuration des sources de méthane rencontrées au sein de la ferme de Grignon. Comme expliqué en section 2.3.3,  $f$  est le vecteur de contrôle contenant les flux d'émission des sources de méthane étudiées et  $p$  est le vecteur d'observation. En ce qui concerne la matrice de transport  $H$ , qui décrit le transport atmosphérique de la source jusqu'à la section de mesures simulé avec le modèle gaussien, elle est déterminée en simulant les fonctions de réponse de chacune des sources de méthane en forçant le modèle gaussien avec un flux unitaire, les conditions météorologiques et la classe de stabilité de Briggs sélectionnée pour chaque traversée. La matrice de covariance d'erreur d'observation  $R$  est déterminée en comparant les concentrations en traceur mesurées et modélisées avec la configuration optimale du modèle gaussien. Les estimations *a priori* des émissions des différentes sources de méthane nécessaires à l'approche bayésienne de l'inversion statistique sont regroupées dans le vecteur  $f^b$  et les incertitudes associées à ces flux sont regroupés dans la matrice de covariance de l'incertitude *a priori*  $B$ .

#### 3.1.6.1 Le vecteur de contrôle $f$

Le vecteur de contrôle utilisé pour cette inversion statistique est composé des flux d'émission des sources de méthane significatives de la ferme de Grignon. Nous avons choisi de prendre en compte séparément sept sources de méthane au sein de l'installation agricole parmi lesquelles on trouve deux étables contenant des vaches, une autre contenant des moutons et un hangar contenant à la fois des génisses et des brebis. Nous avons également défini l'unité de méthanisation et la fumière comme étant des sources significatives de méthane. Enfin l'installation attenante à la ferme de Grignon est également prise en compte dans cette étude. Toute autre source susceptible d'émettre du méthane au niveau de ce site est supposée trop faible par rapport à celles citées plus haut et n'est donc pas prise en compte. Pour chacune de ces sources, les émissions de méthane sont uniformément réparties sur l'ensemble de la surface occupée et leur répartition spatiale est présentée sur la figure 3.1 et sont supposées constantes durant le temps de nos mesures ( $\simeq 1\text{h}$ ). Le vecteur de contrôle  $f$  est donc de dimension 7.

### 3.1.6.2 Le vecteur d'observation $\mathbf{p}$

L'estimation des émissions des sept sources de méthane présentées ci-dessus au sein de la ferme de Grignon implique la division du signal atmosphérique observé en plusieurs segments de distance identique. Plusieurs essais ont été réalisés afin de déterminer le nombre de segments le plus adapté à ce type d'étude. Nous nous sommes aperçus que le nombre de segments devait être suffisamment important pour pouvoir prendre en compte une forme spécifique du panache de méthane mais qu'un nombre trop important de segments peut mener le système à apporter plus de poids à certaines structures turbulentes que le modèle ne serait pas capable de modéliser et reporterait son incapacité à les reproduire sur ses estimations des flux. Nous en sommes venus à la conclusion que, pour ce site, une division des traversées de panache en six segments était optimale. Un exemple de cette division du panache en six segments est présenté sur la figure 3.4 où ces segments sont délimités par des pointillés noirs. L'aire entre le profil de concentrations mesurées et les concentrations de fond en méthane est intégrée pour chacun de ces six segments et regroupée dans le vecteur d'observation  $\mathbf{p}$  et l'inversion statistique est réalisée en utilisant les dix traversées ensemble. Le vecteur d'observation est donc de dimension 60.

### 3.1.6.3 La matrice de transport $\mathbf{H}$

L'opérateur d'observation  $\mathbf{H}$  décrit le transport atmosphérique entre le point source et la section où les mesures sont réalisées avec le modèle gaussien. Il est déterminé en modélisant séparément les panaches d'émission des sept sources de méthane du site (voir la section 3.1.6.1) en forçant le modèle gaussien avec un flux unitaire, les conditions météorologiques survenues lors de la campagne et la paramétrisation de la classe de stabilité atmosphérique déterminée grâce aux concentrations en traceur. Le décalage spatial induit par le temps de réponse de l'instrument et la vitesse de la voiture est également corrigé comme expliqué dans la section 2.4.2.2. Chaque fonction de réponse est découpée en six segments, l'aire sous le signal modélisé est calculée pour tous les segments et intégrée à l'opérateur d'observation  $\mathbf{H}$ . La matrice de transport  $\mathbf{H}$  est donc de dimension  $60 \times 7$ .

La figure 3.4 montre les fonctions de réponse des différentes sources de méthane de la ferme de Grignon obtenues avec le modèle gaussien, représentées par les courbes en traits continus, superposées aux concentrations de méthane mesurées symbolisées par la courbe en pointillés. On peut voir sur cette figure que les différentes fonctions de réponse sont réparties sur l'ensemble du signal mesuré. On constate également que les signaux correspondant à l'unité de méthanisation et à l'étable de vaches 1 sont superposés, l'inversion statistique pourrait donc avoir des difficultés à séparer ces deux sources. De même les signaux correspondant au hangar, à la fumière, à la bergerie et à l'étable de vaches 2 se chevauchent et pourront être difficiles à séparer contrairement aux émissions liées à la chèvrerie dont la fonction de réponse est séparée des autres (comme cela avait été anticipé en section 3.1.2).

### 3.1.6.4 La matrice de covariance d'erreur d'observation $\mathbf{R}$

En plus de permettre le choix de la classe de stabilité utilisée dans le modèle gaussien pour chaque traversée et la prise en compte du décalage spatial induit par la vitesse de la voiture, les concentrations en traceur nous aident à estimer les erreurs d'observation. De façon générale, on suppose que l'erreur d'observation (i.e. le cumul des erreurs de mesures et de simulation, comme l'erreur de représentativité du modèle par exemple) n'est pas corrélée d'une variable d'observation à l'autre (d'un segment de traversée à l'autre), la matrice  $\mathbf{R}$  est donc systématiquement une matrice diagonale. L'erreur d'observation lors de la simulation de l'acétylène est caractérisée par les écarts entre les simulations et les mesures des concentrations d'acétylène. La variabilité des mesures d'acétylène est utilisée pour normaliser cette erreur d'observation pour l'acétylène en vue de l'extrapoler aux écarts entre les mesures et les simulations des concentrations de méthane.

Deux méthodes de calcul de l'écart-type de l'erreur d'observation (termes diagonaux de la matrice  $\mathbf{R}$ ) ont été testées à partir des différences d'aires en acétylène mesurées et modélisées pour les différents segments des traversées de panache. La première méthode consiste à estimer statistiquement et utiliser une erreur relative moyenne à partir des écarts entre les concentrations en traceur modélisées et mesurées sur l'ensemble des segments de chaque traversée de panache. La seconde consiste à faire une estimation de l'erreur pour chaque segment de traversée à partir de l'unique écart entre les concentrations en acétylène modélisées et mesurées correspondant à ce segment. Dans les deux cas, l'écart-type de l'erreur d'observation pour la simulation de l'acétylène est converti en écart-type de l'erreur d'observation pour

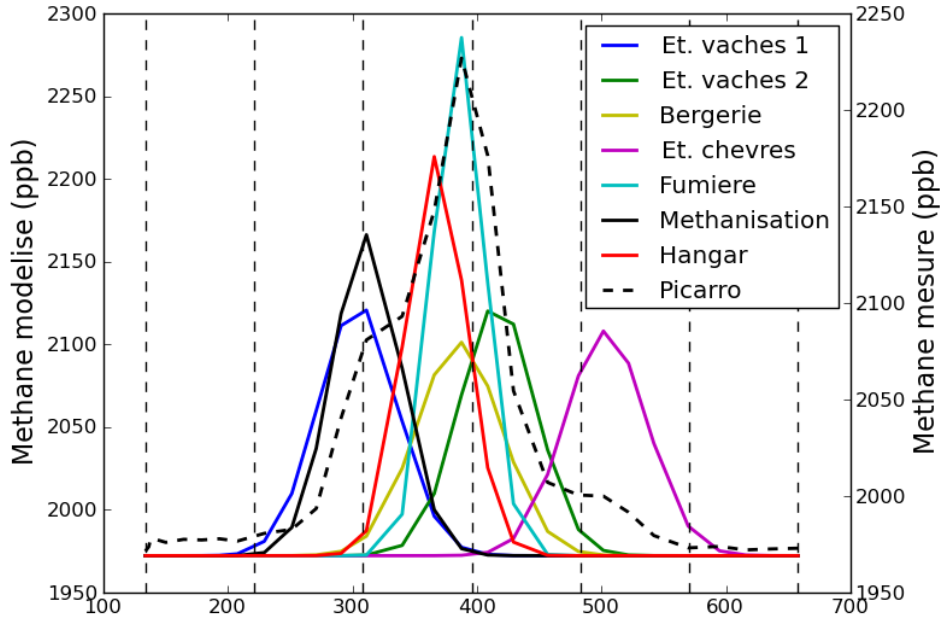


FIGURE 3.4 – Fonctions de réponse des différentes sources de méthane de la ferme de Grignon simulées grâce au modèle gaussien avec les conditions météorologiques de la traversée 7. Les courbes en traits continus correspondent aux concentrations modélisées pour les différentes sources avec un flux unitaire. La courbe en pointillés noirs correspond aux concentrations en méthane mesurées.

la simulation du méthane en normalisant l'erreur d'observation à partir des données d'observation : l'écart-type des observations sur l'ensemble des segments dans le premier cas et la valeur de l'observation elle-même dans le deuxième.

Plus précisément, on calcule dans le premier cas l'écart-type  $STD_{errCH_4}$  de l'erreur d'observation en méthane pour la traversée  $i$  à l'aide de la formule suivante :

$$STD_{errCH_4,i} = \frac{STD_{errC_2H_2,i}}{STD_{obsC_2H_2}} \times STD_{obsCH_4} \quad (3.1)$$

où  $STD_{obsC_2H_2}$  et  $STD_{obsCH_4}$  sont respectivement les écarts-types des concentrations en acétylène et en méthane mesurées pour les  $6 \times 10$  sections de toutes les traversées et  $STD_{errC_2H_2,i}$  est l'écart-type des différences d'aires entre les concentrations en traceur mesurées et modélisées pour les six segments de la traversée  $i$ . On obtient ainsi une erreur moyenne liée au modèle et aux mesures pour toutes les sections d'une traversée. La matrice des erreurs liées au modèle et aux mesures  $R$ , de dimension  $60 \times 60$ , est alors :

$$R_{moy} = diag(STD_{errCH_4,1}^2, \dots, STD_{errCH_4,10}^2) \quad (3.2)$$

Dans le deuxième cas, on calcule l'erreur d'observation  $STD_{errCH_4,i,j}$  en méthane propre à chaque segment  $i$  de chaque traversée  $j$  à l'aide de la différence entre l'aire des panaches d'acétylène mesurés et modélisés pour chacune des six parties de chaque traversée séparément :

$$STD_{errCH_4,i,j} = \frac{A_{obsC_2H_2,i,j} - A_{modC_2H_2,i,j}}{A_{obsC_2H_2,i,j}} \times A_{obsCH_4,i,j} \quad (3.3)$$

où  $A_{obsC_2H_2,i,j}$  et  $A_{modC_2H_2,i,j}$  sont respectivement les aires entre la valeur de fond en acétylène et les concentrations en acétylène mesurées et modélisées pour le segment  $i$  de la traversée  $j$ .  $A_{obsCH_4,i,j}$  est l'aire entre les concentrations en méthane mesurées et la valeur de fond en méthane pour le segment  $i$  de la traversée  $j$ .

On obtient donc  $6 \times 10$  erreurs différentes propres à chaque partie de chaque traversée qui nous permettent de déterminer la matrice  $R$  :



$$R_{indiv} = \text{diag}(STD_{errCH_4,1,1}^2, STD_{errCH_4,2,1}^2, \dots, STD_{errCH_4,5,10}^2, STD_{errCH_4,6,10}^2) \quad (3.4)$$

où  $\text{diag}(v)$  désigne la matrice diagonale dont les valeurs correspondent au vecteur  $v$ .

Au cœur du panache du traceur, la différence observée entre les concentrations mesurées et modélisées est en principe dominée par une erreur modèle modérée liée au calage du modèle. Aux extrémités de ce panache, au niveau des concentrations de fond, l'erreur d'observation est moins importante et est essentiellement due au bruit de l'instrument. Or le panache de méthane est plus large que celui de l'acétylène et nous avons donc une zone du panache de méthane, entre le maximum de concentrations et l'extrémité, où l'acétylène atteint ses concentrations de fond alors que les concentrations de méthane sont encore au dessus de leur valeur de fond. La première méthode présente donc l'avantage de transférer à ces sections intermédiaires du panache de méthane des estimations d'erreurs d'observation relativement modérées permettant à l'inversion statistique d'apporter du poids à l'information apportée par ces sections. A contrario, cette méthode présente l'inconvénient de transférer des estimations d'erreurs d'observation relativement grandes aux extrémités du panache de méthane, ce qui limite l'impact de ces extrémités dans l'inversion. La deuxième méthode permet de donner plus de poids aux extrémités du panache de méthane dans l'inversion, mais elle présente l'inconvénient de donner un très faible poids aux sections intermédiaires où le panache d'acétylène est faible mais où celui du méthane est encore important. L'utilisation de cette deuxième méthode est donc intéressante puisqu'elle permet de mieux prendre en compte l'information aux extrémités du panache de méthane, le risque étant que l'inversion statistique apporte trop de poids à cette information et reproduise moins bien les concentrations au cœur du panache. Ces deux approches sont donc complémentaires et, en l'absence d'une méthode unique, permettent de rendre compte de la robustesse de la méthode.

### 3.1.6.5 Estimation *a priori* des émissions $f^b$ et matrice de covariance de l'incertitude *a priori* B

Le vecteur  $f^b$  regroupe les estimations *a priori* des émissions de méthane des différentes sources du site. Dans notre étude, nous avons utilisé deux vecteurs  $f^b$  différents. Pour le premier, les émissions *a priori* de méthane des différentes sources sont fixées de façon identique à une valeur arbitraire de  $9 \text{ kg.j}^{-1}$ . Dans le deuxième cas, nous avons utilisé les facteurs d'émission donnés par le GIEC et le nombre d'animaux présents sur le site pour déterminer ces estimations *a priori*. Les estimations *a priori* des émissions des différentes sources pour les deux vecteurs  $f^b$  sont regroupés dans le tableau 3.5.

TABLE 3.5 – Estimations *a priori* des émissions de méthane des différentes sources de la ferme de Grignon permettant de déterminer les différents vecteurs  $f^b$ . Dans un cas, les émissions sont identiques pour chacune des sources et dans le second les estimations sont calculées grâce aux facteurs d'émissions donnés par le GIEC.

	Méthanisation	Et. vaches 1	Bergerie	Et. vaches 2	Et. chèvres	Fumière	Hangar
Estimations <i>a priori</i> identiques pour toutes les sources ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	$9 \pm 7$	$9 \pm 7$	$9 \pm 7$	$9 \pm 7$	$9 \pm 7$	$9 \pm 7$	$9 \pm 7$
Estimations <i>a priori</i> basées sur les facteurs d'émission ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	$22 \pm 17$	$64 \pm 51$	$12 \pm 10$	$22 \pm 17$	$2 \pm 2$	$13 \pm 10$	$8 \pm 6$

Dans cette étude, le niveau de confiance en nos estimations *a priori* étant relativement faible, l'incertitude sur ces émissions est donc fixée à 80 % des flux *a priori*. De plus, on suppose que les incertitudes sur les émissions des différentes sources ne sont pas corrélées, la matrice de covariance de l'incertitude *a priori* B est donc une matrice diagonale.

### 3.1.6.6 Configuration des inversions statistiques testées

Trois inversions statistiques ont été réalisées avec les différentes estimations *a priori* et matrice de covariance d'erreur d'observation présentées dans les sections précédentes. Dans un premier temps, l'influence des estimations des flux *a priori* est étudiée en comparant les résultats obtenus après inversion avec des flux *a priori* identiques pour toutes les sources de méthane étudiées et d'autres basés sur les facteurs

d'émissions du GIEC. Pour ces deux inversions statistiques, nous avons utilisé la matrice de covariance d'erreur d'observation moyenne  $R_{moy}$ .

Dans un second temps, nous allons étudier l'influence des deux matrices de covariance d'erreur d'observation  $R_{moy}$  et  $R_{indiv}$  décrites précédemment sur les résultats obtenus avec l'inversion statistique en utilisant les estimations des flux *a priori* basées sur les facteurs d'émission du GIEC.

Pour chacun de ces essais, nous allons regarder l'impact de ces différents facteurs sur les estimations des émissions totales de méthane, sur les profils de concentrations obtenus avec le modèle gaussien après inversion ainsi que les estimations des différentes sources de méthane du site. Le tableau 3.6 regroupe les acronymes utilisés pour désigner chacune de ces trois configurations d'inversion statistique dans la suite de cette étude.

TABLE 3.6 – Tableau regroupant les acronymes utilisés pour désigner les différentes inversions statistiques réalisées pour la ferme de Grignon.

Acronymes	Estimations <i>a priori</i> des émissions $f^b$	Matrice de covariance d'erreur d'observation R
<b>INV-homog</b>	Estimations <i>a priori</i> des émissions identiques pour toutes les sources	Erreur d'observation moyenne pour les différents segments d'une traversée $R_{moy}$
<b>INV-invent</b>	Estimations <i>a priori</i> des émissions basées sur les facteurs d'émission du GIEC	Erreur d'observation moyenne pour les différents segments d'une traversée $R_{moy}$
<b>INV-extrem</b>	Estimations <i>a priori</i> des émissions basées sur les facteurs d'émission du GIEC	Erreur d'observation spécifique à chaque segment de chaque traversée $R_{indiv}$

### 3.1.6.7 Résultats obtenus avec différents paramètres de l'inversion statistique

#### 3.1.6.7.1 Influence du flux *a priori* dans l'inversion statistique contrainte par la méthode traceur

Dans cette section, nous allons tester le poids que peut avoir l'information *a priori* sur l'inversion statistique en utilisant les deux vecteurs  $f^b$  présentés précédemment : l'un avec des flux identiques pour toutes les sources (INV-homog) et l'autre avec des flux basés sur les facteurs d'émissions donnés par le GIEC (INV-invent). Les résultats obtenus lors de l'inversion statistique avec chacun de ces deux vecteurs  $f^b$  sont présentés sur les figures 3.5a et 3.6a.

#### Estimation des émissions totales de méthane du site

Les émissions totales de la ferme de Grignon sont respectivement estimées à  $217 \pm 7 \text{ kg.j}^{-1}$  et  $228 \pm 7 \text{ kg.j}^{-1}$  avec INV-homog et INV-invent. Ces deux estimations sont relativement proches l'une de l'autre et se trouvent également dans l'enveloppe d'incertitudes de l'estimation obtenue avec la méthode traceur. Les estimations des flux *a priori* ne semblent donc pas avoir une forte influence sur les estimations des émissions totales obtenues après inversion pour ce site sachant que non seulement leur répartition entre les sources était différente mais aussi leur total qui était beaucoup plus faible dans le cas des sources avec des émissions identiques. De plus, on remarque dans les deux cas, l'estimation des émissions *a posteriori* totales du site est très différente de l'estimation *a priori* et va même jusqu'à sortir de la plage d'incertitudes sur les flux donnés *a priori* pour pouvoir retrouver les observations. Enfin, les faibles incertitudes associées aux estimations *a posteriori* des émissions totales pour les deux inversions nous donnent une indication supplémentaire de la robustesse des résultats obtenus même si ces estimations sont calculées à partir de la matrice de covariance d'erreur sur les flux *a posteriori* et dépendent directement de notre configuration des matrices de covariance B et R. Elles semblent toutefois être ici fortement influencées par la matrice R pour laquelle notre estimation repose sur une méthode objective de comparaison entre le modèle et les observations.

### Impacts sur les vecteurs d'observations et les profils de concentrations

Pour chaque inversion, deux traversées sont présentées en exemple : la traversée 10 du panache d'émission simulée avec une classe de stabilité C et la traversée 6 simulée avec une classe de stabilité D. Les graphiques situés au centre des figures 3.5 et 3.6 présentent les vecteurs d'observation, à savoir l'aire entre les concentrations de fond et les concentrations mesurées (blanc) ou modélisées avant (bleu) et après inversion (vert) de chaque section. Les profils de concentrations mesurés (noir) et modélisés avant (bleu) et après inversion (vert) sont présentés sur les graphiques inférieurs.

En regardant les vecteurs d'observation des deux traversées pour chacune des inversions, on s'aperçoit que les observations simulées en forçant le modèle gaussien avec les estimations *a posteriori* sont plus proches des observations de chaque segment que les observations simulées avec les estimations *a priori*, ce qui est attendu grâce à l'inversion. Les valeurs des aires obtenues après inversion pour chaque section ne correspondent pas parfaitement aux observations car l'inversion statistique prend en compte toutes les traversées et c'est en moyenne quadratique sur l'ensemble de ces traversées que les écarts sont minimisés. Il est difficile de comparer les deux inversions en regardant ces vecteurs d'observation, la première inversion semble donner des résultats plus proches des observations pour certaines sections des traversées et de moins bonnes pour d'autres (figure 3.5 et 3.6).

Les profils de concentrations obtenus grâce au modèle gaussien avec INV-homog sont beaucoup trop faibles pour les deux traversées données en exemple en comparaison de celles mesurées. Il en va de même pour INV-invent, même si l'écart est moindre étant donné que l'estimation des émissions totales de départ est plus importante que dans le cas avec de INV-homog. Il est toutefois à noter que la forme des panaches obtenus lors de la première inversion INV-homog est similaire à celle du panache mesuré contrairement au profil de concentrations obtenu lors de la deuxième inversion INV-invent. Les profils de concentrations simulés grâce au modèle gaussien avec les deux estimations *a posteriori* sont plus proches des observations (attendus par l'inversion) mais aussi très proches l'un de l'autre. Toutefois, INV-homog semble donner des profils de concentration légèrement plus proches dans leur forme des profils observés après inversion pour les deux profils donnés en exemple. Le tableau 3.7 relativise un peu cela et présente l'écart relatif entre les aires sous les profils de concentrations mesurés et modélisés pour chaque traversée et chaque inversion. En regardant cet indicateur pour l'ensemble, on remarque que dans l'ensemble INV-invent permet tout de même d'obtenir des profils dont l'aire est plus proche de celle mesurée que INV-homog. Tous critères confondus, il est difficile de dire laquelle des deux inversions donne de meilleurs résultats.

TABLE 3.7 – Écart relatif entre l'aire sous les profils de concentrations en méthane mesurés et les profils de concentrations simulés avec le modèle gaussien en utilisant les estimations *a posteriori* obtenues avec les différentes inversions statistiques pour chaque traversée étudiée. L'inversion statistique 1 correspond à l'inversion avec des flux *a priori* identiques, l'inversion 2 est celle avec des flux *a priori* basés sur les facteurs d'émission du GIEC et l'inversion 3 celle avec des erreurs liées au modèle et aux mesures spécifiques à chaque section de chaque traversée. Les valeurs sont exprimées en %.

Traversée	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
INV-homog	18	14	13	5	19	22	19	16	19	24
INV-invent	24	10	9	1	25	19	15	12	15	21
INV-extrem	1	26	25	19	2	34	30	28	31	35

### Séparabilité des émissions des différentes sources de méthane

Nous allons maintenant nous intéresser aux estimations *a posteriori* des émissions de méthane de chacune des sources du site présentées sur les figures 3.5a et 3.6a. On peut voir que lors de la première inversion statistique INV-homog, les émissions des différentes sources ont été augmentées de façon à peu près uniforme et se retrouvent comprises entre 20 et 42 kg.j<sup>-1</sup>. Cette augmentation à peu près identique du flux de chacune des sources suggère que le système n'a pas été capable de séparer les différentes sources du site. En regardant à présent les estimations des émissions *a posteriori* des différentes sources obtenues avec INV-invent, on s'aperçoit qu'elles sont très différentes de celles obtenues lors de la première inversion. Les deux inversions s'accordent tout de même sur le principal contributeur aux émissions totales qui est

l'étable à vaches 2 avec des émissions de 42 et 65 kg.j<sup>-1</sup>. Les estimations des émissions des différentes sources obtenues après inversion apparaissent donc très sensibles au choix des estimations des émissions *a priori*. Cela nous permet également de confirmer le problème de séparabilité des différentes sources du site suspecté avec la première inversion, mais également de se rendre compte que ce problème est largement sous-estimé par le système compte tenu des faibles incertitudes sur les estimations *a posteriori* des différentes sources obtenues pour la première inversion.

Ces problèmes de séparabilité peuvent être diagnostiqués grâce à l'analyse de la matrice de variance/covariance A qui nous permet de déterminer les corrélations sur les incertitudes *a posteriori* entre les différentes sources de méthane de la ferme de Grignon. Lorsque la variance de l'incertitude *a posteriori* sur des sources est restée grande par rapport à la variance *a priori*, des corrélations très négatives entre l'incertitude sur ces sources indiquent que ce manque de réduction d'incertitude a été lié à des difficultés du système à séparer ces sources. Les corrélations sur les incertitudes *a posteriori* entre les différentes sources de méthane de la ferme de Grignon obtenues pour chacune des deux inversions sont présentées dans les tableaux 3.8 et 3.9. Ici, la réduction d'incertitude par source reste importante mais le système diagnostique que l'incertitude résiduelle est liée à des problèmes de séparabilité des sources.

De façon cohérente avec ce qui avait été supposé en début de section, des corrélations *a posteriori* négatives apparaissent entre les incertitudes d'une part sur l'étable à vaches 1 et l'unité de méthanisation et d'autre part sur l'étable à vaches 2, la bergerie, la fumière et le hangar. On peut supposer que le système est trop optimiste par rapport à sa capacité à réduire les incertitudes des différentes sources individuellement et que ces corrélations prises en faisant abstraction des incertitudes *a posteriori* sont un indicateur valable des problèmes de séparation des sources. Les plus fortes corrélations sont trouvées entre l'étable à vaches 1 et l'unité de méthanisation pour les deux configurations (de -0,60 et -0,93 respectivement), puis entre la fumière et le hangar (de -0,57 et -0,56).

Une partie des émissions associées à l'étable à vaches 2 est donc susceptible d'être reportée sur la bergerie, la fumière et le hangar. Il en va de même entre l'étable à vaches 1 et l'unité de méthanisation, du fait de la superposition de leur fonction de réponse.

TABLE 3.8 – Corrélations sur les incertitudes *a posteriori* entre les différentes sources de méthane de la ferme de Grignon avec INV-homog.

	Methanisation	Et. vaches 1	Bergerie	Et. vaches 2	Et. chevres	Fumiere	Hangar
Methanisation	1,00	-0,60	-0,05	0,04	0,01	-0,04	-0,16
Et. vaches 1	-0,60	1,00	-0,03	0,01	0,00	-0,00	-0,05
Bergerie	-0,05	-0,03	1,00	-0,27	-0,05	-0,24	-0,26
Et. vaches 2	0,04	0,01	-0,27	1,00	-0,25	-0,22	0,08
Et. chevres	0,01	0,00	-0,05	-0,25	1,00	-0,00	0,06
Fumiere	-0,04	-0,00	-0,24	-0,22	-0,00	1,00	-0,57
Hangar	-0,16	-0,05	-0,26	0,08	0,06	-0,57	1,00

TABLE 3.9 – Corrélations sur les incertitudes *a posteriori* entre les différentes sources de méthane de la ferme de Grignon avec INV-invent.

	Methanisation	Et. vaches 1	Bergerie	Et. vaches 2	Et. chevres	Fumiere	Hangar
Methanisation	1,00	-0,93	-0,08	0,10	0,00	-0,09	-0,14
Et. vaches 1	-0,93	1,00	0,03	-0,05	-0,00	0,06	0,07
Bergerie	-0,08	0,03	1,00	-0,41	-0,00	-0,33	-0,22
Et. vaches 2	0,10	-0,05	-0,41	1,00	-0,11	-0,27	0,20
Et. chevres	0,00	-0,00	-0,00	-0,11	1,00	0,02	0,01
Fumiere	-0,09	0,06	-0,33	-0,27	0,02	1,00	-0,56
Hangar	-0,14	0,07	-0,22	0,20	0,01	-0,56	1,00

Les estimations des flux des différentes sources de méthane de la ferme de Grignon obtenues après inversion avec INV-homog ne mettent pas en évidence que certaines sources émettent plus de méthane que d'autres. On obtient après inversion des émissions de méthane à peu près similaires pour les vaches, les moutons et les chèvres car le système n'a pas réussi à séparer ces différentes sources. Cette dépendance

de l'inversion statistique aux estimations *a priori* montre le besoin de réaliser des mesures sous plusieurs directions de vent différentes afin de parvenir à une plus grande séparabilité des sources, mais aussi la nécessité d'avoir des estimations *a priori* les meilleures possibles dans le cas où le nombre d'observations est insuffisant pour contraindre toutes les inconnues. Il est intéressant de noter que les émissions de méthane les plus importantes proviennent de l'étable à vaches 2 dans les deux configurations alors qu'elle contient moins de vaches que l'étable 1. On peut légitimement se demander si à l'instant où les mesures ont été réalisées, les vaches placées dans l'étable 2 n'émettaient pas réellement plus de méthane que celles de l'étable 1, les facteurs d'émissions étant des résultats moyens alors qu'en réalité ces émissions sont susceptibles de varier dans le temps. Ces émissions plus importantes de l'étable à vaches 2 pourraient également être causées par une alimentation différente des vaches ou bien par une différence de race dont nous n'avons pas connaissance. Mais ces résultats peuvent être plus vraisemblablement discutés du fait de la difficulté du système à séparer les différentes sources, les émissions attribuées à l'étable à vaches 2 pouvant en réalité provenir du hangar, de la fumière ou de l'étable à chèvres et une partie des émissions de l'unité de méthanisation pouvant être reportée à l'étable à vaches 1.

Enfin en regardant les émissions de méthane attribuées à l'étable à chèvres d'un peu plus près, on s'aperçoit que les estimations *a priori* très faibles basées sur les facteurs d'émission du GIEC limitent l'inversion statistique qui n'est alors plus capable de reproduire les concentrations mesurées au niveau de la section 5 des profils de méthane. La figure 3.7 montre l'implication des différentes sources de méthane de la ferme de Grignon sur les vecteurs d'observation des différentes sections de la traversée 6 avec (a) INV-homog et (b) INV-invent. Pour chaque section, la première barre (bleu) représente les vecteurs d'observation modélisés avec les flux *a priori*, la deuxième colonne (blanc) présente les données basées sur les mesures, la troisième barre (vert) la signature de la somme des flux *a posteriori* sur le vecteur d'observation et la quatrième colonne montre la signatures des flux *a posteriori* des différentes sources de méthane de la ferme de Grignon sur le vecteur d'observation, chaque couleur correspondant à une source. Sur cet exemple, on observe que seule l'étable à chèvres impacte les concentrations modélisées au niveau de la section 5 et que lors de l'inversion avec les flux *a priori* basés sur les facteurs d'émission du GIEC le système ne reproduit pas cette section du panache. Les émissions de l'étable à chèvres sont donc sûrement sous-estimées dans la deuxième inversion à cause de l'estimation *a priori* trop faible donnée mais également du fait de l'erreur d'observation moyenne utilisée pour ces inversions qui attribue moins de poids aux observations situées aux extrémités du panache et donc au signal associé au panache provenant de l'étable à chèvres.

### 3.1.6.7.2 Impact de l'erreur liée au modèle et aux mesures R sur l'inversion statistique

Dans cette section, nous allons comparer les estimations obtenues avec l'inversion statistique en utilisant les deux méthodes de calcul de l'erreur d'observation présentée précédemment (section 3.1.6.4) : une erreur d'observation moyenne  $R_{moy}$  pour toutes les sections d'une traversée donnée ou une erreur spécifique à chaque section de chaque traversée  $R_{indiv}$ . Contrairement à l'erreur d'observation moyenne, l'erreur spécifique permet de donner plus de poids aux observations situées aux extrémités du panache de méthane et ainsi de mieux estimer les émissions des sources associées à ces observations comme l'étable à chèvres vu juste avant. L'utilisation de cette erreur d'observation présente tout de même le risque de moins bien estimer les émissions des autres sources dont les signaux sont au centre du panache puisque l'on va placer une très grande incertitude sur ces données. Les résultats obtenus avec une erreur moyenne ont été présenté précédemment sur la figure 3.6 tandis que la figure 3.8a présente les résultats obtenus avec une erreur spécifique à chaque section.

### Estimation des émissions totales de méthane du site

L'estimation des émissions totales de méthane du site avec INV-extrem est inférieure à celle trouvée avec INV-invent puisqu'elle est de  $185 \pm 5 \text{ kg.j}^{-1}$  contre  $228 \pm 7 \text{ kg.j}^{-1}$  précédemment. L'erreur liée au modèle et aux mesures influence donc grandement l'estimation des émissions totales obtenues après inversion. Contrairement à INV-invent, l'estimation *a posteriori* des émissions totales du site avec INV-extrem reste dans la barre d'incertitude des estimations données *a priori* alors que ces deux inversions avaient les mêmes incertitudes totales *a priori*. L'incertitude sur l'estimation des émissions totales obtenues après inversion est quant à elle plus faible pour cette inversion que pour les deux premières inversions.

### Impacts sur les vecteurs d'observations et les profils de concentrations

Comme pour les inversions précédentes, les exemples des traversées 6 et 10 sont donnés sur la figure 3.8. En regardant les vecteurs d'observation de ces deux exemples, on s'aperçoit que l'inversion permet d'obtenir des aires sous les différentes section du panache d'émission modélisé plus proches de celles mesurées avec l'erreur spécifique pour la traversée 6 mais pas pour la traversée 10. En regardant le tableau 3.7 présentant l'écart relatif entre l'aire totale du panache de méthane modélisés avec les estimations *a posteriori* des émissions de méthane et l'aire totale du panache de méthane mesuré pour chaque traversée, on s'aperçoit que INV-extrem donne de très bons résultats pour deux des huit traversées étudiées, notamment la traversée 6, mais que pour les six traversées restantes les résultats obtenus sont beaucoup moins bons que pour INV-invent.

De même, lorsque l'on regarde les profils de concentrations en méthane modélisés en utilisant les flux *a posteriori* obtenus avec INV-extrem, le profil de la traversée 6 est très proche de celui mesuré alors que le profil modélisé pour la traversée 10 est moins ressemblant que pour INV-invent. On note toutefois que INV-extrem prend mieux en compte la forme des extrémités des panaches comme nous pouvions nous y attendre. Ce phénomène est notamment illustré au niveau de la section 5 des différentes traversées, les estimations *a posteriori* des émissions des sources de méthane avec une erreur liée au modèle et aux mesures spécifique à chaque section permettent de modéliser des concentrations plus proches des concentrations mesurées que les estimations obtenues avec les deux premières inversions statistiques.

### Séparabilité des émissions des différentes sources de méthane

Le problème de séparabilité des différentes sources de la ferme de Grignon reste le même que lors des inversions précédentes puisque l'on retrouve des corrélations sur les incertitudes *a posteriori* entre les différentes sources de méthane plus ou moins similaires lors de cette inversion. Ces corrélations sont présentées dans le tableau 3.10. En regardant les flux des différentes sources de méthane du site estimés *a posteriori* séparément, on s'aperçoit que les émissions de la bergerie, de l'étable à chèvres, de la fumière et du hangar ont augmenté alors que les émissions des étables à vaches 1 et 2 n'ont pas été modifiées et que les émissions associées à l'unité de méthanisation ont été réduites. On retrouve de très fortes incertitudes sur les estimations *a posteriori* des émissions de l'étable à vaches 1 et l'unité de méthanisation qui sont fortement corrélées l'une à l'autre.

TABLE 3.10 – Corrélations sur les incertitudes *a posteriori* entre les différentes sources de méthane de la ferme de Grignon après INV-extrem.

	Methanisation	Et. vaches 1	Bergerie	Et. vaches 2	Et. chevres	Fumiere	Hangar
Methanisation	1,00	-0,93	-0,10	0,12	-0,01	-0,09	-0,17
Et. vaches 1	-0,93	1,00	0,02	-0,04	0,00	0,06	0,06
Bergerie	-0,10	0,02	1,00	-0,74	0,00	-0,36	-0,26
Et. vaches 2	0,12	-0,04	-0,74	1,00	-0,28	0,03	0,33
Et. chevres	-0,01	0,00	0,00	-0,28	1,00	0,04	-0,01
Fumiere	-0,09	0,06	-0,36	0,03	0,04	1,00	-0,60
Hangar	-0,17	0,06	-0,26	0,33	-0,01	-0,60	1,00

Les émissions des différentes sources sont toutefois plus plausibles puisque l'étable de vaches 1, contenant le plus grand nombre de vaches, émet plus de méthane que les autres étables, une partie de ses émissions peut toutefois être attribuée à l'unité de méthanisation dont les émissions sont un peu faibles. Cette dernière inversion statistique INV-extrem reproduit mieux les concentrations observées aux extrémités du panache, ce qui permet de donner une meilleure estimation *a posteriori* des émissions de l'étable à chèvres dont l'incertitude *a posteriori* est fortement réduite. Cela pourrait également expliquer le fait que l'on ait des résultats plus cohérents pour l'étable à vache 1 et l'unité de méthanisation dont les émissions sont contraintes dans la section 2. Cependant l'utilisation de INV-extrem semble favoriser la contrainte du système principalement par les traversées ayant de très faibles erreurs sur certaines de leurs sections. L'utilisation d'une erreur moyenne permet quant à elle d'obtenir des résultats plus homogènes pour les différentes traversées.

## Conclusions sur la campagne de mesures réalisée à la ferme de Grignon

Les différentes inversions statistiques réalisées pour la ferme de Grignon ont donné des estimations des émissions totales du site finalement assez proches les unes des autres comprises entre 185 et 228 kg.j<sup>-1</sup> (écart de 20 %). La cohérence des résultats obtenus avec les différentes inversions ainsi que les fortes réductions d'incertitudes *a posteriori*, permettent d'être confiant quant à la robustesse de ces estimations. Il est à noter que ces estimations des émissions totales de méthane du site sont également situées dans l'enveloppe d'incertitude des estimations calculées avec la méthode traceur, compte tenu de la grande incertitude résiduelle de cette approche pour des sources multiples. Pour autant, la forte réduction d'incertitude obtenue semble un peu optimiste puisque les estimations *a posteriori* ne sont pas toutes cohérentes entre elles à deux sigma. Des causes d'erreur peuvent manquer et l'impact de biais peut être sous-estimé.

Nous avons montré que le choix des estimations *a priori* des flux utilisés lors de l'inversion n'avait pas de forte influence sur l'estimation *a posteriori* des émissions totales. La comparaison des résultats obtenus après inversion en utilisant différentes estimations *a priori* des flux nous a toutefois permis de mettre en évidence une forte dépendance des estimations individuelles de chaque source à ce paramètre qui, pour être corrigée, nécessiterait d'autres mesures avec des directions de vent différentes afin de mieux séparer les sources. Ce problème de séparabilité des différentes sources de méthane du site a également pu être discuté grâce aux corrélations sur les incertitudes *a posteriori* entre les différentes sources.

Nous avons également étudié l'influence de l'erreur d'observation sur l'inversion statistique en utilisant deux méthodes de calcul différentes de cette erreur, d'une part en considérant une erreur moyenne aux différentes sections d'une traversée et d'autre part en utilisant une erreur spécifique à chaque section. L'inversion statistique utilisant l'erreur spécifique est fortement contrainte par deux des huit traversées et donne alors des profils de concentrations en méthane très proches de ceux mesurés. Cependant les profils de concentrations obtenus pour les six autres traversées sont bien moins bons que ceux obtenus pour une inversion avec une erreur liée au modèle et aux erreurs moyennes. L'inversion statistique utilisant l'erreur spécifique permet de mieux représenter les concentrations des sections situées aux extrémités des panaches, là où l'erreur est généralement plus faible, mais l'inversion avec une erreur moyenne va donner de meilleurs résultats au niveau des maxima de concentrations.

L'estimation des différentes sources de méthane de la ferme de Grignon a été rendu difficile du fait de leur disposition, de leur proximité et des conditions de vent durant la campagne de mesures. En effet la superposition de leur panache d'émission a posé des difficultés à notre système d'inversion statistique, difficultés qui ont pu être diagnostiquées grâce au calcul des corrélations sur les incertitudes entre les différentes sources. Les émissions de méthane de l'étable à chèvres ont pu être estimées à  $20 \pm 5$  kg.j<sup>-1</sup> et  $16 \pm 1$  kg.j<sup>-1</sup> avec les inversions 1 et 3 respectivement. L'estimation des émissions de cette source basée sur les facteurs d'émission du GIEC est nettement plus faible que la nôtre. Cette différence vient très probablement du stockage des déchets liés à l'élevage des chèvres pour lequel nous n'avons aucune information et que nous n'avons donc pas pris en compte. L'estimation des émissions de méthane des autres sources du site est plus discutable du fait de la difficulté du système à les séparer les unes des autres, notamment l'unité de méthanisation et l'étable à vaches 1. Les émissions liées à la fumière et au hangar ont toutefois été augmentées lors de chacune des inversions et sont respectivement comprises entre 33 et 36 kg.j<sup>-1</sup> et 16 et 29 kg.j<sup>-1</sup>.

S'il nous était possible de retourner faire des mesures à la ferme de Grignon, nous recommanderions de choisir un jour où les conditions de vent sont différentes afin de compléter notre étude et d'essayer de mieux séparer les différentes sources du site. Un vent venant du nord-est pourrait nous permettre de mieux séparer les émissions de l'unité de méthanisation et de l'étable à vaches 1 ainsi que celles provenant du hangar et de la fumière. Pour ces nouvelles conditions météorologiques, la source de traceur devrait être déplacée et positionnée plus près de l'unité de méthanisation et du hangar. Des mesures couvrant, dans la mesure du possible, l'ensemble de la rose des vents maximiseraient les possibilités de séparer les différentes sources de méthane présentes sur la ferme de Grignon.

## 3.2 Installation de distribution de gaz naturel située dans le nord de l'Europe

### 3.2.1 Description du site

Dans le cadre du projet FuME financé par la KIC-Climat ayant pour but de détecter et de quantifier les émissions fugitives de méthane provenant de sites industriels, une campagne de mesures a été effectuée au niveau d'un site de distribution de gaz dans le nord de l'Europe au début du mois de juillet 2014. Ce type d'installation, permettant de repressuriser le gaz naturel au sein des canalisations pour lui permettre de circuler correctement à travers le réseau, est connu pour ses émissions de méthane provoquées par des fuites au niveau de son réseau de canalisations (Albertson et al., 2016). L'intensité des émissions de méthane associées à ce type d'installation est très variable d'un site à l'autre et dépend de l'état du réseau et de son entretien.

Plusieurs types de mesures ont été réalisées en parallèle durant cette campagne : des mesures continues des isotopes du méthane, des mesures des composés organiques volatils (COV), des mesures mobiles des concentrations en méthane sur les routes entourant le site accompagnées d'émission de traceur pour l'application de la méthode traceur ainsi que des mesures des concentrations de méthane à l'aide d'un lidar à absorption différentielle (DIAL) réalisée par le laboratoire anglais NPL (National Physical Laboratory). Tandis que les mesures des isotopes et des COV permettent de caractériser les panaches de méthane mesurés et de déterminer leur origine, les mesures effectuées avec le DIAL et la méthode traceur permettent de quantifier les émissions de méthane du site et de pouvoir comparer les résultats obtenus avec deux méthodes différentes. Nous compléterons dans ce chapitre ces différentes mesures par l'utilisation de la méthode d'inversion statistique détaillée au chapitre 2 et déjà utilisée pour la ferme de Grignon.

Le principe de la technologie lidar repose sur l'émission d'une impulsion de lumière à l'aide d'un laser qui, en se propageant, interagit avec les particules présentes dans l'atmosphère qui entraînent la rétro-diffusion de certains photons vers un détecteur. Les mesures DIAL mettent en œuvre ce procédé avec des impulsions de lumière de deux longueurs d'ondes différentes, l'une fortement absorbée par l'espèce étudiée contrairement à l'autre. La différence entre les signaux mesurés pour chacune de ces longueurs d'onde est proportionnelle à la densité de particules rencontrées et permet de déterminer la distribution des concentrations du gaz étudié le long du trajet du faisceau lumineux (Babilotte et al., 2010). Le laser peut être dirigé dans n'importe quelle direction de l'espace et permet ainsi l'analyse des concentrations du composé étudié en 2D sur un plan vertical dans le panache d'émission provenant d'un site. Ce profil de concentrations combiné à la vitesse du vent permet de déterminer le flux traversant le plan vertical étudié en utilisant la formule :

$$f = \sum_{x_1, z_1}^{x_i, z_j} c_{x_i, z_j} \cdot \bar{v}_{x_i, z_j} \quad (3.5)$$

où  $c_{x_i, z_j}$  représente les concentrations dans le plan vertical et  $\bar{v}_{x_i, z_j}$  est le vecteur de vent horizontal calculé en chacun des points du plan vertical à partir des données météorologiques récoltées durant les mesures.

Cette technique permet de mesurer les concentrations de méthane à une distance pouvant aller jusqu'à 800 mètres de la position du système. Cette méthode a typiquement un niveau de sensibilité de 50 ppb pour le méthane lorsque les concentrations sont mesurées à une distance de 200 mètres pour un panache de 50 mètres de large (Robinson et al., 2011). Bien que le DIAL du NPL soit installé dans un camion afin de le rendre mobile, il reste encombrant et n'est pas aussi aisément déplaçable que l'analyseur CRDS installé dans une voiture.

D'une superficie d'environ 0,5 km<sup>2</sup>, l'installation est située dans une zone industrielle relativement plate présentée sur la figure 3.9. Cinq zones émettrices de méthane ont été identifiées parmi lesquelles on distingue notamment les deux compresseurs au sud du site, un réseau de canalisations en surface susceptible de présenter des fuites situé à l'ouest que nous appellerons "source A" pour la suite de cette étude, un autre réseau aérien situé plus au nord que nous appellerons "source B", une installation au nord-est que nous nommerons "source C" et enfin une soupape permettant un dégazage.

Avant notre campagne, d'autres mesures de méthane avaient déjà été effectuées sur le site en 2010 permettant d'estimer les émissions totales à 30 kg.j<sup>-1</sup>. Les mesures réalisées par le NPL durant cette campagne avec le DIAL ont quant à elles permis de donner une estimation des émissions totales du site de  $2\,030 \pm 115$  kg.j<sup>-1</sup> réparties sur l'ensemble de l'installation avec de fortes émissions provenant de la source A et de la soupape de dégazage estimées à  $701 \pm 89$  et  $504 \pm 55$  kg.j<sup>-1</sup> respectivement en



analysant des plans verticaux de concentrations traversant les panaches d'émission de chacune de ces sources séparément. Ces estimations des émissions de méthane réalisées par le NPL pour les différentes sources présentes sur le site sont regroupées dans le tableau 3.11.

TABLE 3.11 – Estimations des émissions de méthane des principales sources de l'installation de distribution de gaz et des émissions totales réalisées par le NPL à l'aide d'un DIAL.

Sources	Source A	Source B	Source C	Soupape	Compresseurs	Émissions totales de la zone
Estimation des émissions de méthane moyenne ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	$701 \pm 89$	$206 \pm 31$	$226 \pm 29$	$504 \pm 55$	$274 \pm 36$	$2\,030 \pm 115$

Les estimations des émissions totales de méthane de l'installation de distribution de gaz obtenues lors des deux campagnes sont très différentes puisque les émissions estimées par le NPL sont près de soixante fois plus importantes que celles de la campagne de 2010. La méthode de quantification utilisée durant la campagne de 2010 n'est pas connue et il est donc difficile de discuter de la fiabilité de ces résultats. Il ne faut pas non plus oublier qu'il est difficile d'obtenir une estimation des incertitudes sur les mesures de concentrations avec un LIDAR, en particulier sur les corrélations d'erreur d'un point de mesure à l'autre sur une section verticale, et donc sur l'estimation des flux avec cette méthode.

Cette différence peut toutefois s'expliquer par l'apparition de nouvelles fuites au niveau du système mais également aux erreurs de mesures ou de configuration de l'expérience lors de chacune des deux campagnes. Nos mesures, réalisées en même temps que celles du NPL, vont permettre de discuter ces estimations.

### 3.2.2 Mesures atmosphériques

La campagne de mesures réalisées au sein de l'installation de distribution de gaz s'est déroulée pendant la première semaine de juillet 2014. Nous avons déployé la méthode traceur pendant les deux jours de cette semaine où les conditions météorologiques le permettaient avec un vent relativement stable venant du sud-ouest nous permettant ainsi de mesurer les concentrations en méthane et en traceur sur la route située à l'est du site signalée en jaune sur la figure 3.10. Nous avons réalisé trois séries de mesures en augmentant progressivement les débits d'acétylène afin d'avoir un meilleur signal du traceur. Les débits d'acétylène utilisés ainsi que les conditions météorologiques lors de chacune de ces séries sont regroupées dans le tableau 3.12.

TABLE 3.12 – Flux d'acétylène émis lors des différentes séries de mesures réalisées au sein du site de distribution de gaz selon les séries de mesures et conditions météorologiques durant ces traversées.

	Émission 1	Émission 2	Émission 3
<b>Date</b>	02.07.14	02.07.14	03.07.14
<b>Flux d'acétylène émis (<math>\text{kg.j}^{-1}</math>)</b>	2,1	9,6	14,2
<b>Direction de vent (<math>^{\circ}</math>)</b>	230-238	232-239	225-237
<b>Vitesse de vent (<math>\text{m.s}^{-1}</math>)</b>	2-3	2-3	2,5-4

Les différentes séries de mesures réalisées au cours de ces deux jours sont présentées sur les figures 3.10. La première d'entre elles a été réalisée avec un flux d'acétylène relativement faible de  $2,1 \text{ kg.j}^{-1}$ . Les panaches d'émission ont été traversés 6 fois avec une nette augmentation des concentrations en méthane de l'ordre de 250 ppb alors que l'augmentation des concentrations en acétylène à chaque traversée, de l'ordre de 0,5 ppb, est plus difficilement distinguable du bruit de l'instrument. Pour les deux séries de mesures suivantes, le flux d'acétylène émis a été augmenté afin de faciliter l'observation des signaux d'acétylène : l'amplitude maximum des concentrations obtenue est de l'ordre de 1 ppb et de 2-4 ppb pour les séries 2 et 3 respectivement.

### 3.2.3 Estimation des émissions de méthane avec la méthode traceur

Les traversées utilisées pour l'estimation des émissions de méthane sont surlignées en bleu sur la figure 3.10 et les estimations obtenues pour chacune des séries de mesures sont regroupées dans le tableau 3.13. Les estimations des émissions de méthane obtenues avec les différents débits d'acétylène sont très proches les unes des autres puisqu'elles sont de  $529 \pm 81$ ,  $520 \pm 79$  et  $532 \pm 84$   $\text{kg.j}^{-1}$  pour les émissions 1, 2 et 3 respectivement. La proximité des estimations obtenues lors des différentes séries nous permet d'être confiant quant aux résultats obtenus et de montrer que le flux d'acétylène utilisé n'a pas d'influence sur les estimations obtenues avec la méthode traceur. Il est toutefois préférable de travailler avec des flux d'acétylène suffisamment élevés par précaution, même si le bruit obtenu avec de faibles débits ne semble pas avoir beaucoup d'impact sur le calcul de la méthode traceur.

TABLE 3.13 – Estimations des émissions en méthane du site de distribution de gaz calculées grâce à la méthode traceur pour chaque traversée et en moyenne. Les incertitudes données sont présentées de la façon suivante : incertitude totale (erreur type sur l'estimation de la moyenne d'un échantillon de dimension finie calculée en divisant l'écart-type des différentes estimations par la racine carrée du nombre de traversées; biais associé à une mauvaise colocalisation du traceur).

Numéro du pic	1	2	3	4	5	6	7
<b>Émission d'acétylène 1 (2 <math>\text{kg.j}^{-1}</math>)</b>							
Estimation des émissions de méthane pour chaque traversée ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	438	594	470	642	503		
Estimation des émissions de méthane moyenne $\pm$ les incertitudes totales ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	$529 \pm 81$ (34 ; 74)						
<b>Émission d'acétylène 2 (10 <math>\text{kg.j}^{-1}</math>)</b>							
Estimation des émissions de méthane pour chaque traversée ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	472	529	434	520	-	642	
Estimation des émissions de méthane moyenne $\pm$ les incertitudes totales ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	$520 \pm 79$ (31 ; 73)						
<b>Émission d'acétylène 3 (14 <math>\text{kg.j}^{-1}</math>)</b>							
Estimation des émissions de méthane pour chaque traversée ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	604	427	598	635	420	386	652
Estimation des émissions de méthane moyenne $\pm$ les incertitudes totales ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	$532 \pm 84$ (40 ; 74)						

Les résultats obtenus au cours des différentes campagnes avec les diverses méthodes ont donc des ordres de grandeurs très différents. On s'aperçoit que les estimations obtenues avec la méthode traceur sont comprises entre celles du NPL et celles déterminées lors de la campagne de 2010. Les estimations du NPL obtenues au cours de la même campagne de mesures sont trois fois supérieures à celles que nous obtenons grâce à la méthode traceur. Nous allons maintenant utiliser l'inversion statistique contrainte par la méthode traceur pour estimer les émissions totales de méthane du site et vérifier si elles se rapprochent de celles que nous avons déterminées avec la méthode traceur classique ou bien de celles trouvées par le NPL avec leur DIAL.

### 3.2.4 Optimisation du modèle gaussien à l'aide des concentrations en traceur mesurées

L'inversion statistique pour l'installation de distribution de gaz est uniquement appliquée au jour de mesures 3 pour lequel nous avons un plus grand nombre de traversées de panache. Durant ces mesures, l'ensoleillement était faible et la vitesse de vent était comprise entre 2 et 4  $\text{m.s}^{-1}$  nous laissant ainsi le choix entre les classes de stabilité B et C du modèle gaussien. Cette sélection est réalisée grâce aux

concentrations en acétylène mesurées tout comme nous l'avons vu auparavant et les classes de stabilité utilisées pour les différentes traversées sont renseignées dans le tableau 3.14. On remarque en regardant les écarts entre les aires sous les concentrations en traceur mesurées et modélisées que pour ce site, que nous avons plus de mal à reproduire les panaches d'acétylène avec le modèle gaussien que pour la ferme de Grignon et que les écarts relatifs sont nettement plus importants pour la plupart des traversées. De ce fait, pour ce site, nous allons tout de même utiliser les traversées dont l'écart relatif est supérieur à 45%, l'erreur d'observation permettra de donner plus ou moins de poids aux traversées dans l'inversion statistique selon que le modèle reproduit plus ou moins bien le profil de concentration du traceur.

TABLE 3.14 – Classes de stabilité sélectionnées pour chaque traversée du panache d'émission réalisée lors de la campagne de mesures au sein de l'installation de distribution de gaz et les écarts relatifs entre les aires sous les signaux mesurés et modélisés avec le modèle gaussien pour les classes de stabilité B et C.

Traversée	1	2	3	4	5	6	7	8
Écart relatif modèle observation avec la classe de stabilité B (%)	46	168	274	24	8	21	126	50
Écart relatif modèle observation avec la classe de stabilité C (%)	140	330	507	23	74	99	269	150
Classe de stabilité sélectionnée	C	B	B	C	B	B	B	B

### 3.2.5 Estimation du biais causé par la non-colocalisation du traceur avec des OSSEs

L'erreur associée à la non-colocalisation du traceur est estimée à l'aide du modèle gaussien en utilisant les données de la série de mesures 3 et nous faisons l'hypothèse que l'erreur trouvée est la même pour les séries 1 et 2. Pour cela les concentrations en traceur et en méthane sont modélisées en forçant le modèle gaussien avec les conditions de vent spécifiques à chaque traversée mesurées durant la campagne ainsi que les classes de stabilité sélectionnées précédemment. Le flux d'acétylène utilisé en entrée du modèle est le même que celui utilisé durant les mesures et les flux de méthane utilisés sont ceux estimés par le NPL. Les aires sous les profils de concentrations au travers des panaches d'émissions du traceur et du méthane sont utilisés pour calculer le flux de méthane avec la formule de la méthode traceur et le résultat obtenu est comparé au flux de méthane utilisé en entrée du modèle. Le biais moyen lié à la mauvaise colocalisation du traceur déterminé par cette méthode est de 14 % des estimations des émissions et ne permet donc pas d'expliquer la grande différence entre les estimations obtenues avec la méthode traceur et celles obtenues avec le DIAL.

### 3.2.6 Estimation des émissions de méthane avec l'inversion statistique paramétrée avec les données du gaz traceur

Tout comme pour le cas précédent de la ferme de Grignon, nous allons détailler dans cette section l'adaptation des différents vecteurs et matrices utilisés dans l'inversion statistique à la configuration des sources de méthane rencontrées au sein de ce site. Nous avons réalisé l'inversion statistique avec les données de la troisième série de mesures car il s'agit de la série présentant le plus de traversées.

#### 3.2.6.1 Le vecteur de contrôle $f$

Nous avons regroupé les différentes sources de méthane de l'installation de distribution de gaz en cinq groupes présentées sur la figure 3.9 : les réseaux aériens situés à l'ouest et au nord du site appelés respectivement source A et B, les deux compresseurs situés au sud du site sont regroupés en une seule et unique source, l'installation appelé source C ainsi que la soupape de dégazage. Les réseaux aériens formant les sources A et B sont constitués de canalisations présentant des fuites en plusieurs endroits. Elles sont toutefois regroupées en une seule source étant donné leur proximité géographique. Les émissions de ces cinq groupes de sources de méthane sont supposées constantes à l'échelle des temps de mesures

et sont réparties uniformément sur l'ensemble de la zone considérée. Elles vont constituer le vecteur de contrôle  $f$  de notre inversion statistique qui aura donc une dimension de 5.

### 3.2.6.2 Le vecteur d'observation $p$

Tout comme pour le cas de la ferme de Grignon, le panache de concentrations provenant de l'installation de gaz est divisé en six segments de même longueur. Pour chacun de ces six segments, l'aire entre les concentrations en méthane et leur concentration de fond est calculée et placée dans le vecteur d'observation. Nous avons donc un vecteur d'observation  $p$  de dimension 48.

### 3.2.6.3 La matrice de transport $H$

Les fonctions de réponse des différentes sources de méthane de l'installation de distribution de gaz permettant de compléter la matrice de transport  $H$  sont présentées sur la figure 3.11. Ces fonctions de réponse sont simulées à l'aide du modèle gaussien en utilisant les conditions météorologiques spécifiques à chaque traversée mesurées durant la campagne, la classe de stabilité déterminée grâce aux concentrations en traceur et un flux unitaire. La matrice de transport  $H$  est donc de dimension  $48 \times 5$ .

Nous pouvons voir sur ce graphique que les fonctions de réponse des différentes sources du site se chevauchent fortement les unes par rapport aux autres et que celles des sources A et B sont même superposées. L'inversion statistique va donc avoir beaucoup de mal à différencier ces sources et à estimer correctement les flux d'émission de chacune d'entre elles. Seules les émissions associées aux compresseurs devraient être plus facilement séparables des autres puisque la fonction de réponse de cette source est un peu décalée par rapport aux autres (voir la figure 3.11).

### 3.2.6.4 La matrice de covariance d'erreur d'observation $R$

En comparant la forme étroite des profils de concentrations en méthane mesurés et à celle plus étalée des panaches modélisés pour les différentes sources du site, on comprend que le système va avoir du mal à représenter correctement la forme des panaches mesurés. Pour éviter de donner trop de poids à des structures mal représentées par le modèle gaussien et face à la difficulté évidente de séparation des sources, on fait le choix de relâcher la contrainte exercée sur le système segment par segment afin d'éviter le risque de projeter des erreurs modèles "locales" dans les estimations des sources. Les deux méthodes de calcul de l'erreur d'observation utilisées pour la ferme de Grignon ne nous conviennent pas et nous choisissons d'utiliser la plus grande des erreurs d'observation moyenne de toutes les traversées  $R_{max}$  pour l'ensemble de l'inversion statistique.

### 3.2.6.5 Estimation *a priori* des émissions $f^b$ et matrice de covariance de l'incertitude *a priori* $B$

Nous avons utilisé deux estimations *a priori* des émissions des différentes de méthane de l'installation de distribution de gaz : l'une basée sur les résultats obtenus par le NPL avec le DIAL et l'autre en utilisant des flux identiques pour les différentes sources. Compte-tenu des concentrations en méthane mesurées au travers du panache d'émission, nous avons fixé ce flux  $86 \text{ kg.j}^{-1}$ .

TABLE 3.15 – Estimations *a priori* des émissions de méthane des différentes sources de l'installation de distribution de gaz permettant de déterminer les différents vecteurs  $f^b$ . Dans un cas, les émissions sont identiques pour chacune des sources et dans le second les estimations sont basées sur les résultats obtenus par le NPL avec leur DIAL au cours de la même campagne.

	Source A	Source B	Source C	Soupape	Compresseurs
Estimations <i>a priori</i> identiques pour toutes les sources ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	$86 \pm 52$	$86 \pm 52$	$86 \pm 52$	$86 \pm 52$	$86 \pm 52$
Estimations <i>a priori</i> basées sur les résultats du NPL ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	$700 \pm 420$	$207 \pm 124$	$225 \pm 135$	$501 \pm 301$	$276 \pm 166$

Le niveau de confiance en nos estimations *a priori* est fixé arbitrairement à 60 %. De plus les incertitudes sur les émissions des différentes sources ne sont pas corrélées car ils s'agit de fuites qui sont indépendantes les unes par rapport aux autres, la matrice de covariance de l'incertitude *a priori* est donc une matrice diagonale.

### 3.2.6.6 Configuration des inversions statistiques testées

Pour ce site, nous avons réalisé deux inversions statistiques en utilisant les estimations *a priori* des émissions de méthane des différentes sources présentées précédemment : les estimations basées sur les résultats du NPL ainsi que des estimations *a priori* identiques pour chacune des sources. Le tableau 3.16 rassemble les acronymes que nous allons utiliser dans la suite de cette étude pour désigner ces deux configurations d'inversion statistique étudiées dans cette section.

TABLE 3.16 – Tableau regroupant les acronymes utilisés pour désigner les différentes inversions statistiques réalisées pour l'installation de distribution de gaz.

Acronymes	Estimations <i>a priori</i> des émissions $f^b$
<b>INV-homog</b>	Estimations <i>a priori</i> des émissions identiques pour toutes les sources
<b>INV-DIAL</b>	Estimations <i>a priori</i> des émissions basées sur les résultats obtenus par le NPL

Nous pourrions ainsi comparer les résultats obtenus dans chacun des deux cas pour les estimations totales ainsi que pour les estimations séparées des différentes sources.

### 3.2.6.7 Résultats obtenus avec différents paramètres de l'inversion statistique

#### Estimation des émissions totales de méthane du site

Les résultats obtenus avec INV-DIAL et INV-homog sont respectivement présentés sur les figures 3.12 et 3.13. Si on regarde les estimations *a posteriori* des émissions totales de méthane de l'installation de distribution de gaz données par les deux inversions, on s'aperçoit qu'elles sont relativement proches l'une de l'autre puisqu'elles sont respectivement de  $523 \pm 53 \text{ kg.j}^{-1}$  et  $621 \pm 33 \text{ kg.j}^{-1}$ . Ces deux estimations se trouvent également dans l'enveloppe d'incertitudes des estimations obtenues avec la méthode traceur classique pour les différentes séries de mesures. Dans chacun des deux cas, les estimations *a posteriori* sont très éloignées des estimations données *a priori* et sont même en dehors de la plage d'incertitude *a priori* sur ces flux correspondant à un sigma. Dans INV-DIAL, les émissions totales de méthane sont énormément réduites puisqu'elles passent de  $1\,911 \pm 573 \text{ kg.j}^{-1}$  à  $523 \pm 53 \text{ kg.j}^{-1}$  alors que INV-homog augmente les flux donnés *a priori* puisqu'ils passent de  $432 \pm 116 \text{ kg.j}^{-1}$  à  $621 \pm 33 \text{ kg.j}^{-1}$ . Les incertitudes sur les estimations *a posteriori* des émissions totales ont été fortement réduites pour les deux inversions, cependant elles semblent avoir été un peu sous-estimées étant donné qu'elles ne permettent pas d'englober les estimations obtenues avec l'autre inversion.

#### Impacts sur les vecteurs d'observations et les profils de concentrations

Les résultats obtenus pour les traversée 1 et 7 sont présentés en exemple sur les figures 3.12 et 3.13 pour chacune des deux inversions statistiques. Comme pour la ferme de Grignon, les vecteurs d'observation donnés correspondent à l'intégration des profils de concentrations des différents segments. Les vecteurs d'observation modélisés avec les flux *a priori* sont représentés en bleu, ceux modélisés avec les estimations *a posteriori* en vert tandis que les aires sous les différents sections des profils de concentrations mesurés sont représentées en blanc. Si on regarde les résultats de la traversée 7, on s'aperçoit que les vecteurs d'observation obtenus après chacune des inversions sont plus proches des données basées sur les mesures que les vecteurs d'observations obtenus avec les différents flux *a priori* pour les parties 2 et 3. Pour les parties 4 et 5 en revanche, les vecteurs d'observation obtenus après inversion reste très différents des données basées sur les mesures mais sont tout de même plus proches que ceux obtenus avec les estimations *a priori*. Cela se traduit par un profil de concentrations modélisées avec les flux *a posteriori*

peu ressemblant à celui mesuré comme on peut le voir sur les graphiques inférieurs gauches des figures 3.12 et 3.13. Pour la traversée 1, les vecteurs d'observations sont plus proches de données basées sur les mesures que pour la traversée 7, les profils de concentrations modélisés avec les flux *a posteriori* sont assez proches des profils de concentration mesurés. Le modèle ne permet donc pas de reproduire correctement les profils de concentrations mesurées lors des traversées de panache.

### Séparabilité des émissions des différentes sources de méthane

Lorsque l'on regarde plus en détail les estimations des flux de méthane des différentes sources de l'installation de distribution de gaz obtenues avec les deux inversions, on s'aperçoit que certaines estimations sont négatives. L'inversion statistique utilise des flux négatifs pour se rapprocher des observations, ce qui est impossible dans la réalité mais n'est pas contraint par l'approche gaussienne utilisée ici.

Pour INV-DIAL, deux sources de méthane ont des flux négatifs (la source A et la source B) alors qu'INV-homog n'en a qu'une (la source A). En regardant les incertitudes données sur les estimations *a posteriori* de la source A de la première inversion, on remarque que le système ne parvient pas non plus à identifier qu'il se trompe complètement et que même la plage d'erreur donnée à un sigma reste dans des flux négatifs. L'incertitude associée à l'estimation *a posteriori* des émissions de la source A n'est pas assez importante pour atteindre des valeurs positives. En revanche, pour INV-homog, cette incertitude est suffisamment grande pour que le flux puisse atteindre des valeurs positives.

La figure 3.14 présente l'influence des différentes sections du profil de concentrations sur les estimations des flux d'émissions pour chacune des deux inversions calculée en faisant la somme des  $K_{n,i}(p_i - H_{i,n}f_n^a)$  des segments  $i$  des différentes traversées pour la source  $n$ .

Chaque partie est représentée par une couleur différente au niveau de la troisième colonne des différentes sources. En regardant cette figure, on s'aperçoit que pour INV-DIAL, ce sont les segments 5 et 6 qui vont contraindre le système à donner des estimations *a posteriori* négatives pour la source A. L'inversion statistique compense l'augmentation des concentrations de méthane au niveau de ces segments du fait des émissions d'autres sources en appliquant des valeurs négatives pour les flux des sources A et B. En ce qui concerne INV-homog, ce sont les parties 3, 5 et 6 qui vont entraîner une estimation des émissions de la source A négative.

Le panache modélisé présente une forme moins longiligne que les observations et l'inversion doit réduire les émissions, quitte à les rendre négatives au niveau du deuxième segment. Cette difficulté de l'inversion statistique à donner des estimations correctes des émissions de méthane des différentes sources de l'installation de distribution de gaz est liée à la mauvaise séparabilité des différentes sources illustrée par les corrélations sur les incertitudes *a posteriori* entre les différentes sources de méthane du site pour chacune des inversions présentées dans les tableaux 3.17 et 3.18. Même les émissions de méthane associées aux compresseurs, que l'on pensait pouvoir séparer un peu mieux des autres, sont fortement corrélées négativement avec celles de la soupape. De même, la source A est corrélée négativement avec la soupape et avec la source B. Ces corrélations négatives impliquent que seules les sommes de ces sources peuvent être contraintes de façon robuste.

TABLE 3.17 – Corrélations sur les incertitudes *a posteriori* entre les différentes sources de méthane de l'installation de distribution de gaz après inversion avec des flux *a priori* basés sur les résultats du NPL.

	Source B	Source A	Soupape	Source C	Compresseurs
Source B	1,00	-0,61	-0,22	-0,26	0,31
Source A	-0,61	1,00	0,51	-0,50	0,28
Soupape	-0,22	-0,51	1,00	-0,71	-0,62
Source C	0,26	-0,50	-0,71	1,00	0,04
Compresseurs	0,31	0,28	-0,62	0,04	1,00

TABLE 3.18 – Corrélations sur les incertitudes *a posteriori* entre les différentes sources de méthane de l'installation de distribution de gaz après inversion avec des flux *a priori* identiques pour toutes les sources du site.

	Source B	Source A	Soupape	Source C	Compresseurs
Source B	1,00	-0,45	-0,25	-0,36	0,09
Source A	-0,45	1,00	-0,17	-0,06	0,06
Soupape	-0,25	-0,17	1,00	-0,35	-0,24
Source C	-0,36	-0,06	-0,35	1,00	-0,42
Compresseurs	0,09	0,06	-0,24	-0,42	1,00

### Conclusions sur la campagne de mesures réalisée au sein de l'installation de distribution de gaz

L'inversion statistique appliquée à l'installation de distribution de gaz permet de confirmer l'ordre de grandeur des estimations des émissions totales de méthane du site obtenus par la méthode traceur. Cette inversion présente toutefois de grosses difficultés à estimer séparément les émissions des différentes sources de méthane du site du fait de leur proximité et des conditions météorologiques qui ne permettent pas de séparer leur panaches d'émission. En effet, dans ces conditions les fonctions de réponse des différentes sources se chevauchent très fortement rendant leur séparation très difficile avec l'inversion statistique, ce qui se traduit par des corrélations sur les incertitudes *a posteriori* entre ces différentes sources fortement négatives. La difficulté est telle que l'inversion donne des estimations des émissions *a posteriori* négatives pour certaines sources afin de compenser les émissions d'autres sources. D'autres conditions météorologiques auraient sûrement été plus favorables à notre méthode d'inversion statistique contrainte par la méthode traceur, notamment avec un vent venant de l'ouest. Les résultats des deux méthodes utilisées ici (traceur et inversion) sont très différents de ceux obtenus avec les données du lidar DIAL (facteur 3-4). Il est toutefois à noter que les concentrations modélisées avec le modèle gaussien et les estimations des émissions données par le NPL sont nettement au-dessus des concentrations mesurées. Cette forte différence pourrait être liée aux grosses incertitudes sur les estimations du NPL.

Il est difficile d'arriver à une conclusion quant aux émissions de cette installation de distribution de gaz. Les résultats que nous avons obtenus sont en désaccords avec ceux du NPL aussi bien sur les émissions totales que sur leur distribution par sources. Le niveau de confiance en nos estimations des émissions totales du site nous fait un peu douter des estimations du NPL. En ce qui concerne la distribution des émissions par sources, nous avons très peu confiance en nos résultats nous aurions tendance à donner plus de crédibilité à ceux du NPL même si ceux-ci ne sont pas en accord avec les observations.

### Conclusions de l'application de l'inversion statistique paramétrée par les données du gaz traceur à différents cas réels

Dans ce chapitre, nous avons appliqué l'inversion statistique contrainte par la méthode traceur à deux types de sites réels afin d'estimer leurs émissions de méthane : une exploitation agricole et une installation de distribution de gaz. Pour chacun de ces deux sites, la nouvelle méthode nous a permis de donner une estimation robuste des émissions totales de méthane que l'on a pu comparer avec celle obtenue avec la méthode traceur traditionnelle. Pour ces deux applications, comme pour les cas académiques étudiés précédemment, nous avons utilisé des OSSEs afin de pointer les risques d'erreur sur les estimations totales avec la méthode traceur classique du fait de la mauvaise colocalisation de la source de traceur. L'inversion statistique paramétrée avec les données du gaz traceur permet de prendre en compte la position du traceur par rapport aux sources de méthane et d'éviter ces risques d'erreur.

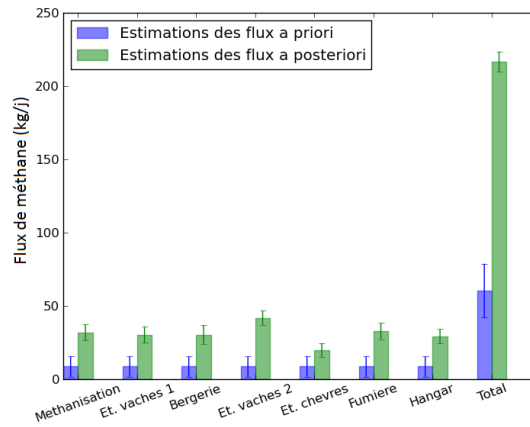
Nous avons également essayé d'estimer séparément les émissions des différentes sources de méthane présentes au sein de chacun des sites. En ce qui concerne la ferme de Grignon, l'inversion statistique nous a permis d'obtenir des estimations des émissions des principaux groupes de sources de méthane et l'analyse des corrélations sur les incertitudes *a posteriori* entre les différentes sources nous a permis de diagnostiquer les sources que le système avait du mal à séparer. Pour l'installation de distribution de gaz, les conditions météorologiques durant notre campagne de mesures n'étaient pas adaptées à l'estimation

séparées des émissions des différentes sources puisque, dans ces conditions, les panaches d'émission de chacune des sources se superposaient fortement les uns aux autres rendant leur séparation par le système très difficile. La forme des profils de concentrations mesurées lors des traversées du panache d'émission peut nous renseigner sur la capacité de notre méthode à donner des estimations séparées de différentes sources du site : lorsque le profil de concentrations présente une forme particulière, comme pour la ferme de Grignon ou avec plusieurs pics de concentrations par exemple, l'inversion statistique contrainte par la méthode traceur peut permettre d'estimer les émissions de différentes parties du site. En revanche, si le profil de concentrations présente une forme de gaussienne comme pour l'installation de distribution de gaz, l'estimation des émissions provenant de différentes zones du site va être compliquée.

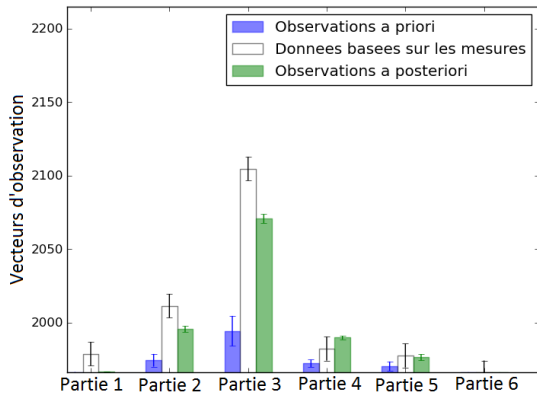
Nous avons également montré que les estimations *a priori* des différentes sources utilisées dans l'inversion statistique influençaient très peu l'estimation *a posteriori* des émissions totales mais qu'elles étaient très importantes pour l'estimation séparée des émissions des différentes sources, cette dernière restant délicate et également très tributaires des conditions d'expérience (direction et vitesse du vent). Nous avons également testé différentes méthodes de calcul de l'erreur liée au modèle et aux mesures : une erreur moyenne pour les différentes sections de chaque traversée, une erreur spécifique à chaque section ou encore l'erreur maximale des différentes traversées selon le site étudié. Nous avons ainsi pu montrer que l'utilisation d'une erreur spécifique à chaque section permettait d'obtenir des concentrations modélisées plus proches des concentrations mesurées au niveau des extrémités des panaches contrairement à l'erreur moyenne étant donné que l'erreur associée à ces sections du panache est généralement plus faibles. En revanche l'utilisation de l'erreur moyenne aux différentes sections permet de mieux représenter les maxima de concentrations mesurés et donne de meilleurs résultats sur l'ensemble des traversées. L'erreur maximale a quant à elle été utilisée pour relâcher la contrainte sur le système lorsque le modèle ne permettait pas de représenter correctement le panache mesuré.

Dans le chapitre suivant, nous allons nous intéresser plus particulièrement à un autre secteur responsable des émissions de méthane anthropiques, le secteur des déchets. Nous utiliserons différentes méthodes d'estimation des émissions de méthane en fonction des contraintes de chaque site.

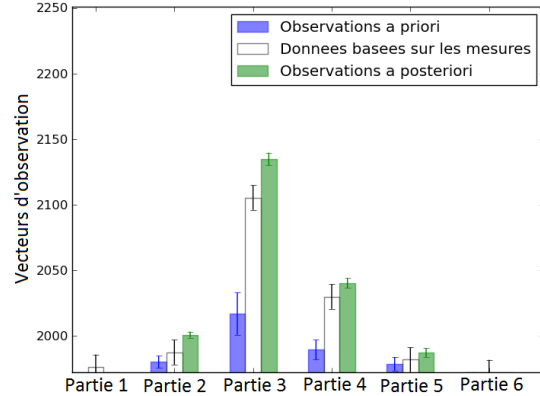




(a) Estimations des flux d'émissions de méthane *a priori* et *a posteriori* de la ferme de Grignon



(b) Traversée 10 simulée avec une classe de stabilité C



(c) Traversée 6 simulée avec une classe de stabilité D

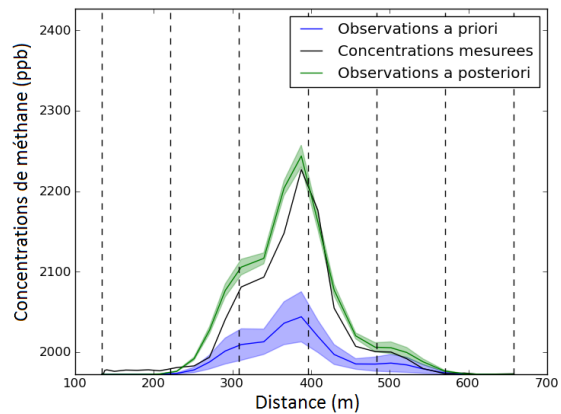
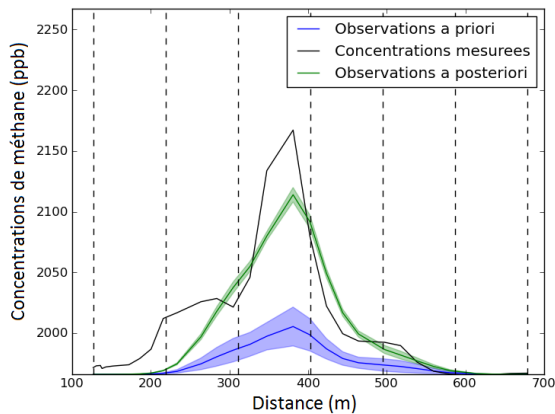
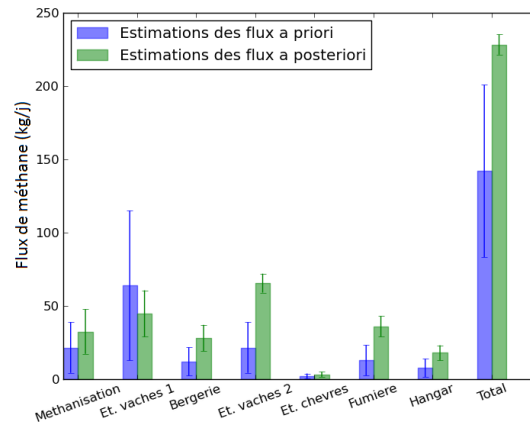
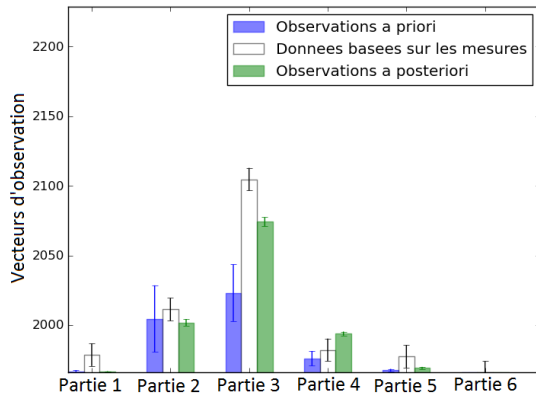


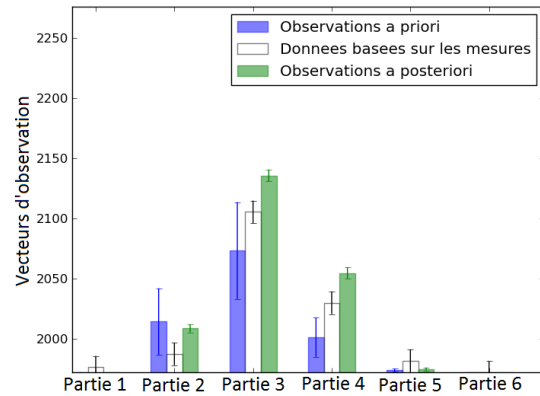
FIGURE 3.5 – Résultats obtenus avec INV-homog pour la ferme de Grignon. (a) Estimation des flux de méthane *a priori* (bleu) et *a posteriori* (vert) pour les différentes sources mais également pour les émissions totales du site. (b) et (c) Exemple de vecteurs d'observation et de profils de concentrations obtenus grâce aux estimations *a priori* (bleu) et *a posteriori* (vert) des flux avec le modèle gaussien comparés aux concentrations mesurées pour deux traversées, la traversée 10 pour laquelle la classe de stabilité C a été sélectionnée et la traversée 6 avec une classe D.



(a) Estimations des flux d'émissions de méthane *a priori* et *a posteriori* de la ferme de Grignon



(b) Traversée 10 simulée avec une classe de stabilité C



(c) Traversée 6 simulée avec une classe de stabilité D

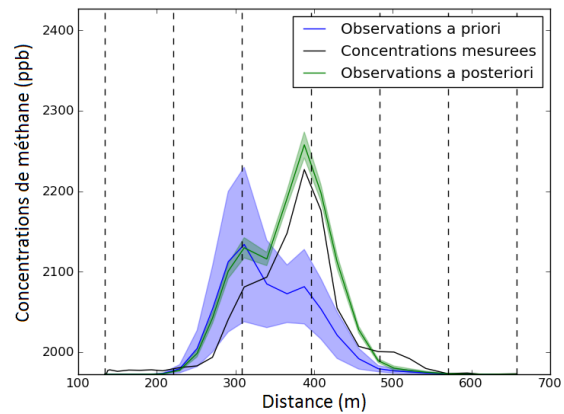
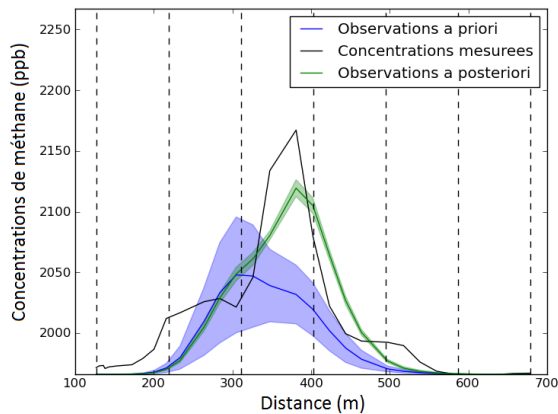


FIGURE 3.6 – Résultats obtenus avec INV-invent pour la ferme de Grignon. (a) Estimation des flux de méthane *a priori* (bleu) et *a posteriori* (vert) pour les différentes sources mais également pour les émissions totales du site. (b) et (c) Exemple de vecteurs d'observations et de profils de concentrations obtenus grâce aux estimations *a priori* (bleu) et *a posteriori* (vert) des flux avec le modèle gaussien comparés aux concentrations mesurées pour deux traversées, la traversée 10 pour laquelle la classe de stabilité C a été sélectionnée et la traversée 6 avec une classe D.

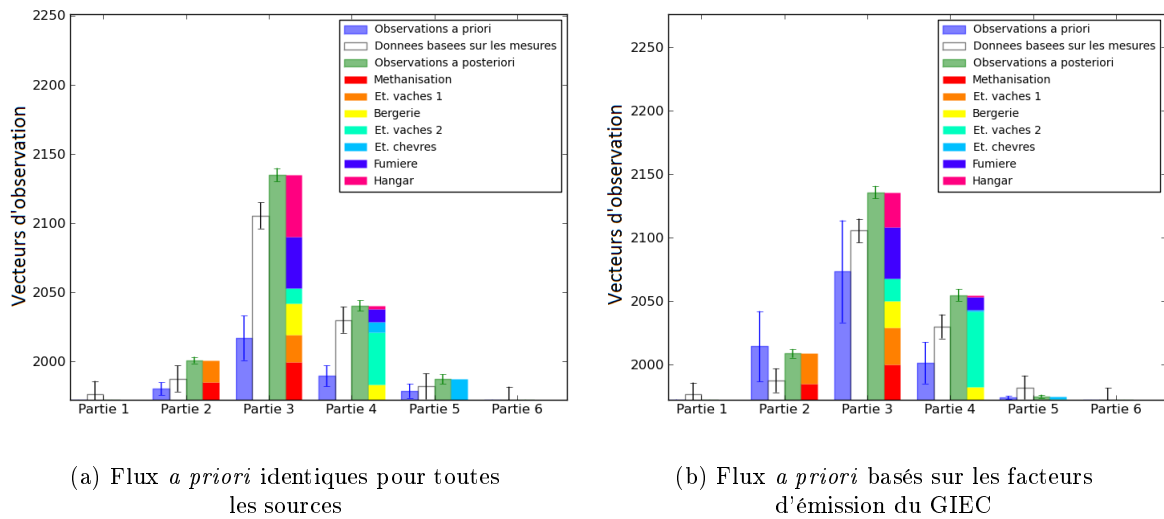
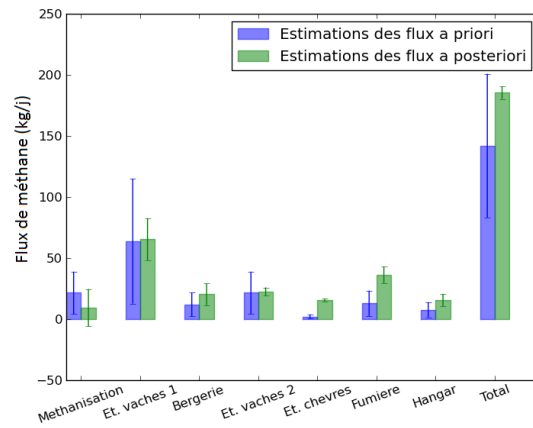
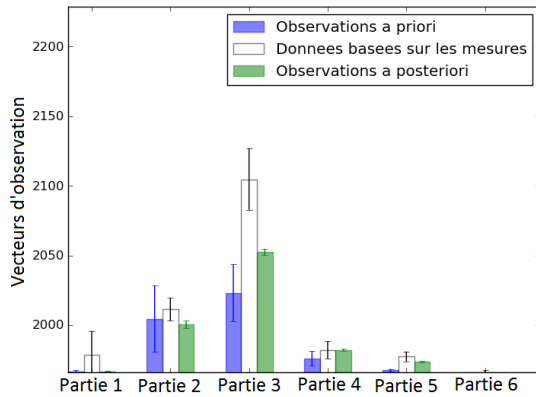


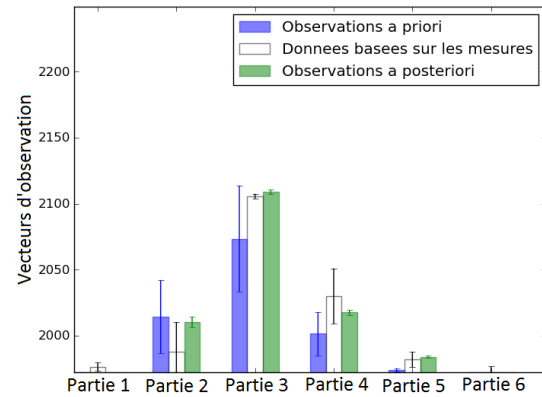
FIGURE 3.7 – Contribution des différentes sources de méthane sur les vecteurs d'observation de chaque section pour la traversée 6 lors de l'inversion avec (a) INV-homog et (b) INV-invent. La première barre (bleu) représente les vecteurs d'observation modélisés avec les flux *a priori*, la deuxième colonne (blanc) présente les données basées sur les mesures, la troisième barre (vert) les vecteurs d'observation totaux avec les flux *a posteriori* et la quatrième colonne montre la répartition de ce dernier vecteur d'observation entre les différentes sources de méthane de la ferme de Grignon, chaque couleur correspondant à une source.



(a) Estimations des flux d'émissions de méthane *a priori* et *a posteriori* de la ferme de Grignon



(b) Traversée 10 simulée avec une classe de stabilité C



(c) Traversée 6 simulée avec une classe de stabilité D

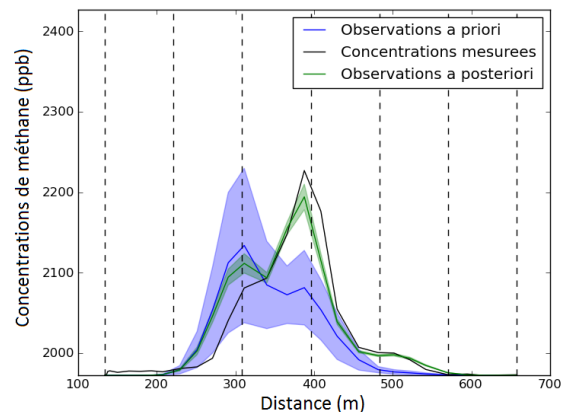
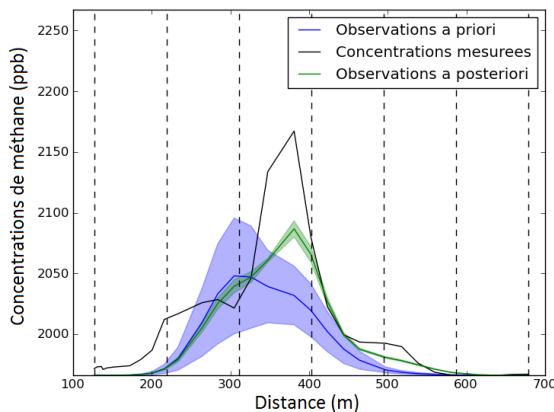


FIGURE 3.8 – Résultats obtenus avec INV-extrem pour la ferme de Grignon. (a) Estimation des flux de méthane *a priori* (bleu) et *a posteriori* (vert) pour les différentes sources mais également pour les émissions totales du site. (b) et (c) Exemple de vecteurs d'observations et de profils de concentrations obtenus grâce aux estimations *a priori* (bleu) et *a posteriori* (vert) des flux avec le modèle gaussien comparés aux concentrations mesurées pour deux traversées, la traversée 10 pour laquelle la classe de stabilité C a été sélectionnée et la traversée 6 avec une classe D.

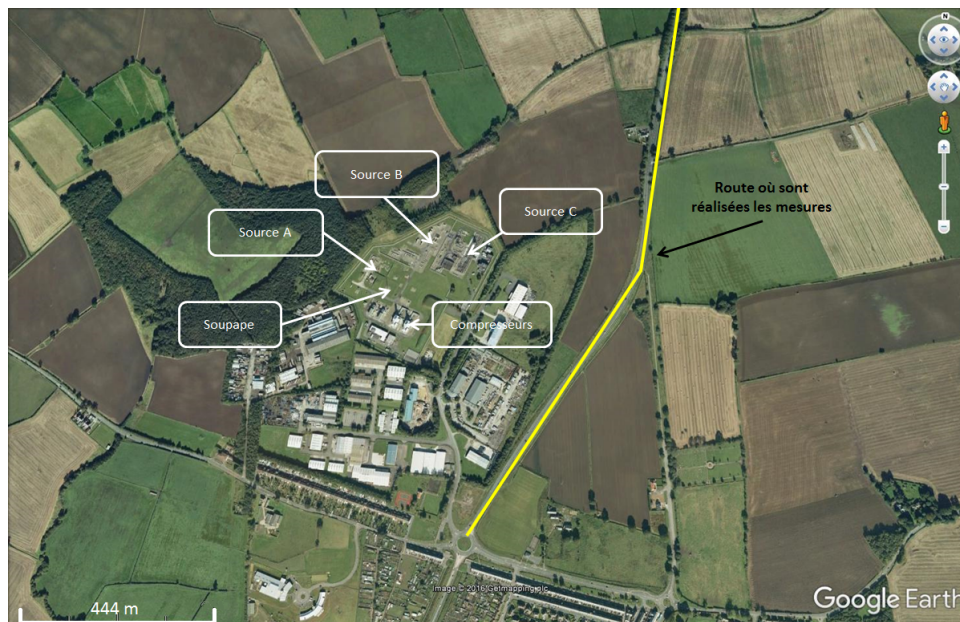


FIGURE 3.9 – Vue aérienne de l’installation de distribution de gaz sur laquelle sont représentées les principales sources de méthane.

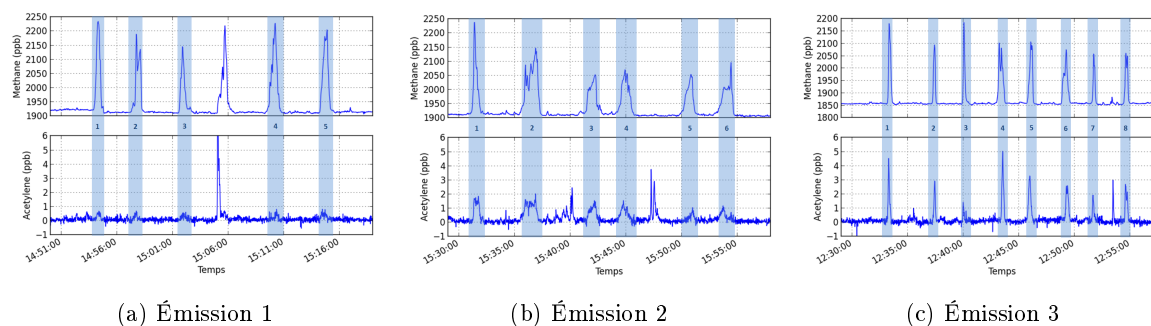


FIGURE 3.10 – Concentrations en méthane et en acétylène mesurées lors des différentes traversées du panache d’émission provenant du site de distribution de gaz pour les trois séries de mesures. Les traversées surlignées en bleu sont utilisées pour le calcul des émissions en méthane.

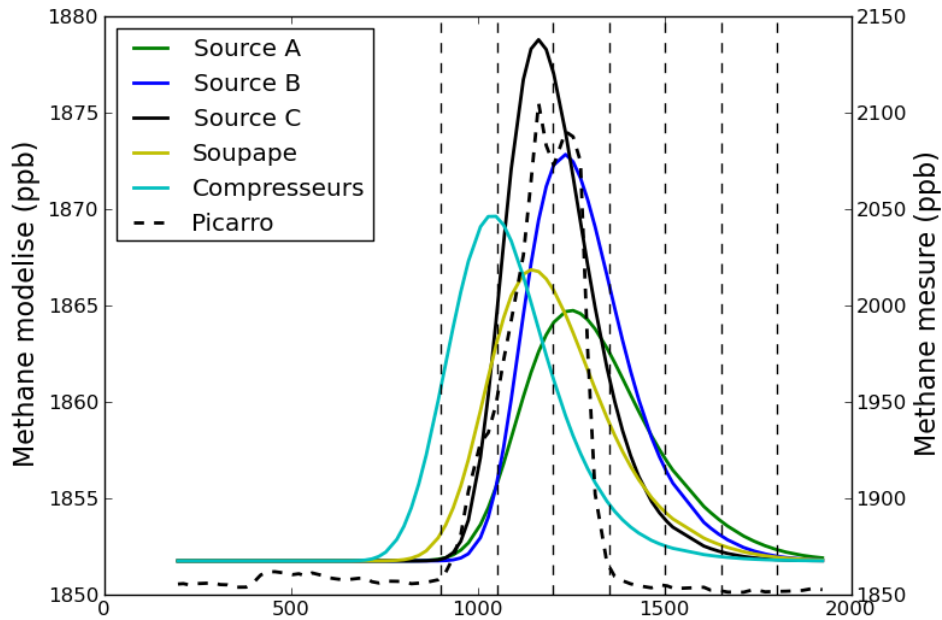
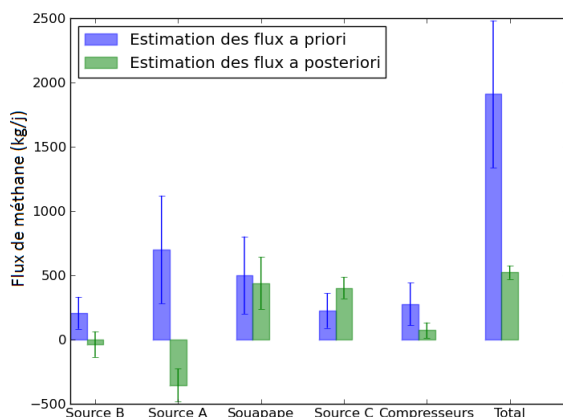
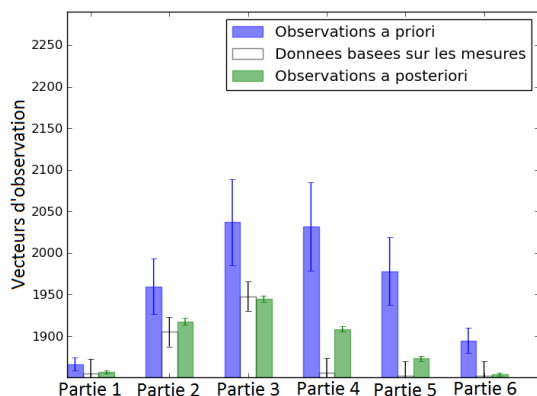


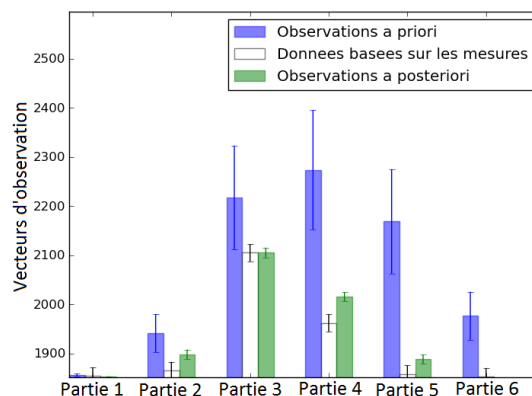
FIGURE 3.11 – Fonctions de réponse des différentes sources de méthane de l'installation de distribution de gaz avec le modèle gaussien. La courbe en pointillés correspond aux concentrations mesurées lors de la traversée 5 et les courbes en traits continus correspondent aux concentrations modélisées pour les différentes sources du site avec un flux unitaire, les conditions météorologiques de la traversée 5 et la classe de stabilité sélectionnée grâce aux concentrations de traceur.



(a) Estimations des flux d'émissions de méthane *a priori* et *a posteriori* de l'installation de distribution de gaz



(b) Traversée 7 simulée avec une classe de stabilité B



(c) Traversée 1 simulée avec une classe de stabilité C

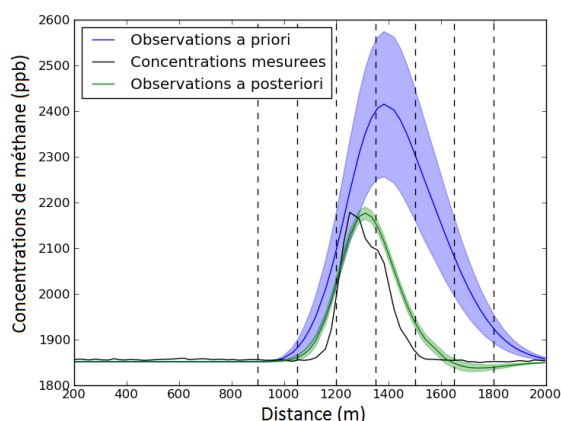
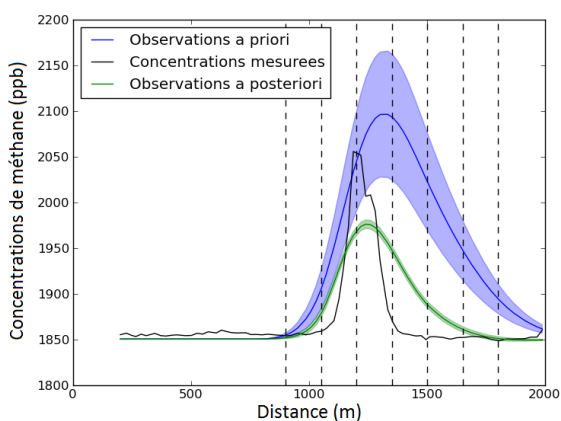
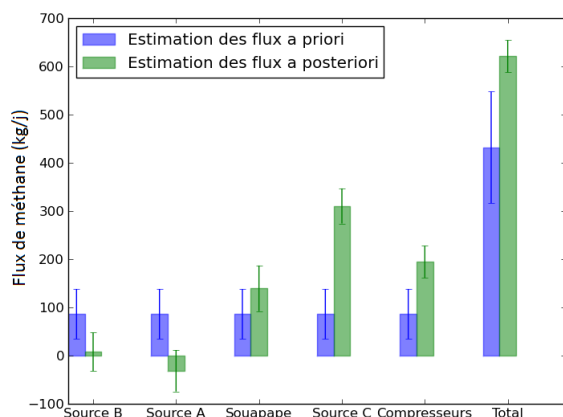
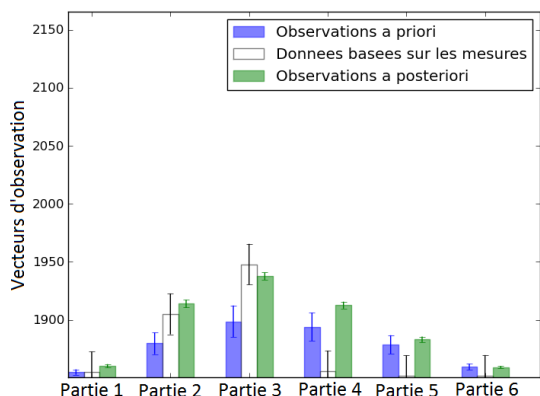


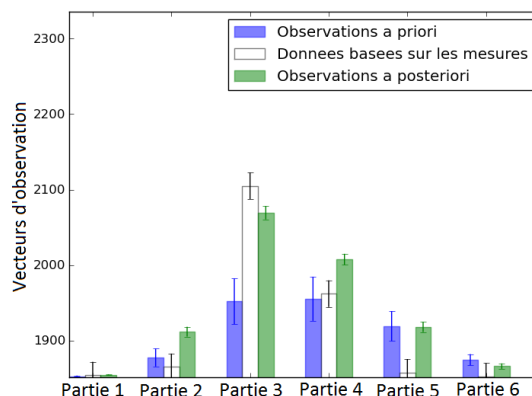
FIGURE 3.12 – Résultats obtenus avec INV-DIAL pour l'installation de distribution de gaz. (a) Estimation des flux de méthane *a priori* (bleu) et *a posteriori* (vert) pour les différentes sources mais également pour l'ensemble du site. (b) et (c) Exemple de vecteurs d'observations et de profils de concentrations obtenues grâce aux estimations *a priori* (bleu) et *a posteriori* (vert) des flux avec le modèle gaussien comparés aux concentrations mesurées pour deux traversées, la traversée 7 pour laquelle la classe de stabilité B a été sélectionnée et la traversée 1 avec une classe C.



(a) Estimations des flux d'émissions de méthane *a priori* et *a posteriori* de l'installation de distribution de gaz



(b) Traversée 7 simulée avec une classe de stabilité B



(c) Traversée 1 simulée avec une classe de stabilité C

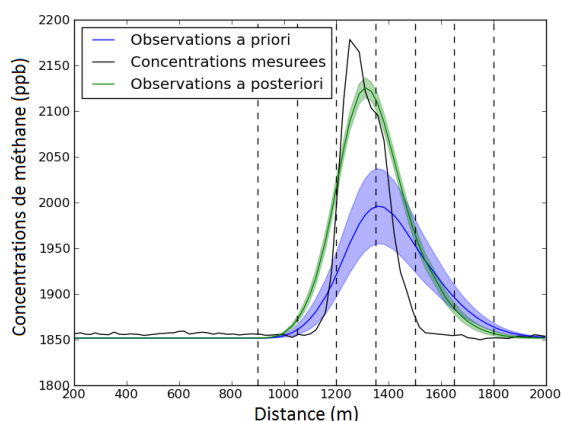
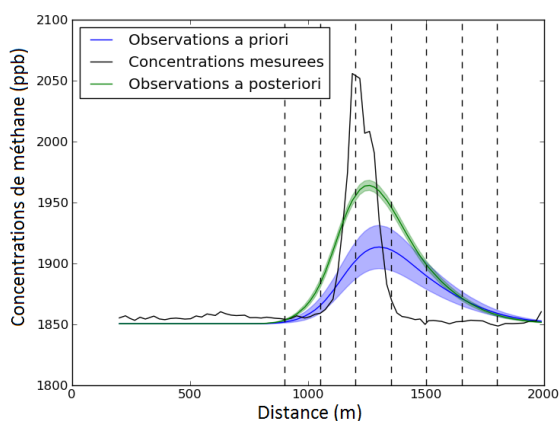
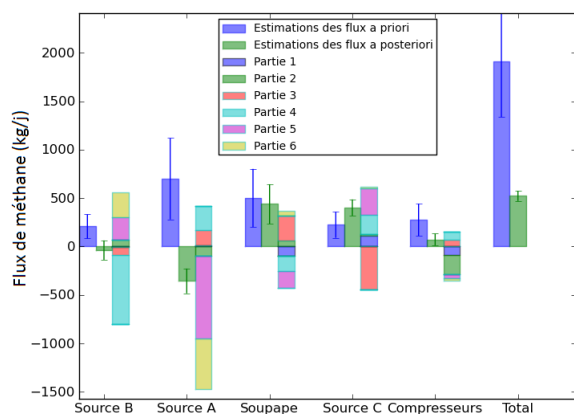
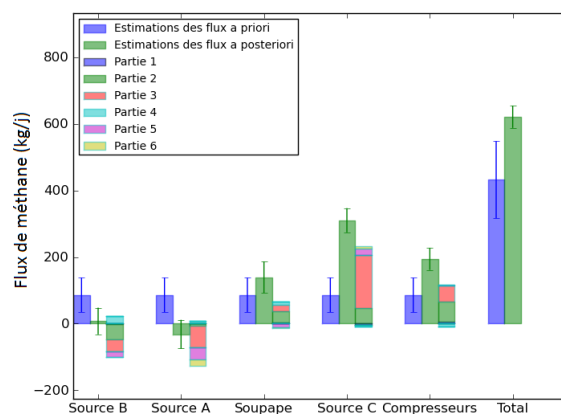


FIGURE 3.13 – Résultats obtenus avec INV-homog pour l'installation de distribution de gaz. (a) Estimation des flux de méthane *a priori* (bleu) et *a posteriori* (vert) pour les différentes sources mais également pour l'ensemble du site. (b) et (c) Exemple de vecteurs d'observations et de de profils de concentrations obtenues grâce aux estimations *a priori* (bleu) et *a posteriori* (vert) des flux avec le modèle gaussien comparés aux concentrations mesurées pour deux traversées, la traversée 7 pour laquelle la classe de stabilité B a été sélectionnée et la traversée 1 avec une classe C.





(a) Flux *a priori* basés sur les estimations du NPL



(b) Flux *a priori* identiques pour toutes les sources

FIGURE 3.14 – Estimation des flux de méthane *a priori* (bleu) et *a posteriori* (vert) pour les différentes sources et pour l'ensemble du site. La troisième colonne représente l'influence des différentes parties des profils de concentrations sur les flux d'émissions obtenus grâce à l'inversion statistique pour chacune des deux inversions, chaque partie étant représentée par une couleur.

---

## Quantification des émissions de méthane provenant du secteur des déchets

---

### Sommaire

---

4.1	Estimation des émissions de méthane provenant d'ISDND . . . . .	87
4.1.1	Aperçu des connaissances générales sur les émissions de méthane liées aux installations de stockage des déchets non dangereux . . . . .	87
4.1.2	Inversion déterministe simple avec un modèle gaussien : application à des installations de stockage de déchets non dangereux . . . . .	89
4.1.3	Utilisation de la méthode traceur à l'unité de stockage des déchets non dangereux de la Butte-Bellot . . . . .	92
4.1.4	Inversion déterministe avec un modèle CFD pour estimer les émissions de l'ISDND d'Ipswich . . . . .	96
4.2	Estimation des émissions de méthane provenant de l'épuration des eaux usées . . . . .	99
4.2.1	Aperçu des connaissances générales sur les procédés d'épuration des eaux usées et émissions de méthane qui leur sont associées . . . . .	99
4.2.2	Réseau d'assainissement et stations d'épuration de la région de Valence . . . . .	102
4.2.3	La station d'épuration de Cergy . . . . .	115
4.2.4	L'unité de traitement des boues d'Achères . . . . .	120

---

L'accroissement de la population mondiale et les activités humaines se traduisent entre autres par une augmentation de la production de déchets et d'eaux usées dont le traitement est une source non négligeable de gaz à effet de serre. La mise en place de politiques d'adaptation et d'atténuation adaptées nécessite d'identifier, de comprendre et de quantifier les émissions de gaz à effet de serre intervenant lors du traitement de ces déchets, et notamment les émissions de méthane qui représentaient 28% des émissions anthropiques françaises en 2014 selon le CITEPA (en incluant le traitement des déchets solides et des effluents). Bien que les processus de formation du méthane par les micro-organismes méthanogènes soient relativement bien identifiés, les quantités produites et la fraction émise dans l'atmosphère lors du traitement des déchets et des eaux usées restent quant à elles mal connues. En effet ces émissions varient d'un site à l'autre suivant la composition et la quantité de déchets traités mais également selon les techniques de traitement utilisées. De nombreuses études ont déjà été menées afin de quantifier les émissions de méthane des unités de stockage des déchets non dangereux en utilisant diverses méthodes (Hegde et al., 2003; Babilotte et al., 2010; Mønster et al., 2015) alors que les études concernant les stations d'épuration sont moins nombreuses du fait de leurs émissions moins importantes (Czepiel et al., 1993; Daelman et al., 2012; Yver Kwok et al., 2015). À l'heure actuelle, les estimations des émissions de méthane provenant de ces sites sont basées sur des facteurs d'émission et calculées en utilisant la quantité de déchets traitée. Idéalement, des mesures précises et en continue permettraient de valider et/ou d'ajuster les résultats obtenus avec ces modèles mais à l'heure actuelle celles-ci sont trop lourdes à mettre en place et seules quelques campagnes ponctuelles sont réalisées.

Tout au long de mon travail de thèse, je me suis intéressé aux émissions de méthane associées aux installations agricoles et au secteur du gaz naturel (chapitre 3), mais aussi, et de façon encore plus prononcée, au secteur des déchets. J'ai pour ce dernier effectué un certain nombre de campagnes de mesures au sein de plusieurs Installations de Stockage des Déchets Non Dangereux (ISDND) et de stations d'épuration. Certaines de ces campagnes ont été réalisées en collaboration avec des équipes de recherche extérieures dans le cadre des projets BridGES et FuME financés par la KIC-Climat alors que pour d'autres j'étais seul à décider du protocole déployé. J'ai également été amené à traiter et analyser les données recueillies lors de campagnes auxquelles je n'ai pas participé directement. Tout cela explique les différentes stratégies mises en places pour estimer les émissions de ce tous ces sites et reflète la grande diversité des émissions de méthane associées au secteur des déchets. Pour chacune de ces campagnes, j'ai choisi d'utiliser la méthode qui me semblait la plus adaptée pour caractériser au mieux leurs émissions, une application de la méthode d'inversion statistique calibrée à l'aide d'un traceur n'étant pas systématiquement possible du fait des contraintes pratiques (accès aux sites pour l'émission de gaz traceur, topographie ne permettant pas l'utilisation d'un modèle gaussien...). Le tableau 4.1 présente les différents sites que nous avons été amenés à étudier au cours de cette thèse ainsi que les méthodes d'estimations utilisées pour estimer les émissions de méthane de chacune d'entre elles.

TABLE 4.1 – Tableau récapitulatif des différents sites étudiés dans le domaine des déchets et des méthodes utilisées pour estimer leurs émissions de méthane.

Sites étudiés	Méthodes d'estimation des émissions de méthane			Autres mesures	Nombre de jours de mesures	Chapitre
	Méthode traceur	Mesures mobiles et inversion déterministe gaussienne	Mesures statiques et inversion déterministe avec un modèle CFD			
ISDND en région parisienne		✓		-	-	4.1.2
ISDND de la Butte-Bellot	✓			Mesures isotopiques	6	4.1.3
ISDND d'Ipswich			✓	-	-	4.1.4
Station d'épuration de Valence	✓			Mesures isotopiques	13	4.2.2
Station d'épuration de Cergy	✓			Mesures isotopiques DIAL Mesures des COV	4	4.2.3
Station d'épuration d'Achères	✓			Mesures isotopiques	10	4.2.4

Dans ce chapitre, je m'intéresse aux émissions de méthane provenant aussi bien d'ISDND que de stations d'épuration. Pour les premières, je n'ai pas pu mettre en œuvre l'inversion statistique contrairement aux secondes pour lesquelles j'ai pu utiliser la méthode développée dans cette thèse comme expliqué

ci-dessous.

J'ai d'une part cherché à exploiter *a posteriori* les mesures mobiles réalisées dans le projet CarboCount City autour d'un grand nombre d'ISDND situées en région parisienne. Les émissions de méthane ont été estimées en utilisant une inversion déterministe avec un modèle gaussien et les données mobiles recueillies. N'ayant eu accès aux données qu'une fois les campagnes terminées, je n'ai pas pu choisir les trajectoires des mesures et le nombre de traversées réalisé pour chacun des sites. Les données collectées n'étaient donc pas optimales pour l'inversion (généralement une seule traversée disponible ne traversant pas toujours correctement le panache). Ces mesures des concentrations en méthane ont été réalisées autour d'un grand nombre de sites différents. Les exploitants n'ont pas été contactés pour demander l'autorisation d'accéder au site afin d'émettre un gaz traceur ou d'avoir des informations supplémentaires sur les sources de méthane. Ces mesures avaient pour but de développer une méthode rapide permettant de donner un ordre de grandeur des émissions de méthane des différents sites plutôt que de donner des estimations précises de ces émissions. D'autre part, nous avons essayé d'estimer plus précisément les émissions de méthane de l'ISDND de la Butte-Bellot. Cette campagne a été réalisée et traitée en fin de thèse et je me suis limité à l'utilisation de la méthode traceur classique pour estimer ces émissions par manque de temps. Enfin, dans le cadre de ma mobilité de thèse, j'ai eu l'opportunité de passer quelques mois au sein de l'université de Manchester et de travailler sur les données collectées lors d'une campagne de mesures réalisées avant mon arrivée dans une unité de stockage située à Ipswich au Royaume-Uni. La stratégie adoptée par l'équipe sur place et que j'ai par la suite suivi consistait à utiliser des mesures fixes des concentrations de méthane associées à un modèle de transport atmosphérique plus complexe du fait de la topographie du site pour estimer les émissions de cette ISDND. La plupart des estimations des émissions de méthane obtenues lors des différentes campagnes sont comparées aux émissions rapportées dans le registre français des émissions polluantes par ces ISDND.

Les estimations des émissions de méthane provenant du traitement des eaux usées sont basées sur des campagnes ponctuelles mettant en œuvre des mesures mobiles pendant lesquelles nous avons pu choisir les conditions optimales d'expérience permettant d'utiliser l'inversion statistique calibrée avec les données du traceur. Seule la campagne réalisée au sein de la station d'épuration de Cergy n'a pas permis d'utiliser cette méthode du fait de la configuration du site rendant l'utilisation du modèle gaussien impossible. Nous nous sommes intéressés à des stations d'épuration de tailles différentes mettant en œuvre différents types de traitement. Nous avons essayé d'estimer les quantités de méthane émises lors des différentes étapes intervenant durant le traitement des eaux usées, de leur acheminement jusqu'au traitement des boues formées. Les mesures réalisées au sein des stations d'épuration de Valence et de Romans-sur-Isère nous ont d'une part permis d'étudier les émissions de méthane au sein du réseau d'assainissement et d'autre part nous avons pu essayer de quantifier les émissions des différentes étapes de traitement en appliquant l'inversion statistique paramétrée par les données du gaz traceur. Pour la station d'épuration de Cergy implantée dans une zone avec une forte topographie, nous avons utilisé la méthode traceur classique pour estimer les émissions totales du site. Les mesures que nous avons réalisées au sein de la station d'épuration d'Achères nous ont quant à elles permis de nous intéresser aux émissions de méthane associées au traitement des boues formées lors du traitement des eaux usées. Nous avons ainsi pu tenter de quantifier séparément les émissions liées aux différentes étapes du traitement des boues. Dans la suite de ce chapitre, je propose de montrer les résultats obtenus dans ces différents contextes.

## 4.1 Estimation des émissions de méthane provenant d'installations de stockage de déchets non dangereux

### 4.1.1 Aperçu des connaissances générales sur les émissions de méthane liées aux installations de stockage des déchets non dangereux

Les déchets solides peuvent être classés en plusieurs catégories :

- **les déchets dangereux** contenant des éléments toxiques ou susceptibles de présenter un risque pour l'environnement et la santé humaine (composés explosifs, nocifs, cancérigènes, mutagènes...).
- **les déchets inertes** regroupant principalement des déchets minéraux produits par l'activité de construction (béton, tuiles, briques, vitrage...). Ces déchets sont non biodégradables et sont généralement recyclés ou sont placés dans des installations de stockage des déchets inertes.
- **les déchets non dangereux** regroupant les déchets ménagers, les déchets de l'assainissement collectif ainsi que les déchets industriels banals et qui sont stockés au sein des ISDND.

Dans la suite de cette étude, nous allons plus particulièrement nous intéresser aux émissions provenant de cette dernière catégorie issue des ISDND. À leur arrivée au sein de l'installation de stockage, la composition et la quantité des déchets sont contrôlées puis ces déchets non dangereux sont placés dans des alvéoles, également appelées cellules de stockage, équipées d'une géomembrane et d'une couche d'argile de 1 à 2 mètres d'épaisseur pour protéger le sol de toute contamination. Une fois remplies, ces cellules sont recouvertes d'une couche protectrice composée de matériaux argileux permettant de limiter les émissions de biogaz et de composés malodorants dans l'atmosphère et les infiltrations d'eau dans les déchets. Une fois entreposés dans ces cellules où ils se trouvent dans des conditions anaérobies, ces déchets riches en matières organiques sont dégradés par les micro-organismes méthanogènes. Il en résulte une production de biogaz composé essentiellement de méthane (55-60 %) et de dioxyde de carbone (40-45 %) (Xydis et al., 2013) qui va perdurer pendant plusieurs décennies après l'enfouissement des déchets, jusqu'à la dégradation complète de la matière organique. La quantité de biogaz générée dépend de la rapidité de décomposition des déchets et du ratio des réactions de méthanisation et d'oxydation eux-mêmes fonction de la quantité de déchets stockée, de leur composition (teneur en matière organique et en humidité des déchets ou encore présence de composés inhibiteurs), de l'âge des déchets et des conditions d'exploitation de l'installation de stockage (température, humidité, compactage des déchets, conception de la couverture des cellules d'enfouissement...) (Scheutz et al., 2009). L'accumulation du biogaz généré engendre une augmentation de la pression à l'intérieur des cellules d'enfouissement qui provoque des émissions diffuses. Une partie de ce biogaz peut être collectée grâce à des réseaux de captage construits sur différents niveaux au sein de la cellule et utilisée pour produire de l'électricité et de la chaleur. L'installation de ces systèmes a été rendu obligatoire pour les nouveaux sites de stockage des pays de l'Union Européenne pour réduire les émissions de méthane mais le biogaz récupéré est pour l'instant plus souvent brûlé dans des torchères qu'utilisé pour produire de l'énergie.

Les émissions de ces installations de stockage des déchets non dangereux ont été estimées dans un certain nombre d'études avec différentes méthodes. L'une des plus employées pour ce type de site consiste à utiliser des chambres à flux qui sont posées à la surface des sites. L'évolution des concentrations en méthane à l'intérieur de ces chambres est suivie dans le temps et permet de donner une estimation des flux émis en un point donné. Hegde et al. (2003) ont estimés grâce à cette méthode les émissions surfaciques de méthane d'une ISDND en exploitation à Taiwan en fonction de l'âge des déchets. Ils ont ainsi montré que les émissions maximales se produisaient après deux ans d'exploitation de l'ISDND et qu'après cinq ans ces émissions diminuaient. En effet, ils ont respectivement estimé les émissions surfaciques de méthane à 13, 65 et 1  $\text{mg.m}^{-2} .\text{h}^{-1}$  pour 1-2, 2-3 et 5 ans d'exploitation de cette ISDND. En utilisant le même type de mesures, Chen et al. (2008) ont estimé les émissions d'une ISDND fermée à Taiwan entre 9 et 163  $\text{mg.m}^{-2} .\text{h}^{-1}$  après 5 ans de fermeture et entre 0,2 et 0,7  $\text{mg.m}^{-2} .\text{h}^{-1}$  après 11 ans. Ce type de mesures a permis de calibrer les facteurs d'émission relatifs à différents critères (âge et type de déchet, ISDND avec ou sans récupération du biogaz...) et utilisés dans les modèles permettant d'estimer les émissions de méthane reportées dans les inventaires à partir des quantités de déchets stockées.

Di Bella et al. (2011) ont comparé les estimations des émissions de méthane d'une ISDND en Italie obtenues grâce à deux méthodes différentes : les chambres à flux et un modèle du même type que ceux utilisés pour les inventaires. Ces deux méthodes semblent donner des résultats relativement proches puisque les émissions surfaciques ont été estimées à 1 584 et 1 476  $\text{mg.m}^{-2} .\text{h}^{-1}$  avec le modèle et les chambres à flux. De même, Czepiel et al. (1996) ont comparé les estimations des émissions d'une ISDND aux États-Unis obtenues avec ces chambres à flux et la méthode traceur et ont trouvé des résultats très proches (14 925 et 16 767  $\text{kg.j}^{-1}$  respectivement). La méthode traceur a également été utilisées dans plusieurs études pour estimer les émissions de méthane des ISDND. Scheutz et al. (2011) et Mønster et al. (2014) ont estimé les émissions de méthane de plusieurs ISDND au Danemark avec cette méthode et ont déterminé qu'elles pouvaient aller de 62 à 1 459  $\text{kg.j}^{-1}$ . Toutes ces études illustrent la grande variabilité des émissions de ce type d'installation.

En Europe, les émissions de ces ISDND sont reportées dans des inventaires nationaux et sont généralement estimées en utilisant la méthode proposée par le GIEC dans laquelle les émissions de méthane dans l'atmosphère sont calculées en considérant d'une part le potentiel de production de méthane par tonne de déchets enfouis mais également les quantités de méthane oxydées et capturées. Cependant cette méthode d'estimation présente de nombreuses incertitudes, un biais sur l'une de ces valeurs peut notamment entraîner un biais dans l'estimation des émissions totales. Ces estimations reportées dans les inventaires d'émission sont pour l'instant comparées à des estimations déterminées lors de campagnes de mesures ponctuelles faute de pouvoir mettre en place un suivi en continu.

## 4.1.2 Inversion déterministe simple avec un modèle gaussien : application à des installations de stockage de déchets non dangereux

### 4.1.2.1 Contexte et mesures atmosphériques

Dans le cadre du projet CarboCount City financé par la KIC-Climat (<http://www.climate-kic.org/>), plusieurs campagnes de mesures mobiles ont été réalisées à proximité de plusieurs d'ISDND et d'installations de distribution de gaz situées en Île-de-France en 2014 et 2015. Ces campagnes avaient pour but de réaliser dans de brefs délais une cartographie des niveaux de concentrations près des principales sources de méthane de la région parisienne. Pour cela, un analyseur CRDS était installé dans un véhicule afin de mesurer les concentrations en méthane et en dioxyde de carbone au niveau des routes situées à proximité des différents sites.

Les mesures n'ont pas été réalisées dans leurs conditions optimales pour l'estimation des émissions de ces sites étant donné le choix fait de ne pas demander l'accès à ces sites et d'y émettre un gaz traceur. De plus, seules les mesures des concentrations d'une ou deux traversées du panache d'émission ont généralement été réalisées pour chacun des sites et ces mesures n'ont pas forcément été réalisées à des distances adaptées. Je n'ai pas participé directement à la collecte de ces données mais j'ai pu utiliser les données recueillies afin de tenter d'estimer les émissions de méthane provenant des différentes ISDND étudiées dont la localisation est présentée sur la figure 4.1 en choisissant la méthode la plus adaptée. En l'absence d'interactions avec les différents opérateurs de ces sites, j'ai fait l'hypothèse de sources uniques sur chacun d'eux, ce qui est d'ailleurs adaptée à cette méthode d'inversion. La figure 4.2 présente un exemple de concentrations de méthane mesurées près d'une des ISDND ainsi que le champ tridimensionnel des concentrations modélisées avec le modèle gaussien avec une classe de stabilité B.

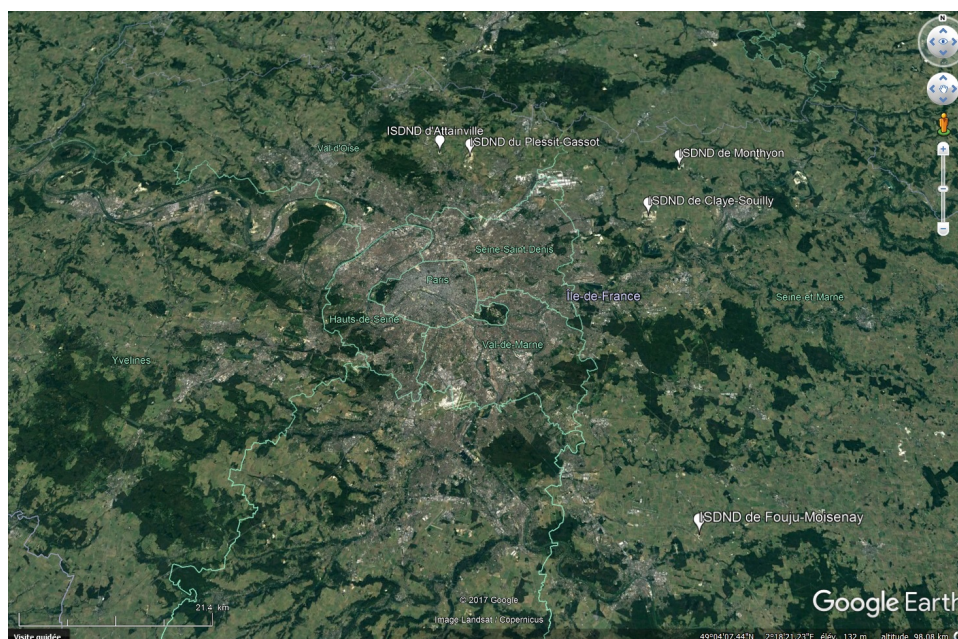


FIGURE 4.1 – Localisation des cinq installations de stockage de déchets non dangereux autour desquels des mesures ont été réalisées lors des campagnes CarboCount City du 18-19 novembre 2015.

### 4.1.2.2 Inversion déterministe d'une source unique avec un modèle gaussien

Les émissions de méthane provenant de ces différents sites sont estimées à l'aide d'une inversion déterministe avec le modèle gaussien Polyphemus présenté dans la section 2.2.2 en considérant une source unique pour chacun de ces sites et un unique indicateur de l'élévation des concentrations au dessus des concentrations de fond lors de la traversée du panache d'émission comme signature atmosphérique de cette source. Pour chaque site, la source de méthane est approximativement placée dans le modèle en utilisant la visualisation aérienne donnée par Google Earth et les émissions sont réparties de façon uniforme au niveau de la surface sélectionnée. Le modèle gaussien est forcé en utilisant un flux unitaire pour cette source et

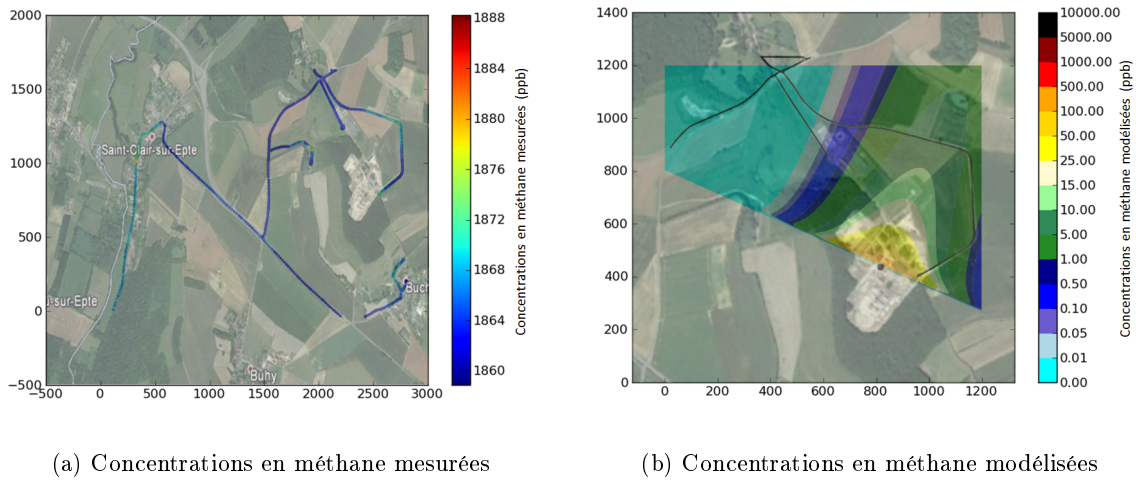


FIGURE 4.2 – Exemple de mesures réalisées autour d’une ISDND lors de la campagne CarboCount City et de concentrations modélisées avec le modèle gaussien.

les conditions de météorologiques données par le modèle ECMWF. L’augmentation des concentrations en méthane au niveau des routes où sont réalisées les mesures du fait des émissions des sites sont comparées à celle mesurée et le flux du site est ajusté de façon à ce que l’intégration de l’élévation des concentrations au dessus de la concentration de fond soit équivalente tout en faisant attention visuellement à ce que la forme et l’amplitude du panache correspondent aux mesures (un manque de similitude étant considéré comme un manque de fiabilité des résultats en l’absence d’indicateurs statistiques et de multiplicité des traversées de panache). Pour chaque site, les simulations sont réalisées avec les deux classes de stabilité C et D susceptibles d’être utilisées en considérant les vitesses de vent durant la campagne. Cela nous donne un intervalle d’estimation des émissions du site du fait de l’incertitude sur la classe de stabilité en l’absence de traceur pour optimiser son choix. Ces estimations sont ensuite comparées aux émissions de ces sites rapportées dans le registre français des émissions polluantes (IREP) pour les années 2013 et 2014. Cet inventaire met à disposition les données sur les rejets et les transferts de polluants déclarés par ces établissements. Le décalage induit sur les mesures par la vitesse de la voiture n’est pas pris en compte dans cette inversion déterministe étant donné que l’on ne dispose pas des données du gaz traceur pour le corriger.

#### 4.1.2.3 Estimations des émissions des différentes ISDND

La figure 4.3 présente les exemples de profils de concentrations mesurées et modélisées avec le modèle gaussien de deux des ISDND étudiées. Le graphique de gauche présente les concentrations mesurées et modélisées pour le site d’Attainville avec une classe de stabilité D et un flux de 0,3 T/j tandis que celui de droite illustre les mesures du site de Monthyon et les concentrations modélisées pour une classe de stabilité C et un flux de 0,9 T/j représentées en vert et en bleu respectivement. Le décalage induit par la vitesse de la voiture est observable lorsque l’on compare les concentrations en méthane mesurées et modélisées pour l’ISDND de Monthyon sur la figure 4.3.

Les estimations des émissions de méthane obtenues pour les différentes ISDND étudiées sont présentées dans le tableau 4.2. Les résultats obtenus grâce au modèle sont en accord avec les estimations rapportées dans l’IREP pour les centres de stockage de déchets non dangereux du Plessis Gassot et de Monthyon puisque les émissions de méthane sont estimées être comprises entre 9,4 et 16,9  $T_{CH_4}.j^{-1}$  pour l’ISDND du Plessis Gassot et entre 0,3 et 0,9  $T_{CH_4}.j^{-1}$  pour celle de Monthyon avec des émissions rapportées de 13,8 et 0,8  $T_{CH_4}.j^{-1}$  en 2014 respectivement. Les estimations obtenues pour les sites de Fouju-Moisenay et Attainville sont relativement proches des émissions rapportées mais les valeurs rapportées dans l’IREP ne sont pas comprises dans l’intervalle estimé avec le modèle. Pour Fouju-Moisenay, le modèle donne une estimation plus basse des émissions de méthane que l’inventaire puisque les émissions sont estimées entre 0,5 et 0,8  $T_{CH_4}.j^{-1}$  pour des émissions rapportées de 1,4  $T_{CH_4}.j^{-1}$  en 2014. Il en est de même pour Attainville avec des émissions estimées entre 0,3 et 0,5  $T_{CH_4}.j^{-1}$  avec le modèle gaussien et des

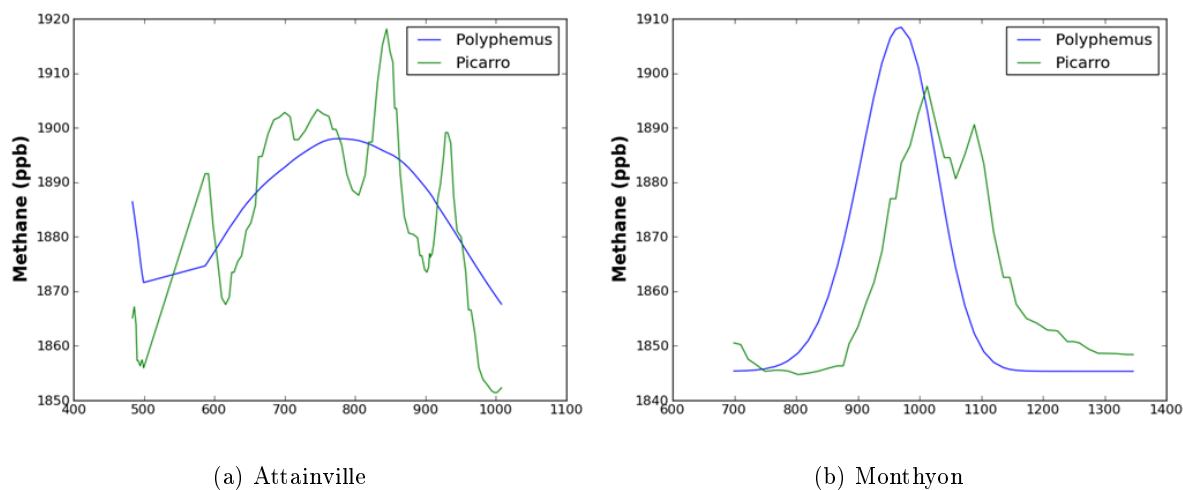


FIGURE 4.3 – Exemples de profils de concentrations mesurés (en vert) et modélisés avec le modèle Gaussien et mes estimations des émissions données par les inversions (en bleu) pour les sites de stockage des déchets non dangereux d’Attainville (a) et de Monthyon (b).

émissions rapportées de  $0,8 \text{ T}_{CH_4} \cdot \text{j}^{-1}$  en 2014. En revanche, les estimations obtenues avec le modèle pour le centre de stockage des déchets non dangereux de Claye-Souilly sont très largement au dessus des émissions rapportées puisque le modèle donne des émissions comprises entre  $42,7$  et  $80,5 \text{ T}_{CH_4} \cdot \text{j}^{-1}$  alors que les émissions rapportées dans l’IREP sont de  $12,5 \text{ T}_{CH_4} \cdot \text{j}^{-1}$  en 2014. Le niveau de confiance concernant les résultats obtenus avec le modèle gaussien pour ce dernier site est très faible du fait de la forme de la section mesurée qui n’est pas orthogonale au panache et de la proximité de la route où sont réalisées nos mesures par rapport à l’énorme zone source du site. En effet, la difficulté de cette approche réside dans le faible niveau de connaissance des sites étudiés. Les ISDND ont généralement une superficie importante, particulièrement le site de Claye-Souilly, et il est souvent difficile à partir des images satellites de situer avec précision la position des zones exploitées ou en cours d’exploitation, et donc de déterminer la localisation des sources de méthane et de connaître leur taille.

## Conclusions

L’inversion des émissions de méthane à l’aide des concentrations mesurées autour de sites avec un modèle gaussien lors de campagnes mobiles est une méthode rapide et facile à mettre en place pour estimer les émissions de méthane provenant de sites industriels ou tout du moins en connaître l’ordre de grandeur. Cependant un certain nombre de paramètres des campagnes analysées ici ou inhérents à la méthode sont susceptibles d’induire de grandes incertitudes quant aux estimations des émissions. On peut notamment citer le faible niveau de connaissance des sites, l’hypothèse d’unicité de la source utilisée ici et sa localisation précise au sein du site, les incertitudes associées au transport atmosphérique et au choix de la classe de stabilité utilisée dans le modèle gaussien et les topographies plus complexes que l’on peut trouver dans ce genre de sites et qui ne sont pas prises en compte par le modèle gaussien.

Dans les campagnes utilisées ici, la proximité des sections de mesures aux sources, surtout lorsque celles-ci se répartissent sur une aire très importante comme à Claye-Souilly, ou le fait de baser les estimations sur un très faible nombre de sections de mesures (1 jour de mesure et 1 ou 2 traversées des panaches d’émission) rendent très difficile la représentation des concentrations mesurées avec un modèle gaussien. Tout cela génère des sources d’incertitudes sur les estimations. Ce type de modèle est plus adapté à la simulation d’un comportement moyen à une certaine distance de sources quasi ponctuelles. La comparaison des résultats obtenus à partir de ces brèves campagnes de mesures aux estimations moyennes annuelles fournies par les inventaires d’émission (pour des années qui ne correspondent pas à celles des campagnes) pourraient paraître inadaptée d’autant que l’inventaire indique que la variabilité des émissions d’une année à l’autre peut être très importante (ne serait-ce que du fait de la grande variabilité de la masse de déchets ajoutée d’une année sur l’autre, mais également du fait des variations des conditions



TABLE 4.2 – Estimations des émissions en méthane provenant de différentes ISDND en réalisant une inversion déterministe à l’aide du modèle gaussien et estimations rapportées dans le registre des émissions polluantes pour les années 2013 et 2014.

Sites	Campagnes	Estimations des émissions en méthane par l’inversion déterministe	Estimations des émissions en méthane tirées de l’IREP pour 2013 et 2014
<b>Fouju-Moisenay</b> 20 500 T/an 29 800 T/an	Mai 2014	0,5-0,8 T <sub>CH<sub>4</sub></sub> .j <sup>-1</sup>	1,6 T <sub>CH<sub>4</sub></sub> .j <sup>-1</sup> 1,4 T <sub>CH<sub>4</sub></sub> .j <sup>-1</sup>
<b>Attainville</b> 20 500 T/an 5 700 T/an	Novembre 2015	0,3-0,5 T <sub>CH<sub>4</sub></sub> .j <sup>-1</sup>	0,9 T <sub>CH<sub>4</sub></sub> .j <sup>-1</sup> 0,8 T <sub>CH<sub>4</sub></sub> .j <sup>-1</sup>
<b>Le Plessit Gassot</b> 865 000 T/an 908 500 T/an	Novembre 2015	9,4-16,9 T <sub>CH<sub>4</sub></sub> .j <sup>-1</sup>	13,0 T <sub>CH<sub>4</sub></sub> .j <sup>-1</sup> 13,8 T <sub>CH<sub>4</sub></sub> .j <sup>-1</sup>
<b>Claye-Souilly</b> 846 500 T/an 504 300 T/an	Novembre 2015	42,7-80,5 T <sub>CH<sub>4</sub></sub> .j <sup>-1</sup>	12,3 T <sub>CH<sub>4</sub></sub> .j <sup>-1</sup> 12,5 T <sub>CH<sub>4</sub></sub> .j <sup>-1</sup>
<b>Monthyon</b> 1 T/an 140 T/an	Novembre 2015	0,3-0,9 T <sub>CH<sub>4</sub></sub> .j <sup>-1</sup>	0,6 T <sub>CH<sub>4</sub></sub> .j <sup>-1</sup> 0,8 T <sub>CH<sub>4</sub></sub> .j <sup>-1</sup>

météorologiques et de celles du sol comme discuté dans la section 4.1.1). Pourtant, la cohérence générale des résultats obtenus semble appuyer l’hypothèse que la méthode d’inversion fournit un bon ordre de grandeur pour les émissions et semble, d’un autre côté, donner confiance en les ordres de grandeur donnés par les modèles relativement simples utilisés pour générer les rapports d’inventaires. En contrepartie, la précision attendue de la méthode de suivi atmosphérique devrait donc être plus élevée que la méthode employée habituellement pour apporter une information utile et améliorer les inventaires pour ce type de site. En particulier au Plessit Gassot et à Monthyon, les plages d’estimations de l’inversion en fonction de la paramétrisation du modèle gaussien (qui donnent une incertitude minimale sur l’estimation de 25 % typiquement à laquelle il faudrait ajouter toutes les autres sources d’incertitudes listées ci-dessus) recouvrent les valeurs données par l’inventaire sur 2013 et 2014. Le mode opératoire des campagnes CarboCount City et sa combinaison avec l’inversion déterministe devrait donc être réservée aux sites assez "simples" (source quasi-ponctuelle dans un environnement pas trop vallonné), en prenant garde à bien échantillonner le panache. Quand les écarts modèle/observations/inventaires restent grands, ces données permettent tout de même d’identifier les sites pour lesquels il faudrait mettre en œuvre des méthodes plus sophistiquées, telle que celle proposée dans cette thèse.

### 4.1.3 Utilisation de la méthode traceur à l’unité de stockage des déchets non dangereux de la Butte-Bellot

#### 4.1.3.1 Contexte et présentation du site

Plusieurs séries de mesures ont été effectuées au sein de l’installation de stockage des déchets non dangereux de la Butte-Bellot (longitude : 2,739128 °, latitude : 48,640426 °, altitude asl : 88 m) située en Île-de-France, à environ 35 km au sud-est de Paris. Ces mesures ont été réalisées dans le cadre du projet WASTE MITI<sup>2</sup> financé par la KIC-Climat ayant pour but de développer un service d’estimation des émissions de méthane pour ce type d’installations. Cette ISDND dirigée par SUEZ a commencé à être exploitée en 2005 et devrait être opérationnelle jusqu’en 2022. Elle est localisée dans une zone agricole à proximité de quelques habitations et autres sites industriels ainsi que d’une autre ISDND fermée et complètement couverte. Une vue aérienne de la zone est présentée sur la figure 4.4.

Les émissions fugitives de méthane de ce site rapportées en 2015 sont d’environ 1900 kg.j<sup>-1</sup>.

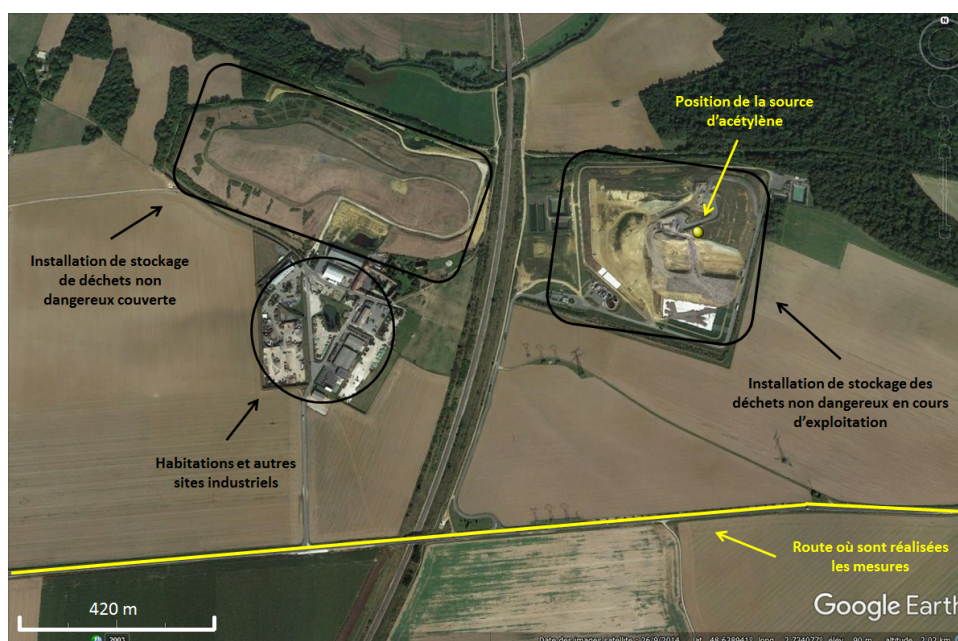


FIGURE 4.4 – Vue aérienne de l'installation de stockage des déchets non dangereux de la Butte-Bellot. Le point jaune indique la position de la source d'acétylène utilisée pour la méthode traceur.

Ces émissions ont été estimées en utilisant une méthode basée sur une doctrine de l'ADEME qui repose sur la quantité totale de biogaz collectée et valorisée ou brûlée, rapportée à la capacité de collecte liée à la couverture du massif de déchet. Les émissions fugitives de méthane de 2016 ont été estimées à l'aide du modèle SIMCET qui permet de déterminer la production théorique de biogaz en tenant compte de la quantité de déchets disponibles et de leur composition, ainsi que la capacité théorique de collecte et valorisation du biogaz. Les émissions théoriques, correspondant à la différence entre la quantité de biogaz produite et celle collectée et valorisée en théorie, sont estimées entre 3800 et 7600  $\text{kg}\cdot\text{j}^{-1}$  pour 2016.

#### 4.1.3.2 Mesures atmosphériques

Les différentes séries de mesures que nous avons réalisées au sein de l'ISDND de la Butte-Bellot avaient pour but d'une part de cartographier et d'identifier les principales sources de méthane au sein de ce site et d'autre part de quantifier ses émissions avant et après différentes mesures d'atténuation des émissions de méthane pour vérifier leur efficacité. Cette dernière campagne a été traitée en fin de thèse et de ce fait je me suis limité à l'utilisation de la méthode traceur classique pour estimer les émissions de méthane de ce site. Des mesures mobiles des isotopes du méthane ont également été réalisées durant ces campagnes. Elles ont permis de déterminer la signature isotopique du méthane présent dans le panache d'émission de l'ISDND à -66,6 ‰ et de confirmer son origine biogénique.

Durant les différentes séries de mesures réalisées au sein de l'ISDND de la Butte-Bellot, le vent venait du nord et du nord-est nous permettant de mesurer les concentrations au travers du panache d'émission au niveau des routes situées au sud du site. Un exemple de ces profils de concentrations est donné sur la figure 4.5. On peut voir sur ce graphique une forte augmentation des concentrations de méthane jusqu'à 3,4 ppm et d'acétylène jusqu'à 1,2 ppb que l'on peut associer aux émissions de l'ISDND en cours d'exploitation étant donné que la source de traceur y était localisée et que les pics sont colocalisés. La forme de ce pic de concentrations nous indique la présence de plusieurs sources au sein du site. Le profil de concentrations présente également une autre augmentation des concentrations de méthane par rapport à sa valeur de fond mais celle-ci n'est pas colocalisée avec le signal du traceur. Ce signal beaucoup plus faible (de l'ordre de 2,0-2,1 ppm) est associé à l'ISDND couverte qui émet donc elle aussi un peu de méthane.

Du fait que pour ce site nous avons utilisé uniquement la méthode traceur et que les deux panaches d'émission se recouvrent partiellement, nous allons utiliser les amplitudes maximales des traversées de

panaches de méthane et de traceur plutôt que l'intégration de l'augmentation de leurs concentrations pour le calcul du rapport  $p_m/p_t$  de la méthode traceur.

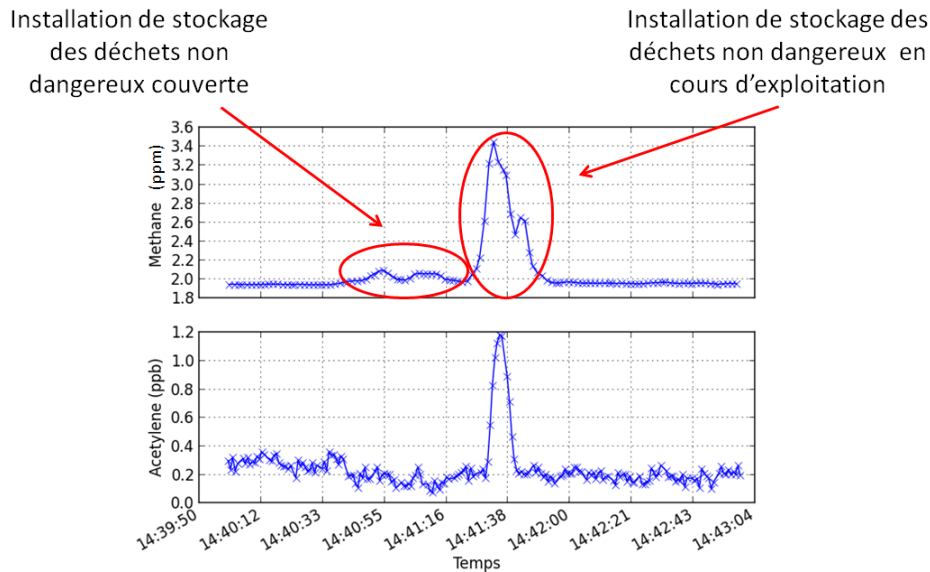


FIGURE 4.5 – Exemple de profil de concentrations mesuré au travers du panache d'émission provenant de l'installation de stockage des déchets non dangereux de la Butte-Bellot.

Nous avons réalisé trois séries de mesures avec la méthode traceur au sein de l'ISDND de la Butte-Bellot entre septembre et décembre. La première a eu lieu le 19.09.16, le seconde le 14.11.16 et enfin la dernière le 05.12.16. Entre chacune de ces séries de mesures, SUEZ a mis en place des mesures d'atténuation afin de réduire les émissions de méthane du site dans l'atmosphère. Dans un premier temps, entre le 19.09.16 et le 14.11.16, SUEZ a installé une extension du réseau de collecte du biogaz d'une cellule fermée située au nord-ouest du site et dans un second temps, entre le 14.11.16 et le 05.12.16, une géomembrane a été mise en place au niveau d'une cellule récemment fermée située à l'est du site.

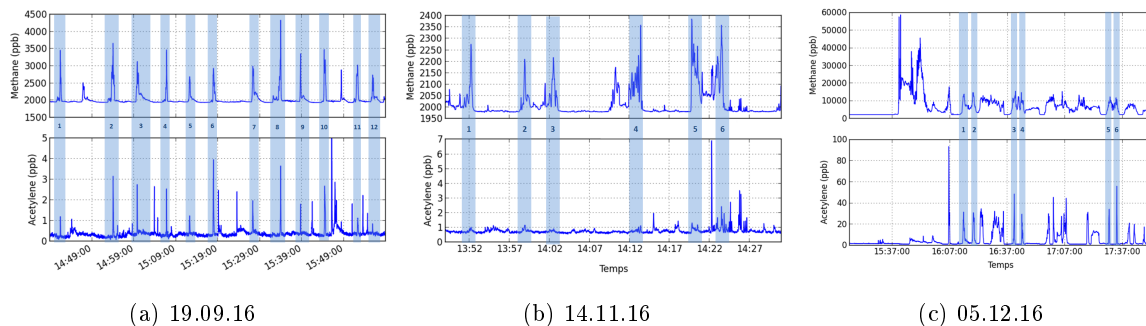


FIGURE 4.6 – Concentrations en méthane et en acétylène mesurées lors des différentes traversées du panache d'émission provenant de l'installation de stockage des déchets non dangereux de la Butte-Bellot pour les trois séries de mesures. Les traversées surlignées en bleu sont utilisées pour le calcul des émissions en méthane.

La figure 4.6 présente les trois séries de mesures des concentrations en méthane et en acétylène réalisées au niveau de l'ISDND de la Butte-Bellot. Les traversées utilisées pour estimer les émissions du site sont surlignées en bleu. Parmi les 14 traversées réalisées le 19.09.16, 12 profils de méthane étaient correctement colocalisés avec le signal du traceur et ont donc été utilisés pour estimer les émissions de l'ISDND en cours d'exploitation. Pour la série de mesures du 14.11.16, 6 des 7 traversées réalisées ont été sélectionnées tandis que pour les mesures du 05.12.16 nous avons dû être beaucoup plus sélectif du fait de la forme des profils de concentrations de méthane mesurés.

### 4.1.3.3 Estimations des émissions de méthane grâce à la méthode traceur

Les estimations des émissions de méthane obtenues avec la méthode traceur pour les trois séries de mesures sont présentées dans le tableau 4.3. Durant la série de mesures réalisées le 19.09.16, les diverses traversées du panache d'émission provenant de l'installation de stockage des déchets non dangereux de la Butte-Bellot nous ont permis de déterminer que ses émissions de méthane allaient de 3 314 à 7 823  $\text{kg.j}^{-1}$  avec une valeur moyenne de  $5\,813 \pm 380 \text{ kg.j}^{-1}$ . L'incertitude donnée correspond à l'erreur type sur l'estimation de la moyenne d'un échantillon de dimension finie (STD valeurs /  $\sqrt{n\text{valeurs}}$ ). Cette estimation est du même ordre de grandeur que celle donnée par le modèle utilisé par SUEZ pour l'année 2016 et significativement plus importante que celle donnée dans les rapports d'émission pour l'année 2015.

TABLE 4.3 – Estimations des émissions de méthane de l'installation de stockage des déchets non dangereux de la Butte-Bellot calculées grâce à la méthode traceur en utilisant les amplitudes maximales des concentrations de méthane et de traceur lors des traversées de leur panaches pour le calcul du rapport  $p_m/p_t$ . Le flux moyen est déterminé à partir des estimations calculées pour chacune des traversées.

Numéro du pic	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
<b>19.09.16 (série 1)</b>												
Estimation des émissions de méthane pour chaque traversée ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	5 533	7 823	6 925	4 375	5 177	3 314	5 278	6 688	5 697	4 528	6 920	7 497
Estimation des émissions de méthane moyenne $\pm$ les incertitudes totales ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	$5\,813 \pm 380$											
<b>14.11.16 (série 2)</b>												
Estimation des émissions de méthane pour chaque traversée ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	4 678	2 762	4 893	4 607	3 671	1 317						
Estimation des émissions de méthane moyenne $\pm$ les incertitudes totales ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	$3\,654 \pm 520$											
<b>05.12.16 (série 3)</b>												
Estimation des émissions de méthane pour chaque traversée ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	2 411	2 446	1 729	2 510	1 908	1 092						
Estimation des émissions de méthane moyenne $\pm$ les incertitudes totales ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	$2\,016 \pm 206$											

Les estimations des émissions de méthane obtenues grâce aux mesures du 14.11.16 nous permettent d'estimer les émissions moyennes du site à  $3\,654 \pm 520 \text{ kg.j}^{-1}$ . Cette estimation est plus faible que celle obtenue lors de la première série de mesures. Ces résultats tendent à confirmer l'efficacité des mesures d'atténuation adoptées sur la réduction des émissions de méthane du site. Les mesures réalisées le 05.12.16 nous permettent d'estimer les émissions moyennes de l'ISDND de la Butte-Bellot à  $2\,016 \pm 206 \text{ kg.j}^{-1}$ . D'après nos estimations, les différentes mesures d'atténuation auraient permis une réduction des émissions de 65 % entre les mois de septembre et de décembre, en négligeant d'autres facteurs pouvant affecter les émissions (saisonnalité, conditions météorologiques).

## Conclusions

Nos différentes séries de mesures ont permis d'estimer les émissions de l'installation de stockage des déchets non dangereux de la Butte-Bellot en cours d'exploitation durant plusieurs mois et ont permis de mettre en évidence l'efficacité des mesures d'atténuation mises en place pour réduire les émissions de méthane. Il faut toutefois être prudent lorsque l'on compare des estimations ponctuelles à des estimations moyennes annuelles et plus particulièrement lorsque ces estimations ne concernent pas les mêmes années étant donné la variabilité de la quantité de déchets stockée d'une année à l'autre. Il aurait également été intéressant d'utiliser l'inversion statistique paramétrée avec les données du gaz traceur pour estimer les émissions de ce site mais également de l'installation de stockage fermée et couverte située à proximité. En effet nos mesures ont permis de mettre en évidence des émissions résiduelles provenant de ce site qu'il pourrait être intéressant de mieux connaître.

#### 4.1.4 Inversion déterministe avec un modèle CFD pour estimer les émissions de l'ISDND d'Ipswich

##### 4.1.4.1 Contexte et présentation du site

Au cours de ma thèse, j'ai été amené à effectuer une mobilité de trois mois au sein de l'université de Manchester dans le cadre de mon financement par la KIC-Climat. J'ai travaillé sur les données récoltées lors d'une campagne de mesures réalisées dans une ISDND située au Royaume-Uni afin d'estimer ses émissions de méthane. Cette installation, dirigée par Viridor Waste Management Ltd., est située à Great Blakenham (longitude : 1,080763 °, latitude : 52,109842 °, altitude asl : 22 m) au nord d'Ipswich. Ce site, en exploitation depuis 1992, s'étend sur une surface totale de 330 000 m<sup>2</sup>. La partie en cours d'exploitation, représentée en rouge sur la figure 4.7, est appelée partie active de l'ISDND dans la suite de cette section. La campagne de mesures s'est déroulée pendant deux semaines au début du mois d'août 2014 pendant lesquelles les concentrations en méthane et en dioxyde de carbone ont été mesurées à certaines localisations fixes de l'installation de stockage des déchets non dangereux. Un FTIR Ecotech était installé au nord du site à l'endroit appelé Portakabin sur la figure 4.7 et des mesures supplémentaires étaient réalisées à la localisation Ridge avec un Ultraportable Greenhouse Gas Analyser (UGGA) développé par Los Gatos (San Jose, California, USA). Un chromatographe en phase gazeuse (GC Agilent) était installé à 700 mètres au sud-ouest de l'ISDND (Inghams Farm) et un analyseur CRDS Picarro à 300 mètres au nord-est (Chalk Hill Lane) afin de mesurer les concentrations de fond en méthane pour différentes conditions météorologiques.

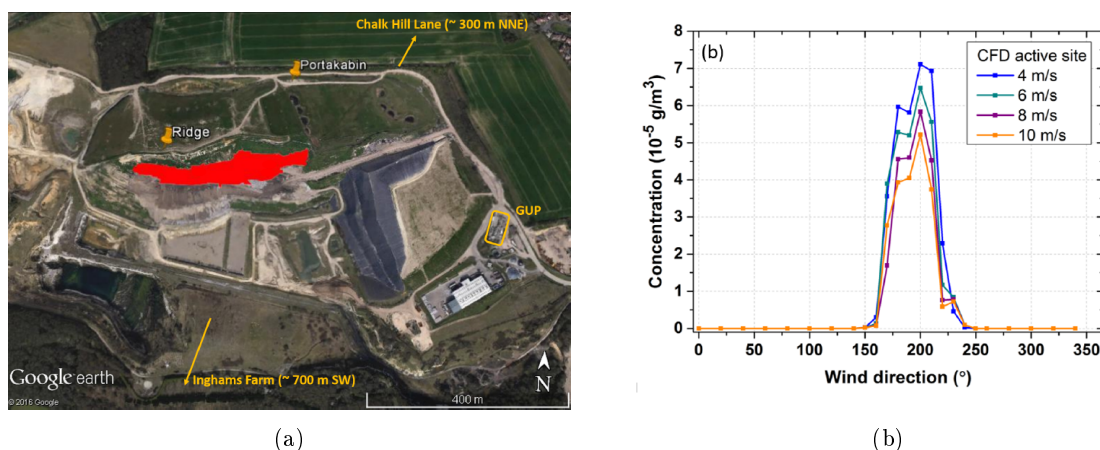


FIGURE 4.7 – (a) Vue aérienne de l'installation de stockage des déchets non dangereux d'Ipswich en Grande-Bretagne dont la partie active est représentée en rouge. (b) Concentrations simulées au niveau de la localisation Portakabin à l'aide du modèle CFD provenant de la partie active du site pour un débit unitaire de 1 g s<sup>-1</sup> en fonction de la direction du vent et pour différentes vitesses de vent.

Durant cette campagne, plusieurs méthodes d'estimation des émissions de méthane ont été déployées afin de comparer les résultats obtenus : Riddick et al. (2016) ont utilisé une inversion atmosphérique déterministe avec un modèle Lagrangien tandis que Mønster and Scheutz (2015) ont déployé la méthode traceur.

##### 4.1.4.2 Inversion déterministe avec un modèle CFD

Pour ce site, j'ai été amené à travailler avec les concentrations en méthane mesurées en continue au niveau de différentes localisations de l'ISDND alors que pour les autres campagnes j'utilise des données mobiles. De ce fait, la méthode d'exploitation des données de ce site est différente de celle utilisée précédemment. Les concentrations en méthane atmosphérique mesurées à la localisation "Portakabin" sont couplées à un modèle CFD afin d'estimer les émissions de l'installation. Ce type de modèle a été choisi plutôt qu'un modèle gaussien du fait de la complexité de la zone étudiée, en effet il a été démontré que les modèles CFD donnaient de meilleurs résultats pour des zones présentant une topographie complexe comme cela est le cas ici (Buccolieri and Sabatino, 2011). Pour que les concentrations mesurées au niveau du repère "Portakabin" soient influencées par la zone active de l'ISDND, la direction du vent doit

approximativement être comprise entre 120 et 220 °. De telles conditions de vent se sont produites les 9, 11 et 12 août en journée mais également dans la nuit du 11 au 12 août. L'ensemble de ces travaux, décrits dans un article en cours de révision rédigé par Sonderfeld et al., a été réalisé en partenariat avec l'université de Leicester qui ont fait tourner le modèle CFD et l'université de Manchester.

Les concentrations au niveau du point de prélèvement du FTIR (repère "Portakabin") sont simulées en forçant le modèle CFD avec un flux unitaire pour chacune de ces deux sources séparément, différentes vitesses de vent comprises entre 4 et 10 m.s<sup>-1</sup> et différentes directions de vent comprises entre 120 et 280 °. Ces concentrations modélisées sont alors comparées aux concentrations en méthane mesurées à la même localisation. Pour ce faire, les concentrations mesurées correspondant aux différentes plages de directions et de vitesses de vent utilisées dans le modèle sont moyennées et l'augmentation des concentrations de méthane du fait de la zone active de l'ISDND est déterminée en leur soustrayant la concentration de fond mesurée au niveau de la ferme d'Inghams. Le flux d'émission de la source étudiée est estimé avec un ajustement linéaire des concentrations simulées par la méthode des moindres carrés pour chaque jour et pour la nuit du 11 au 12 août.

Deux sources ont successivement été prises en compte. Dans un premier temps la zone active représentée en rouge sur la figure 4.7 a été utilisée pour simuler les concentrations en méthane au niveau de la localisation "Portakabin". Puis une zone additionnelle représentée en rose sur la figure 4.9 a été ajoutée du fait de la sous-estimation des concentrations modélisées par le modèle CFD sur la plage de vent comprise entre 220 et 240 ° par rapport aux concentrations mesurées.

#### 4.1.4.3 Estimations des émissions de méthane de l'ISDND d'Ipswich

##### Estimations des émissions de méthane de la partie active

La figure 4.7b présente les concentrations simulées en fonction de la direction du vent pour quatre vitesses de vent (4, 6, 8 et 10 m.s<sup>-1</sup>) pour un flux unitaire de 1 g.s<sup>-1</sup> émis par la zone active, représentée en rouge sur la figure 4.7a, d'une superficie de 17 823 m<sup>2</sup>. Les flux estimés sont regroupés dans le tableau 4.4 suite à l'inversion déterministe pour les différents jours de mesures et les différentes vitesses de vent. Les flux surfaciques estimés pour les différents jours sont compris entre 0,66 et 0,92 mg.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> et sont relativement proches les uns des autres, même pour des vitesses de vent différentes. On remarque que l'on trouve un flux plus important de 1,38 mg.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> durant la nuit. Ce phénomène est probablement lié à la stabilisation de l'atmosphère durant cette période qui limite la dispersion verticale et favorise ainsi une augmentation des concentrations de polluants en surface. Lorsque toutes les données sont utilisées en même temps, un flux surfacique moyen de 0,83 ± 0,04 mg.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> est estimé correspondant à un flux de 1 278 kg.j<sup>-1</sup>.

TABLE 4.4 – Flux de méthane estimés grâce au modèle CFD et à l'ajustement des concentrations simulées par la méthode des moindres carrés pour la zone active de l'installation de stockage des déchets non dangereux.

Date	Jour / Nuit	Vitesse du vent (m.s <sup>-1</sup> )	Flux estimés (mg.m <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> )
09/08	Jour	4	0,89 ± 0,22
		6	0,92 ± 0,11
		8	0,80
11/08	Jour	4	0,80 ± 0,05
		6	0,87 ± 0,10
		8	0,79 ± 0,15
		10	0,66 ± 0,01
12/08	Jour	6	0,68 ± 0,09
		8	0,80 ± 0,20
		10	0,90 ± 0,02
11-12/08	Nuit	4	1,37 ± 0,16
		6	1,39 ± 0,27

On remarque que les concentrations modélisées diminuent fortement lorsque la direction de vent est comprise entre 220 et 240 ° contrairement aux concentrations mesurées. Cela laisse à supposer qu'une

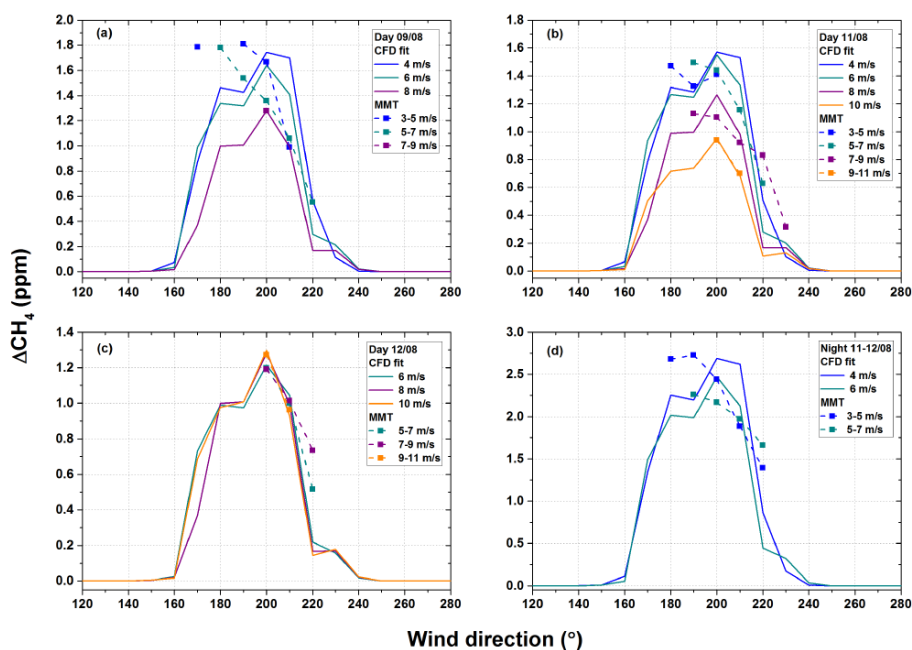


FIGURE 4.8 – Superposition des concentrations en méthane mesurées à la localisation portakabin en fonction de la direction et la vitesse du vent (en traits pointillés) avec les concentrations simulées par le modèle CFD provenant de la zone active après inversion (en traits continus).

source additionnelle doit être prise en compte par le modèle CFD.

### Estimations des émissions de méthane de la partie additionnelle

Durant la campagne, aucune émission provenant de la zone située entre les positions Ridge et Portakabin n'a été observée, cependant des émissions ont pu être détectées entre la zone active et la position Ridge mais aussi à l'ouest de la zone active. De ce fait une zone additionnelle d'une surface de 26 400 m<sup>2</sup>, représentée en rose sur la figure 4.9a, a été ajoutée au modèle CFD. La fonction de réponse du modèle de cette zone additionnelle pour un flux unitaire de 1 g.s<sup>-1</sup> est présentée sur la figure 4.9b.

La figure 4.10 présente la superposition des concentrations en méthane mesurées et simulées par le modèle CFD avec la zone additionnelle. On remarque que les concentrations simulées pour une direction de vent de 220 ° sont mieux représentées par le modèle avec la zone additionnelle. Les flux estimés pour les différentes vitesses de vent suivant les jours sont regroupés dans le tableau 4.5, les résultats obtenus pour les faibles vitesses de vent (4 m.s<sup>-1</sup>) ne donnent pas de résultats réalistes et ne sont donc pas pris en compte. En utilisant toutes les données pour réaliser l'ajustement linéaire par la méthode des moindres carrés, on trouve un flux de  $0,71 \pm 0,05$  mg.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> pour la zone active et de  $0,32 \pm 0,08$  mg.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> pour la zone additionnelle, soit un flux total de 1 823 kg.j<sup>-1</sup>.

Mønster and Scheutz (2015) ont estimé que les émissions de l'ensemble du site étaient comprises entre 5 208 et 9 792 kg.j<sup>-1</sup> avec la méthode traceur tandis qu'avec la méthode d'inversion atmosphérique avec un modèle Lagrangien de Riddick et al. (2016), on obtient une estimation de  $4 288 \pm 1 801$  kg.j<sup>-1</sup>. Le modèle utilisé par l'exploitant basé sur la quantité et la composition des déchets stockés donne quant à lui une estimation des émissions moyennes annuelles de 6 110 kg.j<sup>-1</sup>. Toutes ces estimations sont bien supérieures à celle trouvée avec notre méthode mais il est à noter qu'elles fournissent une estimation des émissions de l'ensemble du site alors que nous nous sommes focalisés sur les émissions de la partie active de l'ISDND. La définition de la zone étudiée est donc un paramètre crucial du modèle CFD qu'il est important de définir soigneusement. Il conviendrait d'étendre la zone modélisée pour pouvoir comparer ces chiffres de façon plus appropriée.



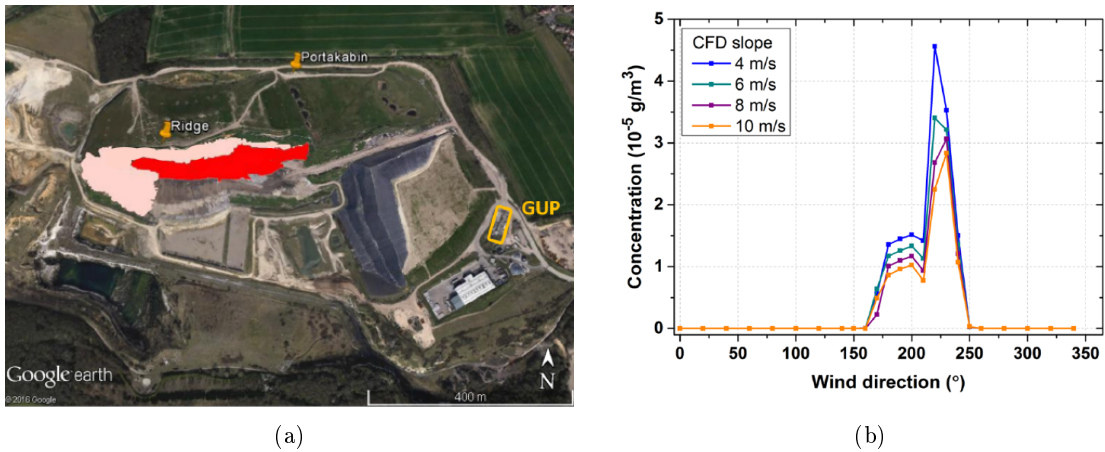


FIGURE 4.9 – (a) Vue aérienne de l'installation de stockage des déchets non dangereux d'Ipswich en Grande-Bretagne avec une zone d'émission supplémentaire indiquée en rose située entre la partie active, représentée en rouge, et le point de mesures Ridge. (b) Concentrations simulées au niveau de la localisation Portakabin à l'aide du modèle CFD provenant de la zone additionnelle uniquement pour un débit unitaire de  $1 \text{ g}\cdot\text{s}^{-1}$  en fonction de la direction du vent et pour différentes vitesses de vent.

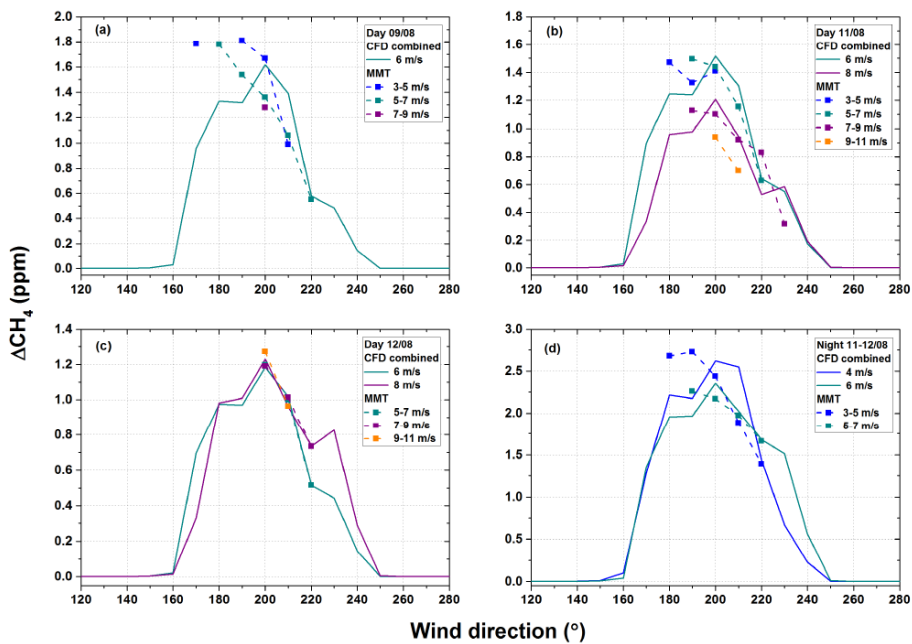


FIGURE 4.10 – Superposition des concentrations en méthane mesurées à la localisation portakabin en fonction de la direction et la vitesse du vent (en traits pointillés) avec les concentrations simulées par le modèle CFD provenant de la zone active et de la zone additionnelle du site après inversion (en traits continus).

## 4.2 Estimation des émissions de méthane provenant de l'épuration des eaux usées

### 4.2.1 Aperçu des connaissances générales sur les procédés d'épuration des eaux usées et émissions de méthane qui leur sont associées

Le traitement des eaux usées est réalisé en plusieurs étapes présentées sur la figure 4.11. Comme pour les ISDND, le méthane émis lors de ce traitement est d'origine biogénique et provient de la dégradation



TABLE 4.5 – Flux de méthane estimés grâce au modèle CFD et à l’ajustement des concentrations simulées par la méthode des moindres carrés pour la zone active et la zone additionnelle.

Date	Jour / Nuit	Vitesse du vent ( $\text{m.s}^{-1}$ )	Flux estimé de la zone active ( $\text{mg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ )	Flux estimé de la zone additionnelle ( $\text{mg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ )
09/08	Jour	6	$0,84 \pm 0,16$	$0,22 \pm 0,30$
11/08	Jour	6	$0,76 \pm 0,10$	$0,29 \pm 0,17$
		8	$0,65 \pm 0,13$	$0,36 \pm 0,17$
12/08	Jour	6	$0,59 \pm 0,01$	$0,23 \pm 0,02$
		8	$0,60 \pm 0,04$	$0,56 \pm 0,06$
11-12/08	Nuit	4	$1,23 \pm 0,21$	$0,36 \pm 0,35$
		6	$1,03 \pm 0,12$	$0,97 \pm 0,19$

de la matière organique présente dans ces effluents dans des conditions anaérobies. L’une des premières études visant à estimer les émissions de méthane provenant des stations d’épuration à partir de données atmosphériques a été réalisée par Czepiel et al. (1993). Ils ont travaillé sur une petite station d’épuration aux États-Unis traitant les eaux générées par environ 12 500 équivalent-habitants (EH) à l’aide de chambre à flux. Par la suite, d’autres études se sont intéressées aux émissions des stations d’épuration telles que Wang et al. (2011) qui ont étudié une station d’épuration plus importante (1 500 000 EH) en Chine et Daelman et al. (2012) qui se sont intéressés à des unités de traitement de taille intermédiaire (360 000 EH) disposant d’une unité de méthanisation au Pays-Bas avec la méthode des chambres à flux. Yoshida et al. (2014) et Yver Kwok et al. (2015) ont utilisé la méthode traceur pour estimer les émissions provenant de ce type d’installation au Danemark et en France respectivement.

En principe, le méthane peut également être produit et émis en amont des stations d’épuration, lors de l’acheminement des eaux usées au sein du réseau de collecte (Guisasola et al., 2008). En effet, avant d’arriver aux stations de traitement, les eaux usées sont collectées via un réseau d’assainissement dans lequel le transport se fait généralement par gravité et les eaux usées se retrouvent alors dans des conditions favorables à la production de méthane. Une grande partie du méthane produit dans le réseau de collecte n’est pas directement émis dans l’atmosphère mais reste dissous dans les eaux usées jusqu’à son arrivée au sein de la station d’épuration où il est dégazé au niveau du poste de relevage et pendant les premières étapes du traitement. Les quantités de méthane produit dans ces conditions restent très mal connues à l’heure actuelle. Selon le manuel pour l’inventaire des gaz à effet de serre du GIEC, les émissions de méthane ayant lieu au niveau des réseaux d’assainissement sont négligeables et Wang et al. (2011) ont estimé que les émissions de méthane au niveau du poste de relevage étaient comprises entre  $0,19$  et  $0,31 \text{ kg.j}^{-1}$  pour leur station d’épuration.

La première étape du traitement des eaux usées au sein des stations d’épuration consiste en un pré-traitement visant à éliminer tout ce qui pourrait gêner les traitements ultérieurs. Ce pré-traitement est généralement composé de plusieurs étapes : le dégrillage, le dessablage et le dégraissage. Le dégrillage sert à retirer de l’effluent les plus gros déchets susceptibles d’obstruer les canalisations de l’installation de traitement. Pour cela, les eaux usées passent à travers une ou plusieurs grilles dont les mailles sont de plus en plus petites et les déchets sont retirés de façon mécanique. Le dessablage a quant à lui pour but d’éliminer par décantation les graviers, le sable et les particules minérales qui peuvent se déposer plus loin dans les canalisations mais aussi provoquer une usure des éléments mécaniques comme les pompes. Le dégraissage consiste à injecter de fines bulles d’air au sein de l’effluent afin de faire remonter plus rapidement les graisses en surface. Ce processus est important afin d’éviter les problèmes d’encrassement des ouvrages. Le dessablage et le dégraissage sont souvent réalisés au sein d’un même ouvrage permettant à la fois la décantation des sables et la remontée en surface des graisses. Les émissions de méthane liées à cette étape de pré-traitement ont été estimées à  $0,16 \text{ kg.j}^{-1}$  dans l’étude de Czepiel et al. (1993) et entre  $2,16$  et  $6,60 \text{ kg.j}^{-1}$  dans l’étude de Wang et al. (2011). Cette différence entre les estimations obtenues dans chacune des deux études vient en partie de la quantité d’effluent traité.

Le pré-traitement est généralement suivi d’un traitement physico-chimique également appelé traitement primaire qui permet d’éliminer la matière organique en suspension présente dans les eaux à épurer en la faisant coaguler et floculer grâce à l’ajout de réactifs chimiques. L’ajout de ces agents induit l’agglomération des particules en floccs qui sédimentent plus rapidement. Ce procédé est réalisé dans des bassins de décantation dont la taille dépend du volume d’eau à traiter, le temps de séjour des effluents

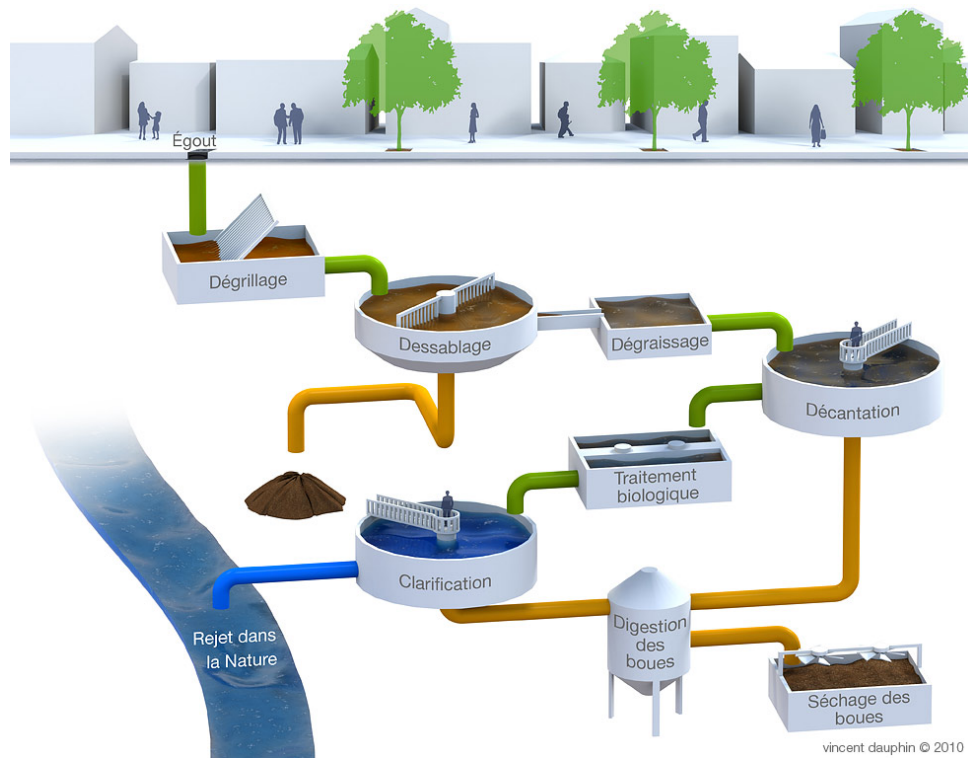


FIGURE 4.11 – Illustration des différentes étapes intervenant lors de l'épuration des eaux usées.

dans ces bassins dépend de la quantité de matière à éliminer. Cette étape peut éliminer jusqu'à 90 % des matières en suspension. Les boues formées au cours de cette étape du traitement sont appelées boues primaires et sont récupérées par raclage du fond des bassins. Ce procédé tend à disparaître en France avec la généralisation du traitement secondaire à boues activées qui comporte déjà une étape de décantation. Czepiel et al. (1993) ont estimé les émissions de méthane associées à cette étape du traitement à  $0,25 \text{ kg.j}^{-1}$ .

Les eaux usées subissent ensuite un traitement secondaire dans lequel elles sont soumises à un dispositif d'aération qui permet à des micro-organismes placés dans ces bassins de se développer afin de dégrader les matières organiques dissoutes. Une fois traité, l'effluent est envoyé dans des bassins de clarification afin de séparer l'eau épurée des boues de traitement par décantation. Ces boues dites secondaires sont pour une part évacuées pour traitement et pour l'autre part réinjectées dans le bassin de traitement d'aération afin de maintenir une quantité suffisante de micro-organismes pour leur bon fonctionnement. L'eau épurée est quant à elle renvoyée dans le milieu naturel. Les émissions de méthane associées à cette étape du traitement ont été estimées dans les études de Czepiel et al. (1993) et Yver Kwok et al. (2015) à  $0,60$  et  $1,11 \pm 0,03 \text{ kg.j}^{-1}$  respectivement. Le méthane émis au niveau des bassins d'aération correspond probablement à du méthane formé durant les étapes de traitement précédentes, dans des conditions anaérobies survenant dans les bassins de clarification notamment, qui est dégazé du fait des bulles de l'aération. Les émissions des bassins de clarification ont quant à elles été estimées à  $0,02 \pm 0,01 \text{ kg.j}^{-1}$  par Yver Kwok et al. (2015).

Le rejet des eaux traitées dans les milieux particulièrement sensibles nécessite d'effectuer des traitements complémentaires, également appelés traitements tertiaires, afin d'éliminer l'azote et le phosphore des effluents et ainsi de rejeter une eau de meilleure qualité. Ce traitement consiste généralement en une série de réactions d'oxydations réalisées dans des conditions anaérobies puis une série de réactions de réductions dans des conditions aérobies. Ces conditions sont très favorables aux émissions de méthane dans l'atmosphère puisque le méthane produit lors de la première étape dans les conditions anaérobies est ensuite dégazé grâce à l'aération de la seconde étape. Wang et al. (2011) ont estimé les émissions de méthane de ce type d'installation entre  $14,31$  et  $25,83 \text{ kg.j}^{-1}$  pour la partie anaérobie et entre  $10,52$  et  $25,83 \text{ kg.j}^{-1}$  pour la partie aérobie.

Les boues formées lors de l'épuration des eaux usées sont traitées afin d'en réduire le volume et de les

transformer en un produit valorisable. Ces boues sont dans un premier temps placées dans des bassins d'épaississement afin de réduire leur teneur en eau. Puis elles sont séchées de façon plus poussée puis détruites par incinération ou digérées et valorisées en énergie via la production de biogaz. Ces différents traitements peuvent être réalisés sur place, au sein de la station d'épuration, ou délocalisés au sein d'unités spécialisées dans le traitement et la valorisation des boues. (Daelman et al., 2012) ont montré que les boues d'épuration et leur traitement étaient l'une des principales sources de méthane d'une station d'épuration. Les émissions associées aux bassins épaisseurs ont été estimées entre 3,10 et 5,48 kg.j<sup>-1</sup> par Wang et al. (2011) et celles liées à leur stockage ont été estimées à 0,17 kg.j<sup>-1</sup> par Czepiel et al. (1993). De même, les stations d'épuration équipées d'unités de méthanisation sont susceptibles d'avoir des émissions de méthane supplémentaires dues à des fuites du système (Liebetrau et al., 2010).

La quantité de méthane produite durant les différentes étapes du traitement est dépendante d'un certain nombre de facteurs tels que la température (une augmentation des températures entraîne un accroissement de la production de méthane), de la composition des effluents à traiter et des procédés de traitement employés. Les émissions de méthane doivent donc forcément varier d'un site à l'autre et les estimations obtenues pour un nombre limité de sites (voir pour un site unique) ne peuvent être pris comme un facteur d'émission moyen représentatif des stations d'épuration dans le monde ou même simplement des pays concernés. Le principal facteur influençant la production de méthane par les installations de traitement des eaux usées reste tout de même la quantité de matière organique dégradable que les micro-organismes vont pouvoir dégrader. Ce paramètre est quantifié par la demande biochimique en oxygène (DBO) ou par la demande chimique en oxygène (DCO). La DBO représente la quantité d'oxygène consommée à 20 °C dans l'obscurité pendant un temps de référence pour assurer l'oxydation des matières organiques présentes dans l'eau par voie biologique, ce temps d'incubation est conventionnellement de 5 jours et donne la notation DBO<sub>5</sub>. La DCO représente quant à elle la quantité d'oxygène nécessaire pour l'oxydation des matières organiques présentes dans l'eau par des oxydants chimiques forts.

Des estimations des émissions de méthane peuvent être obtenues à partir de ces paramètres en les multipliant par un facteur d'émission caractéristique des effluents à traiter. Dans ses travaux de 2010, la Global Water Research Coalition (GWRC) recommande d'utiliser un ratio de la quantité de méthane émise sur la quantité de DCO éliminée égale à 0,0002 concernant le traitement des eaux usées. En ce qui concerne les émissions fugitives associées aux fuites de biogaz au niveau des digesteurs et des circuits de biogaz, l'ADEME recommande une valeur de référence de 0,005 m<sup>3</sup> de fuite pour 1 m<sup>3</sup> de biogaz produit, soit 0,5 % du volume produit. Il ne faut alors pas oublier de pondérer le volume de biogaz par le pourcentage de méthane le composant.

## 4.2.2 Réseau d'assainissement et stations d'épuration de la région de Valence

Dans le cadre du projet BridGES financé par la KIC-Climat, une campagne de mesures de deux semaines a été réalisée au mois d'avril 2015 dans la région de Valence afin d'estimer les émissions de méthane de deux stations d'épuration : les stations de Valence et celle de Romans-sur-Isère. Pour chacun des deux sites, nous avons émis un gaz traceur les jours où les conditions météorologiques étaient favorables et mis en œuvre l'inversion statistique paramétrée avec les données du gaz traceur. Nous avons également essayé d'estimer les émissions de méthane provenant d'un bassin de stockage des eaux usées du réseau d'assainissement de Romans-sur-Isère. Cette installation est un bassin fermé ne disposant que d'une évacuation d'air. Les émissions n'ont donc pas été estimées avec des mesures mobiles mais directement en multipliant les concentrations en méthane mesurées à l'intérieur de cette canalisation d'aspiration par son débit d'air.

### 4.2.2.1 Estimation des émissions de méthane provenant du bassin de stockage du réseau d'assainissement de Romans-sur-Isère

#### 4.2.2.1.1 Description du site

Un bassin de stockage, également appelé bassin tampon, est un bassin fermé permettant de stocker l'ensemble des effluents domestiques et des eaux pluviales dans l'optique d'un traitement futur sur la station d'épuration. Il permet de lisser les débits d'eaux usées arrivant sur le site et éviter les débordements du réseau d'assainissement. Les conditions dans ce type de bassins sont propices à la formation de méthane puisque les eaux usées se retrouvent en milieu anaérobie. L'estimation des émissions de méthane de cette

installation a été réalisée en mesurant de façon continue durant plusieurs jours les concentrations en méthane au niveau de la canalisation d'aspiration de l'air du bassin avant son traitement contre les odeurs et son rejet dans l'atmosphère. En multipliant ces concentrations mesurées par le débit d'air à l'intérieur de la canalisation considéré comme constant durant nos mesures et estimé à  $0,25 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ , il est possible de déterminer une estimation des émissions de méthane du bassin.

#### 4.2.2.1.2 Estimation des émissions de méthane

Les concentrations de méthane au niveau de la canalisation d'aspiration de l'air du bassin de stockage ont été mesurées entre le 3 et le 7 avril 2014 et sont présentées sur la figure 4.12. Sur cette série temporelle, on peut observer une variabilité des concentrations de méthane ainsi qu'un cycle journalier avec une augmentation de ces concentrations de 8 à 22 heures puis une diminution de ces concentrations durant la nuit. Pour ce type d'installation, il faut donc être prudent quant à l'extrapolation d'estimations obtenues à partir de données recueillies durant une partie de la journée uniquement ou sur la confrontation d'estimations obtenues pour des moments différents de la journée. Ce cycle est à mettre en parallèle à celui des débits d'eaux usées à l'entrée des stations d'épuration qui sont très faibles de 0 à 7 heures du matin puis une augmentation progressive jusqu'à atteindre un plateau à partir de 11 heures et ce jusqu'à la fin de la journée. On peut donc imaginer qu'à partir de 11 heures, l'excédent d'eaux usées à traiter est envoyé dans le bassin de stockage entraînant un brassage des eaux stockées, favorisant ainsi le dégazage du méthane. Lors des deux premiers jours, on peut également observer une subite augmentation des concentrations de méthane en fin de journée juste avant d'amorcer la diminution des concentrations. Durant les quatre jours de mesures, les concentrations de méthane étaient comprises entre 12 et 40 ppm nous permettant d'estimer un flux d'émission compris entre  $0,3$  et  $1,2 \text{ kg} \cdot \text{j}^{-1}$  avec une concentration moyenne de 18 ppm donnant un flux moyen de  $0,5 \text{ kg} \cdot \text{j}^{-1}$ . Les émissions de méthane de cette installation sont donc très faibles en comparaison de celles que l'on peut trouver au niveau des stations d'épuration. D'autres compartiments du réseau d'assainissement, tels que les postes de relevage, sont susceptibles d'émettre eux aussi du méthane dans des proportions inférieures ou égales. Il semble toutefois raisonnable de négliger les émissions de méthane associées aux réseaux d'assainissement comme cela est recommandé dans les inventaires d'émission.

#### 4.2.2.2 Estimations des émissions de méthane de la station d'épuration de Romans-sur-Isère

##### 4.2.2.2.1 Description du site

La station d'épuration de Romans-sur-Isère (longitude :  $5,017984^\circ$ , latitude :  $45,032585^\circ$ , altitude : 142 m asl) est gérée par Veolia Eau et traite les eaux d'environ 100 000 équivalent-habitants. Les volumes journaliers traités sont de  $11\,490 \text{ m}^3 \cdot \text{j}^{-1}$  par temps sec (débit de pointe :  $1\,000 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ ) et de  $14\,990 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$  par temps de pluie. La station est composée d'un bâtiment de pré-traitement comprenant une étape de dessablage-déshuilage et un décanteur primaire, de deux bassins d'aération, d'un dégazeur et de deux bassins de clarification comme illustré sur la figure 4.13. Les boues collectées sont séchées et incinérées sur place et l'eau épurée est rejetée dans l'Isère.

##### 4.2.2.2.2 Mesures atmosphériques

La méthode traceur a été déployée le 02.04.15 au sein de la station d'épuration de Romans-sur-Isère. Nous avons placé la source d'acétylène entre les bassins d'épuration et l'incinérateur (voir la figure 4.13) et réglé son flux d'émission à  $9,5 \text{ kg} \cdot \text{j}^{-1}$ . Le vent dominant venait du nord nous permettant de mesurer les concentrations au travers du panache d'émission du site sur une route située à environ 300 mètres au sud. Cette route présente l'inconvénient de ne pas être rectiligne et de présenter deux virages qui vont probablement donner aux profils de concentrations modélisés avec le modèle gaussien une forme un peu différente de celle obtenue habituellement.

Les concentrations en acétylène et en méthane mesurées lors des traversées successives du panache d'émission provenant de la station d'épuration de Romans-sur-Isère sont présentées sur la figure 4.14. Les signaux d'acétylène mesurés ont une amplitude maximale comprise entre 3 et 25 ppb et sont facilement

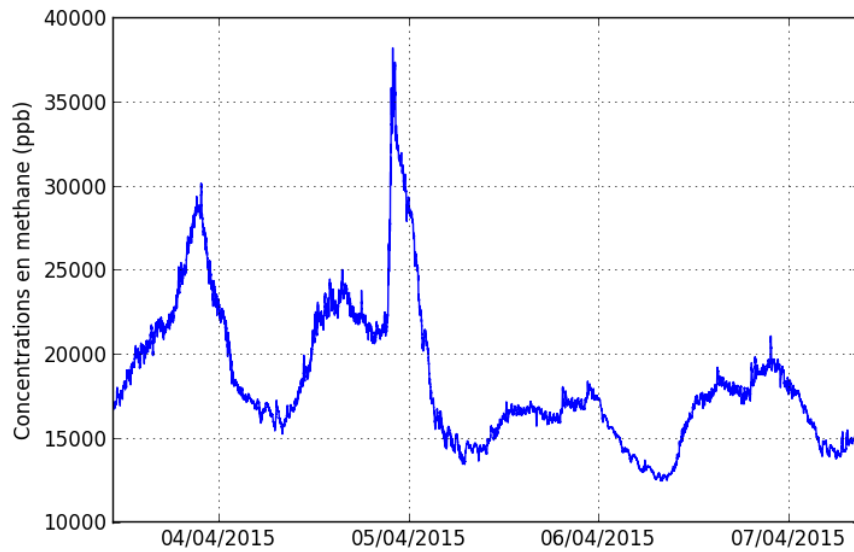


FIGURE 4.12 – Concentrations en méthane mesurées au niveau de la canalisation d’aspiration de l’air du bassin de stockage du réseau d’assainissement de Romans-sur-Isère pour un débit considéré comme constant durant nos mesures et estimé à  $0,25 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ .

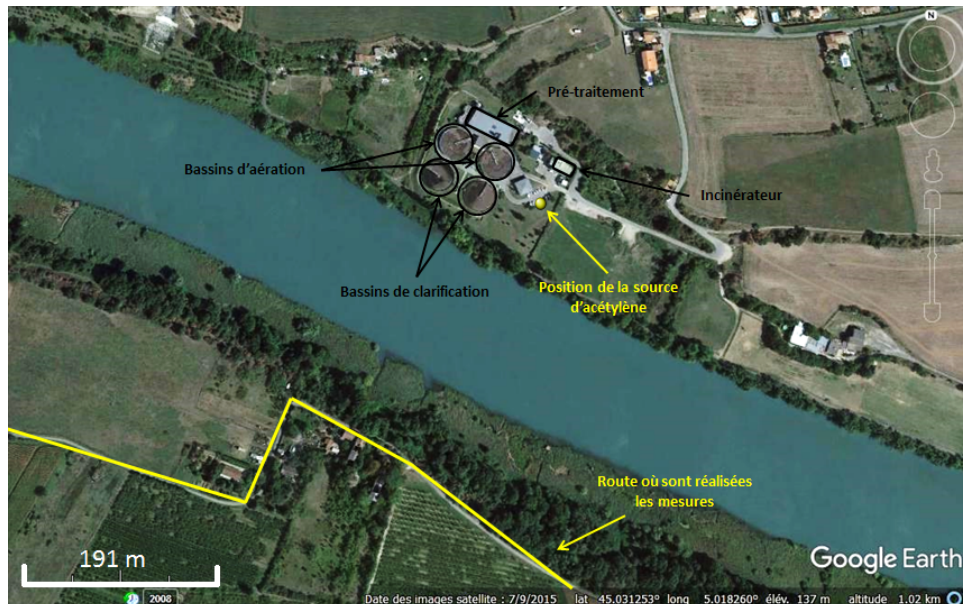


FIGURE 4.13 – Vue aérienne de la station d’épuration de Romans-sur-Isère sur laquelle sont représentées les différentes étapes du traitement des eaux usées.

discernables de leur concentration de fond contrairement aux signaux de méthane dont l’amplitude maximale est d’environ 10 ppb les rendant plus difficilement discernables du bruit de l’instrument et de la concentration de fond de méthane. Les traversées de panaches d’acétylène et de méthane sont intégrées pour le calcul du rapport  $p_m/p_t$ . Sur les seize traversées de panache réalisées, nous en avons utilisé treize pour estimer les émissions de la station d’épuration avec la méthode traceur classique (surlignées en bleu

sur la figure 4.14). Trois traversées n'ont pas été retenues du fait de la forme du signal d'acétylène ou de l'absence de signal de méthane.

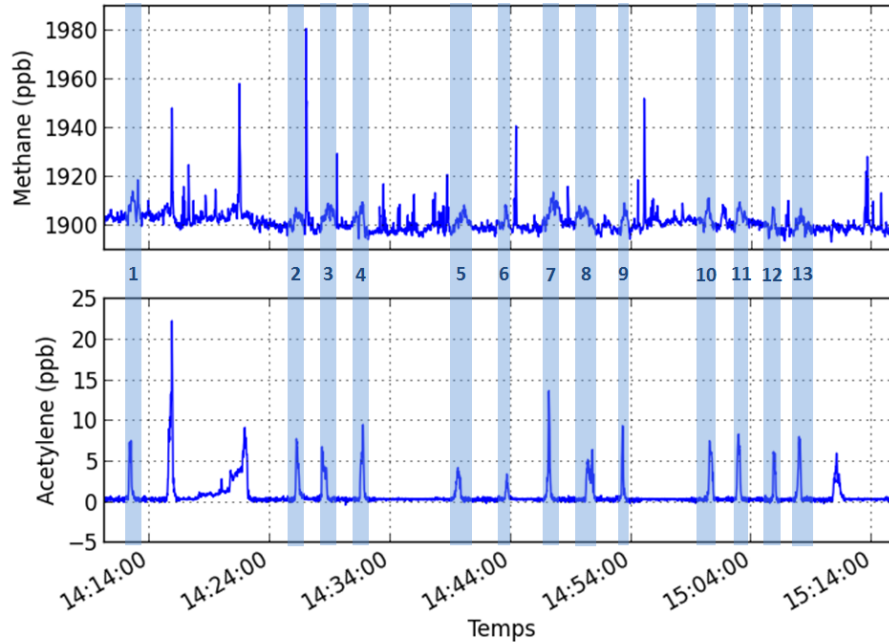


FIGURE 4.14 – Concentrations en méthane et en acétylène mesurées lors des différentes traversées du panache d'émission provenant de la station d'épuration de Romans-sur-Isère. Les zones colorées en bleu correspondent aux traversées utilisées pour les estimations des émissions de méthane avec la méthode traceur.

#### 4.2.2.2.3 Estimation des émissions de méthane avec la méthode traceur

Les estimations des émissions de méthane de la station d'épuration de Romans-sur-Isère obtenues avec la méthode traceur pour chacune des traversées du panache d'émission réalisées le 02.04.15 sont présentées dans la table 4.6. Ces estimations sont comprises entre 7 et 20  $\text{kg.j}^{-1}$  avec une valeur moyenne de  $10 \pm 2$  (1 ; 2)  $\text{kg.j}^{-1}$ . L'incertitude donnée correspond à la racine carrée de la somme des carrés de l'écart-type des différentes estimations divisé par la racine carré du nombre de traversées et du biais associé à la mauvaise colocalisation du traceur déterminé à l'aide du modèle gaussien.

TABLE 4.6 – Estimations des émissions de méthane de la station d'épuration de Romans-sur-Isère calculées grâce à la méthode traceur. Le flux moyen est déterminé à partir des estimations calculées pour chacune des 13 traversées. Les incertitudes sont présentées de a façon suivante : incertitude totale (erreur type sur l'estimation de la moyenne avec un échantillon de dimension finie calculée en divisant l'écart-type des différentes estimations par la racine carrée du nombre de traversées ; biais associé à une mauvaise colocalisation du traceur).

Numéro du pic	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
Estimation des émissions de méthane pour chaque traversée ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	10	8	10	8	16	20	7	11	8	9	8	12	8
Estimation des émissions de méthane moyenne $\pm$ les incertitudes totales ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	$10 \pm 2$ (1 ; 2)												

#### 4.2.2.2.4 Estimation des émissions de méthane avec l'inversion statistique paramétrées avec les données du gaz traceur

##### Optimisation du modèle gaussien à l'aide des concentrations en traceur

La comparaison des concentrations en traceur mesurées et modélisées avec le modèle gaussien permet à la fois de prendre en compte le décalage spatial induit par les mesures mobiles et la sélection de la classe la plus adaptée pour représenter la stabilité de l'atmosphère dans le modèle gaussien pour chaque traversée. Les écarts relatifs entre l'intégration de l'augmentation des concentrations mesurées au travers du panache d'émission et celle modélisée avec les classes de stabilité A, B, C et D pour les différentes traversées sont présentés dans le tableau 4.7. La forme des profils de concentrations modélisés pour les traversées 3 et 8 ne correspond pas visuellement aux profils mesurés. Ces traversées ne sont donc pas été utilisées pour l'inversion. Les classes de stabilité B, C et D permettent de représenter la stabilité de l'atmosphère durant les différentes traversées du panache d'émission provenant de la station d'épuration de Romans-sur-Isère.

TABLE 4.7 – Classes de stabilité sélectionnées pour chaque traversée du panache d'émission provenant de la station d'épuration de Romans-sur-Isère et les écarts relatifs entre les aires sous les signaux mesurés et modélisés avec le modèle gaussien pour les classes de stabilité A, B, C et D.

Traversée	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
Écart relatif modèle observation avec la classe de stabilité A (%)	66	64	-	66	43	19	65	-	64	69	68	62	65
Écart relatif modèle observation avec la classe de stabilité B (%)	47	44	-	50	5	13	50	-	43	54	53	38	48
Écart relatif modèle observation avec la classe de stabilité C (%)	17	15	-	6	23	58	30	-	15	5	6	6	10
Écart relatif modèle observation avec la classe de stabilité D (%)	23	31	-	29	52	134	5	-	34	33	31	49	27
Classe de stabilité sélectionnée	C	C	-	C	B	B	D	-	C	C	C	C	C

##### Configuration de l'inversion statistique

Pour cette inversion statistique, le vecteur de contrôle  $f$  est constitué des flux d'émission des six sources du site : le bâtiment de pré-traitement, les deux bassins d'aération, les deux bassins de clarification et l'incinérateur. Les émissions de méthane sont supposées constantes durant la série de mesures et uniformément réparties sur la surface de ces six sources. Les profils de concentrations mesurés lors de chaque traversée sont divisés en six parties de même distance et l'aire entre l'augmentation des concentrations du fait de la traversée du panache d'émission et la concentration de fond pour chacun de ces segments est intégré afin de déterminer le vecteur d'observation  $p$ .

En ce qui concerne la matrice de transport  $H$ , les fonctions de réponse des différentes sources sont modélisées en forçant le modèle gaussien avec un flux unitaire, les classes de stabilité sélectionnées précédemment et les conditions de vent mesurées durant la campagne avec notre station météorologique. L'exemple des fonctions de réponse obtenues pour la traversée 11 est présenté sur la figure 4.15 qui couvrent l'ensemble du panache mesuré mais présentent toutefois une forme particulière liée à la présence de virages au niveau de la route où sont réalisées les mesures. Cette forme particulière semble toutefois être en accord avec les profils de concentrations mesurés excepté pour les traversées 2, 5 et 13 qui ne seront donc pas utilisées pour l'inversion statistique. On remarque également que les fonctions de réponse des bassins d'aération 1 et de clarification 2 se chevauchent fortement, tout comme les bassins d'aération 2 et de clarification 1. Ces sources devraient donc être difficiles à séparer par le système contrairement aux émissions associées à l'incinérateur qui se trouve relativement isolé des autres.

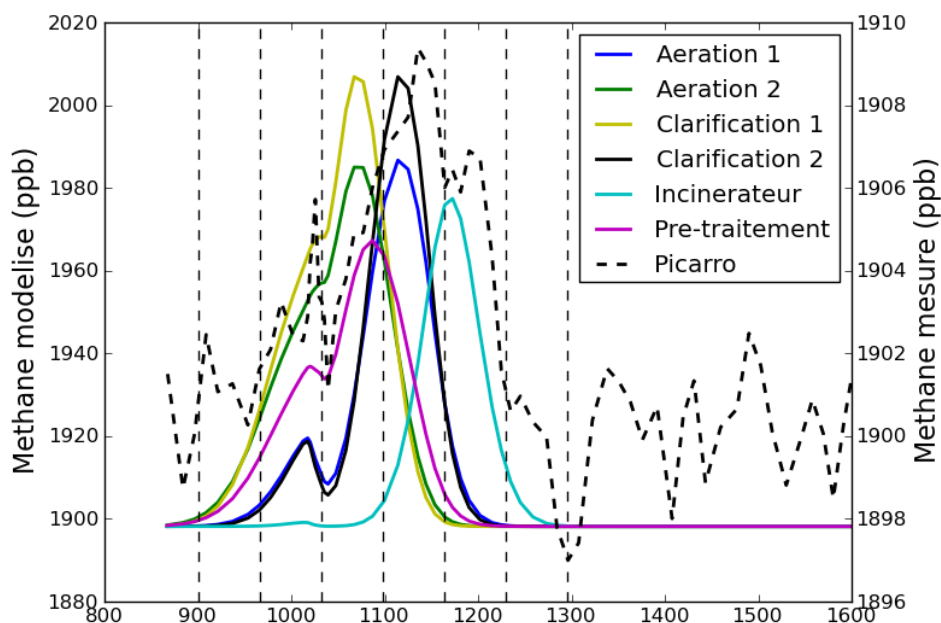


FIGURE 4.15 – Fonctions de réponse des différentes sources de méthane de la station d'épuration de Romans-sur-Isère simulées grâce au modèle gaussien avec les conditions météorologiques de la traversée 11. Les courbes en traits continus correspondent aux concentrations modélisées pour ces deux sources avec un flux unitaire. La courbe en pointillés noirs correspond aux concentrations en méthane mesurées.

Pour cette inversion, nous avons utilisé l'erreur d'observation moyenne pour les différents segments d'une traversée  $R_{moy}$  étant donné que les profils de concentrations de méthane mesurés au travers des panaches d'émission présentent une forme étroite et peu étalée. Les estimations *a priori* des émissions  $f^b$  sont déterminées en utilisant les données trouvées dans la littérature : les émissions du bâtiment de pré-traitement sont fixées à  $0,86 \text{ kg.j}^{-1}$ , les émissions de chaque bassin d'aération sont fixées à  $1,12 \text{ kg.j}^{-1}$ , celles des bassins de clarification à  $0,02 \text{ kg.j}^{-1}$  et celles de l'incinérateur à  $0,86 \text{ kg.j}^{-1}$ . Les émissions totales de la station d'épuration de Romans-sur-Isère estimées à  $4,01 \text{ kg.j}^{-1}$  sont nettement inférieures aux estimations obtenues avec la méthode traceur. L'incertitude sur ces estimations *a priori* est fixée à 80 % de ces flux afin de laisser au système une certaine liberté. Cette plage d'incertitudes ne permet cependant pas d'atteindre l'estimation obtenue avec la méthode traceur classique.

### Résultats obtenus avec l'inversion statistique

Les résultats obtenus avec l'inversion statistique paramétrée grâce aux données du gaz traceur sont présentés sur la figure 4.16a. L'inversion statistique donne une estimation *a posteriori* des émissions totales de méthane de la station d'épuration de Romans-sur-Isère de  $19,0 \pm 0,5 \text{ kg.j}^{-1}$ . Cette estimation est largement plus importante que l'estimation *a priori*, bien au-delà de son enveloppe d'incertitudes. L'estimation des émissions totales de méthane du site déterminée avec l'inversion statistique est plus importante que celle obtenue avec la méthode traceur classique de  $10 \pm 2 \text{ kg.j}^{-1}$ . La source de traceur est placée un peu en aval de sources de méthane par rapport à la direction du vent, ce qui pourrait effectivement impliquer une légère sous-estimation des émissions du site avec la méthode traceur.

Trois traversées sont présentées en exemple : la traversée 6 du panache d'émission simulée avec une classe de stabilité B, la traversée 11 simulée avec une classe de stabilité C et la traversée 7 simulée avec une classe D. Les graphiques situés au centre de la figure 4.16 présentent les vecteurs d'observation utilisés dans l'inversion, à savoir l'aire entre les concentrations de fond de méthane et les concentrations mesurées (blanc) ou modélisées avant (bleu) et après inversion (vert) pour chaque segment. Les profils



de concentrations mesurés (noir) et modélisés avant (bleu) et après inversion (vert) sont présentés sur les graphiques inférieurs. Les vecteurs observations simulés en forçant le modèle gaussien avec les estimations *a posteriori* sont plus proches des observations que les vecteurs d'observations simulés avec les estimations *a priori*. Les vecteurs d'observation de la traversée 11 modélisée avec les estimations *a priori* et une classe de stabilité C dans le modèle gaussien sont plus proches des données observées que les vecteurs d'observation des traversées 6 et 7. Cela se traduit par des profils de concentrations modélisés plus ressemblants aux profils mesurés pour cette traversée que pour les autres. Le profil de concentrations de la traversée 6 modélisé avec une classe de stabilité B reste tout de même assez proche de celui mesuré contrairement à celui de la traversée 7 modélisé avec une classe de stabilité D.

Les estimations *a posteriori* des émissions de méthane des différentes sources de méthane de la station d'épuration de Romans-sur-Isère site sont présentées sur la figure 4.16a. On remarque que les émissions des différentes sources ont été augmentées suite à l'inversion statistique et plus particulièrement celles de l'incinérateur qui sont passées de  $0,86 \pm 0,69 \text{ kg.j}^{-1}$  à  $9,19 \pm 0,31 \text{ kg.j}^{-1}$ . Les fonctions de réponse des différentes sources de méthane laissent à penser que le système allait avoir du mal à séparer les émissions des bassins d'aération et de clarification contrairement à celles de l'incinérateur. Les incertitudes sur les estimations *a posteriori* des différentes sources sont très faibles donc en théorie le système a réussi à bien les séparer. Mais nous avons vu dans le chapitre 3 que ces incertitudes *a posteriori* pouvaient être sous-évaluées et que les corrélations sur les incertitudes *a posteriori* entre les différentes sources du site semblaient être des indicateurs valables des éventuels problèmes de séparabilité. L'analyse de ces corrélations entre les différentes sources de méthane de la station d'épuration présentées dans le tableau 4.8 nous montre que l'incinérateur est tout de même difficilement séparé du bassin d'aération 1. Le système diagnostique également des difficultés à séparer les émissions des bassins d'aération et du bâtiment de pré-traitement tout comme le montre les incertitudes résiduelles pour toutes ces sources.

TABLE 4.8 – Corrélations sur les incertitudes *a posteriori* entre les différentes sources de méthane de la station d'épuration de Romans-sur-Isère.

	Aeration 1	Aeration 2	Clarification 1	Clarification 2	Incinérateur	Pré-traitement
Aeration 1	1,00	0,06	0,00	-0,04	-0,47	-0,47
Aeration 2	0,06	1,00	-0,03	0,00	0,14	-0,82
Clarification 1	0,00	-0,03	1,00	0,00	0,00	-0,01
Clarification 2	-0,04	0,00	0,00	1,00	-0,00	-0,00
Incinérateur	-0,47	0,14	0,00	-0,00	1,00	0,01
Pré-traitement	-0,47	-0,82	-0,01	-0,00	0,01	1,00

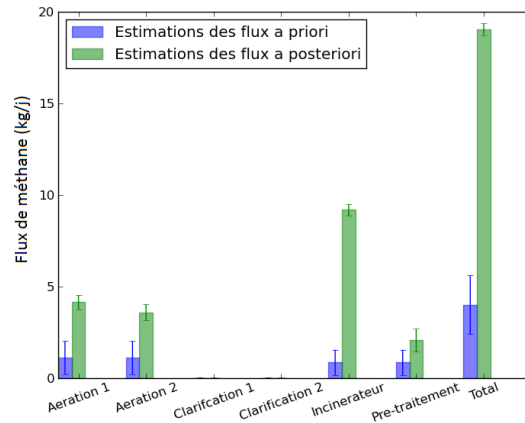
## Conclusions

L'inversion statistique paramétrée avec les données du gaz traceur donne une estimation des émissions totales de méthane de la station d'épuration de Romans-sur-Isère de  $19,0 \pm 0,3 \text{ kg.j}^{-1}$  qui est 2 fois plus importante que celle obtenue avec la méthode traceur classique. L'incertitude sur ces estimations *a posteriori* est très faible et semble un peu trop optimiste. L'inversion statistique attribue de très fortes émissions de méthane à l'incinérateur tout en augmentant également les émissions des bassins d'aération et du bâtiment de pré-traitement. Les émissions associées au bâtiment de pré-traitement et aux bassins d'aération sont difficilement séparables et il se peut qu'une partie des émissions que le système a attribué au bâtiment de pré-traitement soit en réalité à attribuer à ces bassins. La détection des faibles augmentations des concentrations de méthane durant les traversées du panache d'émission venant du site, de l'ordre d'une dizaine de ppb, nécessitait un analyseur d'une grande précision tel que celui utilisé. Un instrument moins précis n'aurait pas dissocié ce signal du bruit de fond.

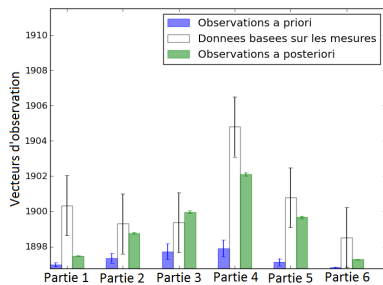
### 4.2.2.3 Estimations des émissions de méthane de la station d'épuration de Valence

#### 4.2.2.3.1 Description du site

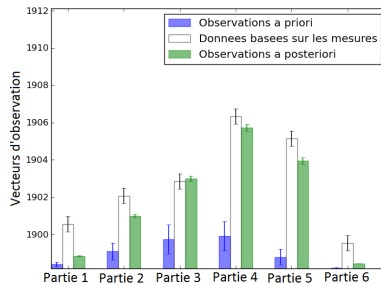
La station d'épuration de Valence (longitude :  $4,865933^\circ$ , latitude :  $44,903603^\circ$ , altitude : 108 m asl) est gérée par Veolia Eau et traite les eaux usées d'une partie de l'agglomération de Valence correspondant à



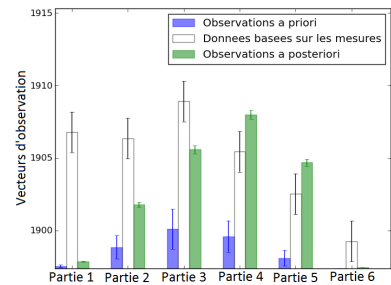
(a) Estimations des flux d'émissions de méthane *a priori* et *a posteriori* de la station d'épuration de Romans-sur-Isère



(b) Traversée 6 simulée avec une classe de stabilité B



(c) Traversée 11 simulée avec une classe de stabilité C



(d) Traversée 7 simulée avec une classe de stabilité D

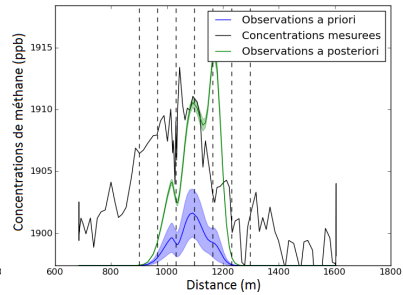
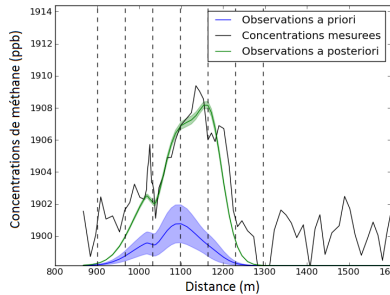
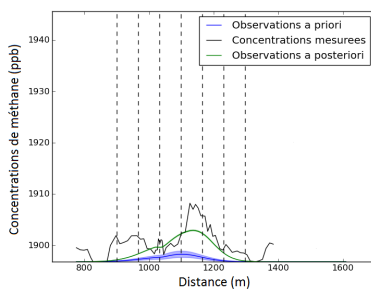


FIGURE 4.16 – Résultats obtenus avec l'inversion statistique pour la station d'épuration de Romans-sur-Isère. (a) Estimation des flux de méthane *a priori* (bleu) et *a posteriori* (vert) pour les différentes sources mais également pour les émissions totales du site. (b), (c) et (d) Exemple de vecteurs d'observations et de profils de concentrations obtenus grâce aux estimations *a priori* (bleu) et *a posteriori* (vert) des flux avec le modèle gaussien comparés aux concentrations mesurées pour trois traversées, la traversée 6 pour laquelle la classe de stabilité B a été sélectionnée, la traversée 11 avec une classe C et la traversée 7 avec une classe D.

150 000 équivalent-habitants. Les volumes journaliers traités sont de  $46\,750\text{ m}^3\cdot\text{j}^{-1}$  par temps sec (débit de pointe :  $2\,800\text{ m}^3\cdot\text{h}^{-1}$ ) et de  $13\,400\text{ m}^3\cdot\text{h}^{-1}$  par temps de pluie. Le traitement subi par l'effluent au sein de cette station consiste en un pré-traitement puis en un traitement secondaire avec un passage des eaux usées dans des bassins d'aération puis dans des bassins de clarification comme illustré sur la figure 4.17. Les boues collectées au cours des différentes étapes sont séchées et incinérées sur place, l'eau épurée est rejetée dans le Rhône.

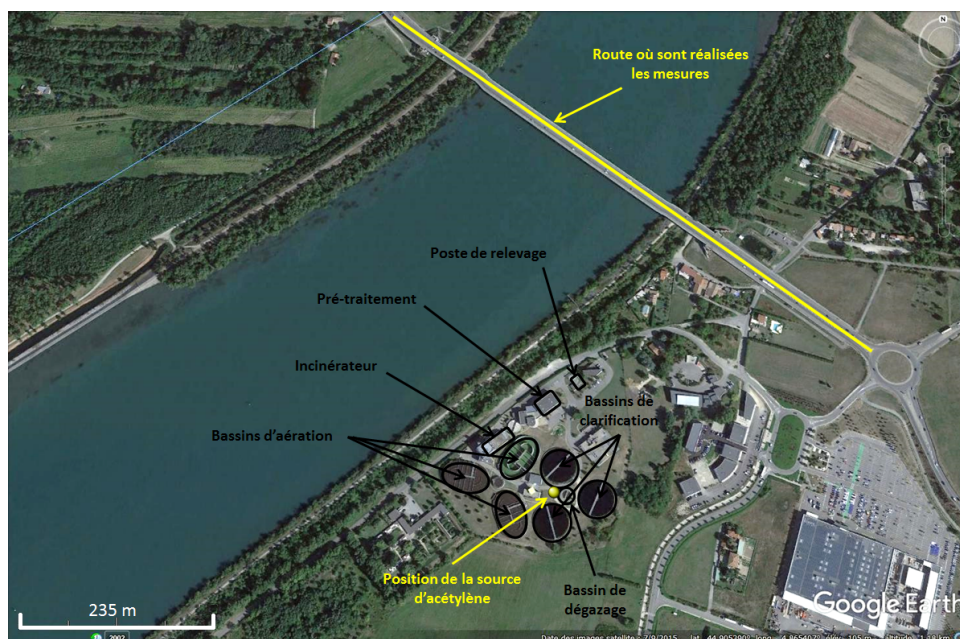


FIGURE 4.17 – Vue aérienne de la station d’épuration de Valence sur laquelle sont représentées les différentes étapes du traitement des eaux usées.

#### 4.2.2.3.2 Mesures atmosphériques

La méthode traceur a été déployée au niveau de la station d’épuration de Valence le 09.04.15. Le vent dominant venait du sud-est nous permettant de mesurer les concentrations au travers du panache d’émission du site sur le pont situé à environ 400 mètres au nord-ouest. La source d’acétylène était placée à proximité du bassin de dégazage et son débit était réglé à  $10,3 \text{ kg.j}^{-1}$  afin de mesurer un signal suffisamment important durant nos traversées du panache d’émission. Les concentrations en acétylène et en méthane mesurées lors des traversées successives du panache d’émission provenant de la station d’épuration de Valence sont présentées sur la figure 4.18.

Les signaux d’acétylène mesurés ont une amplitude maximale comprise entre 2 et 7 ppb et sont facilement discernables de leur concentration de fond. Comme pour la station de Romans-sur-Isère, les signaux de méthane ont une amplitude maximale d’une dizaine de ppb les rendant plus difficilement discernables du bruit de l’instrument. Nous en avons utilisé 13 traversées du panache pour estimer les émissions de la station d’épuration (surlignées en bleu sur la figure 4.14). Ces estimations des émissions de méthane seront comparées aux résultats obtenus par Yver Kwok et al. (2015) qui ont également utilisé la méthode traceur pour estimer les émissions de cette station d’épuration en 2012.

#### 4.2.2.3.3 Estimation des émissions de méthane avec la méthode traceur

Les estimations des émissions totales de méthane de la station d’épuration de Valence obtenues avec la méthode traceur pour chaque traversée du panache d’émissions sont présentées dans le tableau 4.9. Ces émissions sont comprises entre  $13$  et  $81 \text{ kg.j}^{-1}$  avec une estimation moyenne de  $35 \pm 11$  (6; 9)  $\text{kg.j}^{-1}$ . L’incertitude donnée correspond à l’incertitude totale. Ces estimations sont très proches de celles trouvées en 2012 par Yver Kwok et al. (2015) avec la même méthode ( $34 \pm 12 \text{ kg.j}^{-1}$ ).

#### 4.2.2.3.4 Estimation des émissions de méthane avec l’inversion statistique paramétrée avec les données du gaz traceur

#### Optimisation du modèle gaussien à l’aide des concentrations en traceur

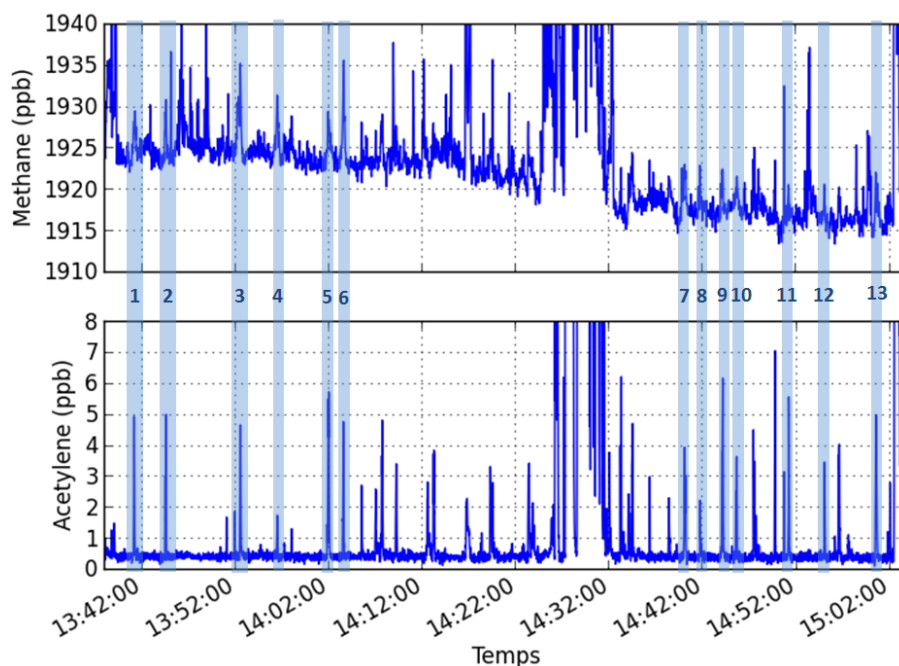


FIGURE 4.18 – Concentrations en méthane et en acétylène mesurées lors des différentes traversées du panache d'émission provenant de la station d'épuration de Valence. Les zones colorées en bleu correspondent aux traversées utilisées pour les estimations des émissions de méthane avec la méthode traceur. Les fortes concentrations observées au milieu de la figure correspondent à des mesures réalisées au sein de la station d'épuration à proximité de la source de traceur.

TABLE 4.9 – Estimations des émissions de méthane de la station d'épuration de Valence calculées grâce à la méthode traceur pour les différentes traversées étudiées. Le flux moyen est déterminé à partir des estimations calculées pour chacune des 13 traversées. Les incertitudes sont présentées de la façon suivante : incertitude totale (erreur type sur l'estimation de la moyenne avec un échantillon de dimension finie calculée en divisant l'écart-type des différentes estimations par la racine carrée du nombre de traversées ; biais associé à une mauvaise colocalisation du traceur).

Numéro du pic	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
Estimation des émissions de méthane pour chaque traversée ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	38	29	62	81	21	48	60	18	21	13	21	18	33
Estimation des émissions de méthane moyenne $\pm$ les incertitudes totales ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	$35 \pm 11$ (6 ; 9)												

Les données du gaz traceur sont utilisées pour prendre en compte le décalage spatial et sélectionner la classe de stabilité utilisée dans le modèle gaussien pour chaque traversée. L'augmentation des concentrations en traceur lors des traversées du panache mesurées et modélisées avec les classes A, B, C et D est intégrée et les écarts relatifs entre ces valeurs sont présentés dans le tableau 4.10. La forme des profils de concentrations modélisés pour les traversées 4, 5, 9, 10, 11 et 13 ne correspond pas visuellement à celle des profils mesurés. Ces traversées ne sont donc pas utilisées pour l'inversion statistique. Les classes de stabilité permettant de représenter la stabilité de l'atmosphère durant chacune des traversées sont les classes B et C.

### Configuration de l'inversion statistique

TABLE 4.10 – Classes de stabilité sélectionnées pour chaque traversée du panache d’émission provenant de la station d’épuration de Valence et les écarts relatifs entre les aires sous les signaux mesurés et modélisés avec le modèle gaussien pour les classes de stabilité A, B, C et D.

Traversée	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
Écart relatif modèle observation avec la classe de stabilité A (%)	37	29	37	-	-	33	24	43	-	-	-	14	-
Écart relatif modèle observation avec la classe de stabilité B (%)	21	8	18	-	-	16	10	28	-	-	-	10	-
Écart relatif modèle observation avec la classe de stabilité C (%)	2	21	9	-	-	12	37	6	-	-	-	44	-
Écart relatif modèle observation avec la classe de stabilité D (%)	44	71	60	-	-	73	85	32	-	-	-	107	-
Classe de stabilité sélectionnée	C	B	C	-	-	C	B	C	-	-	-	B	-

Pour cette inversion statistique, le vecteur de contrôle  $f$  est constitué des flux d’émission des six sources du site : le poste de relevage, le bâtiment de pré-traitement, les trois bassins d’aération regroupés en une unique source, les trois bassins de clarification regroupés une source, le bassin de dégazage et l’incinérateur. Les émissions de méthane sont supposées constantes durant la série de mesures et uniformément réparties sur la surface de ces deux sources. Les profils de concentrations mesurés lors de chaque traversée sont divisés en six parties de même distance et chacun de ces segments est intégré afin de déterminer le vecteur d’observation  $p$ .

En ce qui concerne la matrice de transport  $H$ , les fonctions de réponse des différentes sources sont modélisées en forçant le modèle gaussien avec un flux unitaire, les classes de stabilité sélectionnées précédemment et les conditions de vent mesurées durant la campagne avec notre station météorologique. L’exemple des fonctions de réponse obtenues pour la traversée 12 est présenté sur la figure 4.19.

On remarque que les fonctions de réponse des différentes sources de méthane de la station d’épuration de Valence couvrent les différents segments du panache d’émission et qu’elles sont superposées les unes par rapport aux autres avec ces conditions météorologiques et particulièrement celles du poste de relevage et du bassin de dégazage qui vont donc être difficiles à séparer.

Pour cette inversion, nous avons utilisé l’erreur d’observation moyenne pour les différents segments d’une traversée  $R_{moy}$  étant donné que les profils de concentrations de méthane mesurés au travers des panaches d’émission présentent une forme étroite et peu étalée. Les estimations *a priori* des émissions  $f^b$  sont déterminées grâce aux travaux de Yver Kwok et al. (2015) qui ont donné une estimation des émissions des bassins de clarification, des bassins d’aération et du bassin de dégazage de 0,02, 1,11 et 1,13  $\text{kg.j}^{-1}$  respectivement. Les estimations *a priori* des émissions des autres sources sont définies en prenant en compte les informations données dans la littérature : les émissions du poste de relevage et du bâtiment de pré-traitement sont toutes les deux fixées à 0,43  $\text{kg.j}^{-1}$  car ils sont censés émettre moins de méthane que les bassins d’aération et les émissions de l’incinérateur sont définies à 0,86  $\text{kg.j}^{-1}$ . L’incertitude sur ces estimations *a priori* est fixée à 80 % de ces flux afin de laisser au système une certaine liberté.

### Résultats obtenus avec l’inversion statistique

Les résultats obtenus avec l’inversion statistique paramétrée grâce aux données du gaz traceur sont présentés sur la figure 4.20. L’inversion statistique donne une estimation *a posteriori* des émissions totales de méthane de la station d’épuration de Valence de  $17 \pm 1 \text{ kg.j}^{-1}$ . Cette estimation est largement plus importante que l’estimation *a priori*, en dehors de son enveloppe d’incertitudes, mais reste bien inférieure à celle obtenue avec la méthode traceur classique (environ d’un facteur 2 en moyenne).

Deux traversées sont présentées en exemple : la traversée 12 du panache d’émission simulée avec une classe de stabilité B et la traversée 1 simulée avec une classe de stabilité C. Les graphiques situés au centre de la figure 4.20 présentent les vecteurs d’observation, à savoir l’aire entre les concentrations de fond et les concentrations mesurées (blanc) ou modélisées avant (bleu) et après inversion (vert) de

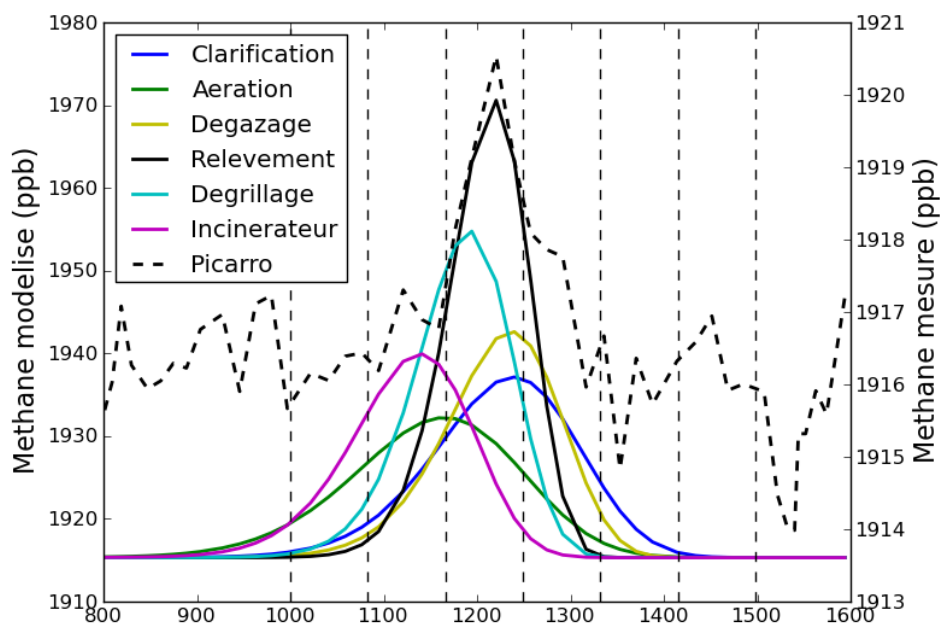
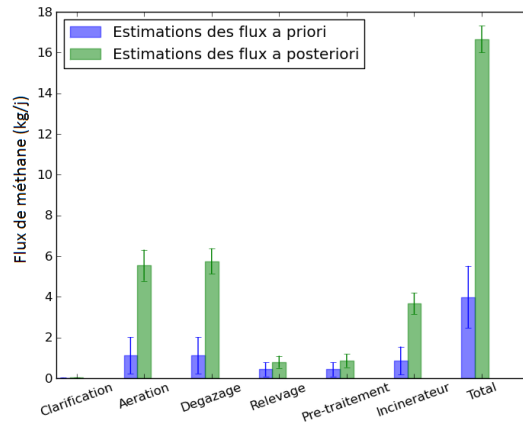


FIGURE 4.19 – Fonctions de réponse des différentes sources de méthane de la station d'épuration de Valence simulées grâce au modèle gaussien avec les conditions météorologiques de la traversée 12. Les courbes en traits continus correspondent aux concentrations modélisées pour ces deux sources avec un flux unitaire. La courbe en pointillés noirs correspond aux concentrations en méthane mesurées.

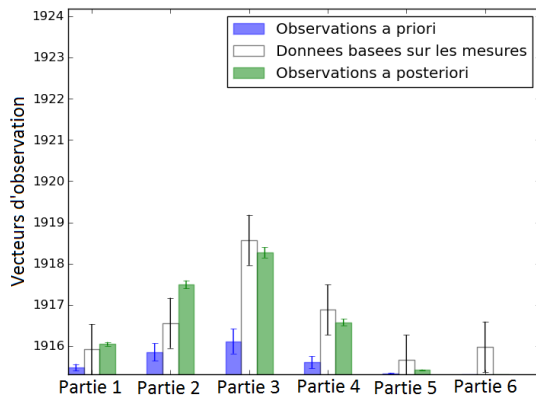
chaque segment. Les profils de concentrations mesurés (noir) et modélisés avant (bleu) et après inversion (vert) sont présentés sur les graphiques inférieurs. Les vecteurs d'observation simulés en forçant le modèle gaussien avec les estimations *a posteriori* sont plus proches des observations que les observations simulées avec les estimations *a priori* pour chacun des deux exemples tout comme les profils de concentrations. Les estimations *a posteriori* des émissions de méthane de chacune des sources du site sont présentées sur la figure 4.20a. On remarque que les émissions des différentes sources ont été augmentées suite à l'inversion statistique et plus particulièrement celles des bassins d'aération, du bassin de dégazage et de l'incinérateur qui sont respectivement passées de  $1,11 \pm 0,90$ ,  $1,11 \pm 0,90$  et  $0,86 \pm 0,69 \text{ kg.j}^{-1}$  à  $5,55 \pm 0,78$ ,  $5,75 \pm 0,62$  et  $3,67 \pm 0,52 \text{ kg.j}^{-1}$ . La superposition des fonctions de réponse des différentes sources de méthane laissait à penser que le système allait avoir du mal à les séparer. L'analyse des corrélations sur les incertitudes *a posteriori* entre les différentes sources de méthane de la station d'épuration présentées dans le tableau 4.11 nous permet de confirmer cette supposition pour certaines dont les corrélations sont plus fortement négatives. Le système diagnostique des difficultés particulières à séparer les émissions des bassins d'aération et de l'incinérateur mais également celles du poste de relevage et du bassin de dégazage.

TABLE 4.11 – Corrélations sur les incertitudes *a posteriori* entre les différentes sources de méthane de la station d'épuration de Valence.

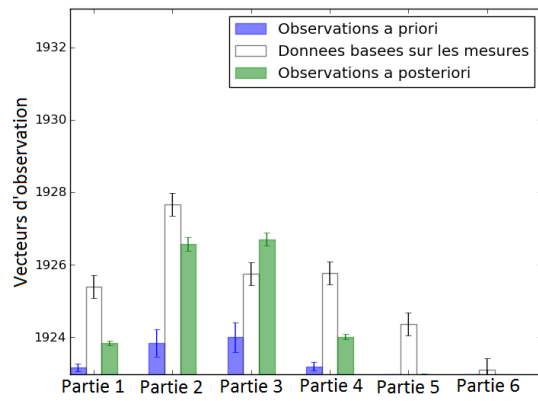
	Clarification	Aération	Degazage	Relevage	Pré-traitement	Incinérateur
Clarification	1,00	-0,00	-0,01	-0,00	-0,00	-0,00
Aération	-0,00	1,00	-0,26	-0,11	-0,14	-0,45
Degazage	-0,01	-0,26	1,00	-0,38	-0,18	0,04
Relevage	-0,00	-0,11	-0,38	1,00	-0,17	-0,00
Pré-traitement	-0,00	-0,14	-0,18	-0,17	1,00	-0,16
Incinérateur	-0,00	-0,45	0,04	-0,00	-0,16	1,00



(a) Estimations des flux d'émissions de méthane *a priori* et *a posteriori* de la station d'épuration de Valence



(b) Traversée 12 simulée avec une classe de stabilité B



(c) Traversée 8 simulée avec une classe de stabilité C

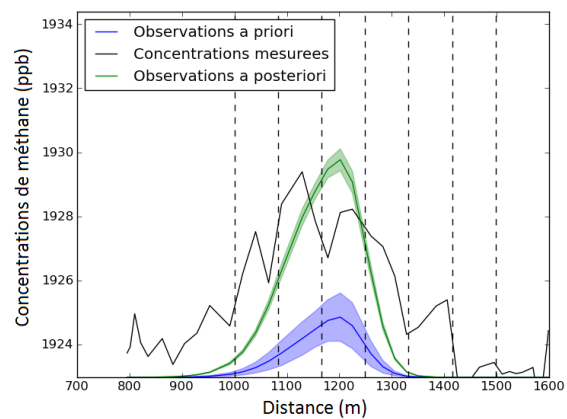
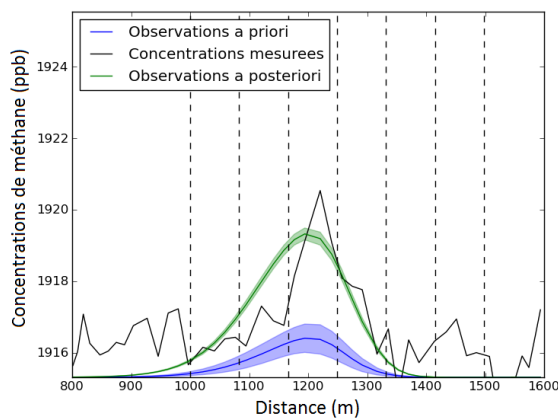


FIGURE 4.20 – Résultats obtenus avec l'inversion statistique pour la station d'épuration de Valence. (a) Estimation des flux de méthane *a priori* (bleu) et *a posteriori* (vert) pour les différentes sources mais également pour les émissions totales du site. (b) et (c) Exemple de vecteurs d'observations et de profils de concentrations obtenus grâce aux estimations *a priori* (bleu) et *a posteriori* (vert) des flux avec le modèle gaussien comparés aux concentrations mesurées pour deux traversées, la traversée 12 pour laquelle la classe de stabilité B a été sélectionnée et la traversée 1 avec une classe C.

## Conclusions

L'inversion statistique paramétrée avec les données du gaz traceur donne une estimation des émissions totales de méthane de la station d'épuration de Valence de  $17 \pm 1 \text{ kg.j}^{-1}$  qui est 2 fois plus petite que celle obtenue avec la méthode traceur classique. L'incertitude sur ces estimations *a posteriori* est très faible et semble ici aussi un peu trop optimiste. L'inversion statistique attribue de très fortes émissions de méthane aux bassins d'aération et au bassin de dégazage mais également à l'incinérateur tout en augmentant légèrement les émissions nettement inférieures du poste de relevage et du bâtiment de pré-traitement. Ces mesures nous permettent également de mettre en évidence l'importance de la précision de l'instrument utilisé. En effet, pour les sites étudiés précédemment, l'augmentation des concentrations de méthane au travers des panaches d'émissions étaient de l'ordre de plusieurs centaines de ppb et ne nécessitaient donc pas forcément un instrument aussi précis. En revanche, comme pour la station d'épuration de Romans-sur-Isère, un instrument moins précis ne nous aurait pas permis de distinguer l'augmentation des concentrations liées aux émissions de ces sites du bruit de l'instrument.

### 4.2.3 La station d'épuration de Cergy

Dans le cadre du projet FuME financé par la KIC-Climat, une campagne de mesures de deux semaines a été réalisée au sein de la station d'épuration de Cergy au mois d'octobre 2014 afin d'en étudier ses émissions de méthane. Ce site est situé dans une zone présentant une forte topographie avec de nombreux arbres entourant les bâtiments susceptibles de provoquer des turbulences lors du transport atmosphérique qui ne pourront pas être représentées correctement avec le modèle gaussien. Ne disposant pas de code CFD pour ce site, nous avons donc essayé de quantifier ses émissions de méthane uniquement à l'aide de la méthode traceur classique. Tout comme pour la campagne réalisée au niveau de l'installation de distribution de gaz présentée en section 3.2, des mesures en continue des concentrations en isotopes du méthane et des COVs ont été réalisées en parallèle afin de caractériser les émissions de méthane du site. Ces mesures ont permis de confirmer l'origine biogénique des sources de méthane du site. Le NPL a également déployé son DIAL afin de quantifier les émissions de méthane du site et de pouvoir comparer leurs résultats aux nôtres.

#### 4.2.3.1 Description du site

La station d'épuration de Cergy, située à environ 25 km au nord-ouest de Paris (longitude :  $2,071593^\circ$ , latitude :  $49,004304^\circ$ , altitude : 25 m asl), est gérée par Veolia Eau et traite environ  $12\,500\,000 \text{ m}^3$  d'eaux usées par an, soit un débit journalier moyen de  $34\,225 \text{ m}^3$ . Elle présente la particularité de disposer de deux filières de traitement des eaux usées différentes, à savoir une filière avec un traitement biologique (filière 1) et une filière avec un traitement physico-chimique (filière 2). Les boues produites sont traitées sur place grâce à un système de cogénération permettant également le chauffage du circuit d'eau chaude et la production d'électricité. Ce site présente cinq sources de méthanes potentielles indiquées sur la figure 4.21, à savoir les deux bâtiments où le traitement des eaux usées a lieu sont émetteurs de méthane, mais également les digesteurs situés au sud du site, le réservoir servant à stocker le biogaz produit et la zone d'arrivée des eaux usées.

#### 4.2.3.2 Mesures atmosphériques

Durant les deux semaines de campagne à la station d'épuration de Cergy, nous avons réalisé des mesures durant quatre jours pendant lesquels les conditions météorologiques étaient propices à la méthode traceur. Le vent dominant venait du sud-ouest permettant de mesurer les concentrations au travers des panaches d'émission sur une route située à environ 300 mètres au nord-est de la station (représentée en jaune sur la figure 4.21). Les profils de concentrations en méthane observés lors des traversées du panache provenant de la station d'épuration présentent deux pics de méthane (voir la figure 4.22) qui mettent en évidence la présence de deux zones d'émission distinctes, l'une au nord et l'autre au sud. Les différentes sources supposées de méthane sont réparties de la façon suivante : la zone nord regroupe la filière de traitement 2 et l'arrivée des eaux usées tandis que la zone sud regroupe la filière de traitement 1, les digesteurs où sont traitées les boues et le réservoir de biogaz produit par la cogénération. La présence de ces deux zones d'émission de méthane au sein du site représente un défi pour l'application de la méthode traceur.



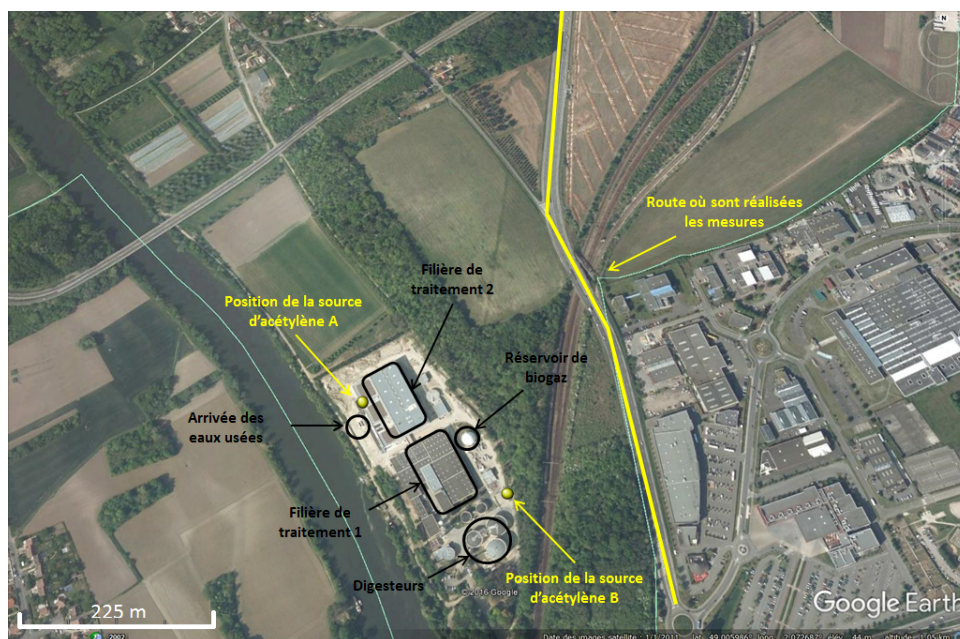


FIGURE 4.21 – Vue aérienne de la station d’épuration de Cergy sur laquelle les différentes sources de méthane sont représentées en noir et les deux localisations où le traceur est émis en jaune.

Nous avons essayé de quantifier séparément les émissions de méthane de ces deux zones en positionnant la source de traceur au niveau de chacune d’entre elles (voir la figure 4.21) :

- En position A dans la zone nord entre la filière de traitement 2 et l’arrivée des eaux usées lors des deux premiers jours de mesures (23.10.14 et 24.10.14).
- En position B dans la zone sud à proximité des digesteurs et de la filière de mesure 1 lors des deux derniers jours de mesures (27.10.14 et 03.11.14).

Durant ces quatre jours de mesures, le traceur a été émis à un flux identique et constant de  $10 \text{ kg.j}^{-1}$ .

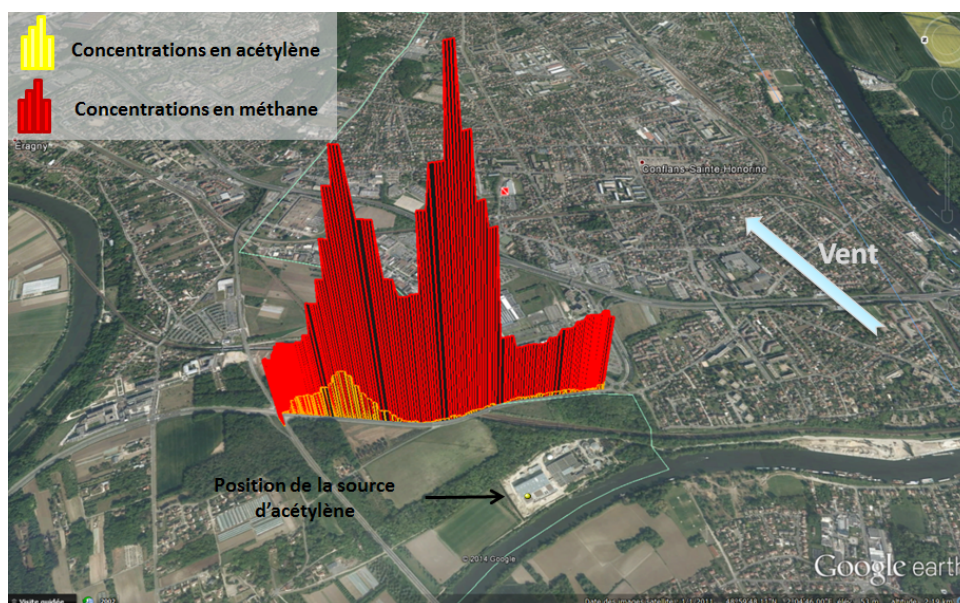


FIGURE 4.22 – Exemple d’un profil de concentrations en méthane (rouge) et en acétylène (jaune) mesuré lors de la traversée du panache d’émission provenant de la station d’épuration de Cergy. La localisation de la source d’acétylène est représentée par un point jaune.

Le chevauchement des panaches d'émission provenant des deux zones ne nous permet pas d'utiliser l'intégration de l'augmentation des concentrations en traceur et en méthane au travers de l'ensemble du panache pour déterminer le rapport  $p_m/p_t$  utilisé dans l'équation 2.1 de la méthode traceur. Nous avons donc plutôt déterminé ce ratio en utilisant les maxima de concentrations en traceur et en méthane correspondant à la source étudiée. Nous avons également utilisé le calcul de la corrélation entre les concentrations de méthane et d'acétylène sur une zone de taille croissante à partir du début du panache pour sélectionner une partie de la traversée du panache d'émission correspondant au signal de la zone dans laquelle nous avons placé le traceur afin d'intégrer l'augmentation des concentrations en traceur et en méthane sur cette partie uniquement (voir section 2.1). Le seuil de corrélation sous lequel on définit la fin de la zone de cohérence est fixé à 0,9. L'estimation des émissions totales de méthane de la station d'épuration de Cergy est ensuite déduite en additionnant les estimations des émissions des deux zones d'émission.

La figure 4.23 présentent les concentrations en acétylène et en méthane mesurées lors des différentes traversées du panache d'émission réalisées lors de ces quatre jours. Les traversées de panaches utilisées pour le calcul des émissions sont surlignées en bleu, les autres n'ayant pas été sélectionnées car elles présentaient des formes particulières (double pic d'acétylène par exemple).

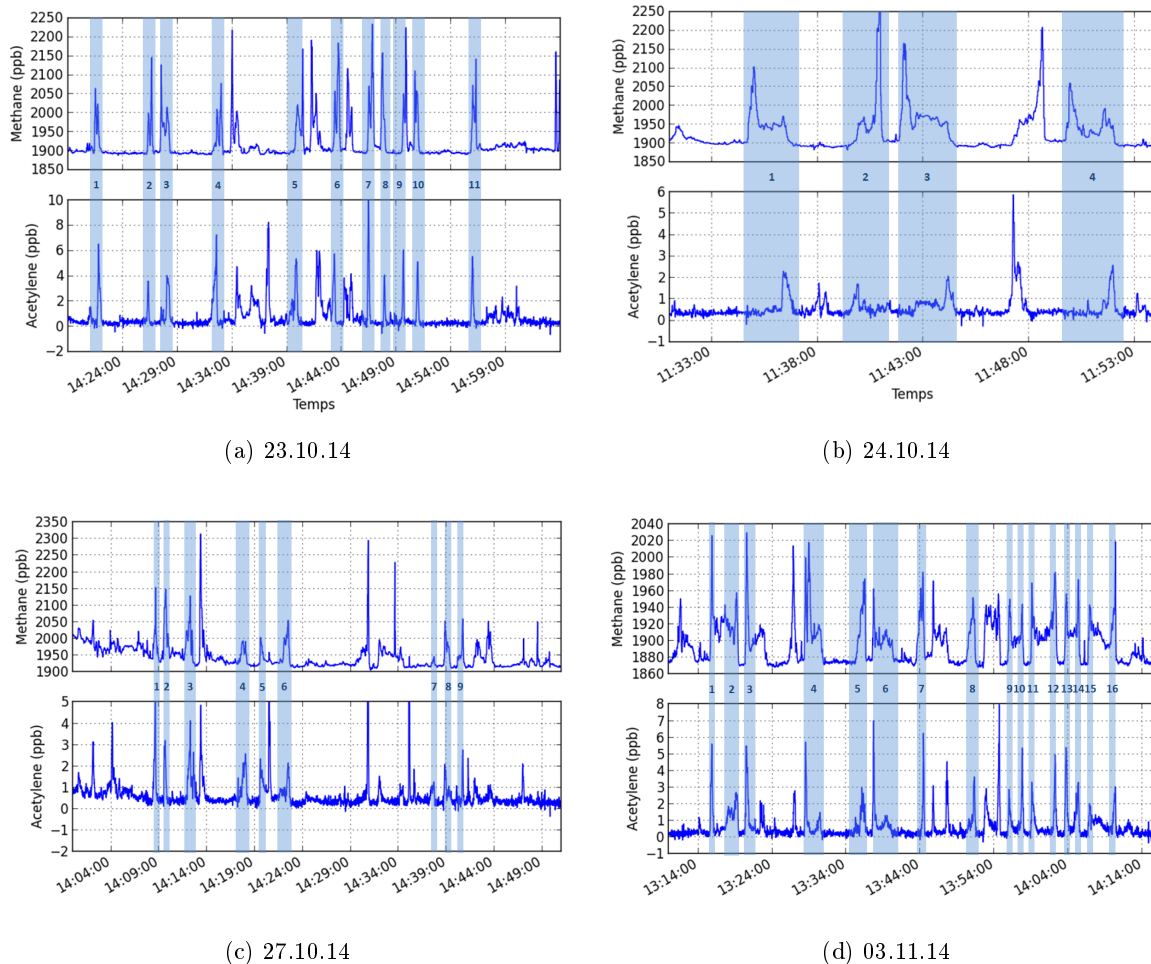


FIGURE 4.23 – Concentrations en méthane et en acétylène mesurées lors des différentes traversées du panache d'émission provenant de la station d'épuration de Cergy pendant les quatre jours de mesures. Chaque groupe de courbes représentent les concentrations en méthane et en acétylène mesurées simultanément pour un jour donné. Les zones colorées en bleu correspondent aux traversées utilisées pour les estimations des émissions de méthane avec la méthode traceur.

### 4.2.3.3 Estimation des émissions de méthane avec la méthode traceur

Les estimations des émissions de méthane obtenues pour chaque partie du site grâce à ces deux méthodes pour les quatre jours de mesures sont présentés dans le tableau 4.12. Dans chaque cas, les estimations de chaque traversée sont présentées ainsi que le flux moyen déterminé à partir de ces différentes estimations avec une incertitude correspondant à l'erreur type sur l'estimation de la moyenne d'un échantillon de dimension finie.

TABLE 4.12 – Estimations des émissions de méthane des différentes zones de la station d'épuration de Cergy grâce à la méthode traceur. Le rapport  $p_m/p_t$  est déterminé d'une part en utilisant les maxima de concentrations des signaux et d'autre part la corrélation entre les concentrations de méthane et d'acétylène pour sélectionner la partie de la traversée où le traceur et le méthane sont colocalisés et l'intégrer. Le flux moyen est déterminé à partir des estimations calculées pour chacune des traversées.

Numéro du pic	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16
<b>23.10.14 : Estimation des émissions de la zone nord</b>																
Utilisation des maxima de concentrations																
Estimation des émissions de méthane pour chaque traversée ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	124	190	193	103	153	178	111	138	162	204	203					
Estimation des émissions de méthane moyenne $\pm$ les incertitudes totales ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	160 $\pm$ 10															
Utilisation des corrélations entre les concentrations de méthane et d'acétylène																
Estimation des émissions de méthane pour chaque traversée ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	-	145	171	-	98	76	83	154	183	182	171					
Estimation des émissions de méthane moyenne $\pm$ les incertitudes totales ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	136 $\pm$ 12															
<b>24.10.14 : Estimation des émissions de la zone nord</b>																
Utilisation des maxima de concentrations																
Estimation des émissions de méthane pour chaque traversée ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	237	327	300	254												
Estimation des émissions de méthane moyenne $\pm$ les incertitudes totales ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	238 $\pm$ 18															
Utilisation des corrélations entre les concentrations de méthane et d'acétylène																
Estimation des émissions de méthane pour chaque traversée ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	150	135	142	142												
Estimation des émissions de méthane moyenne $\pm$ les incertitudes totales ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	143 $\pm$ 3															
<b>27.10.14 : Estimation des émissions de la zone sud</b>																
Utilisation des maxima de concentrations																
Estimation des émissions de méthane pour chaque traversée ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	226	448	333	193	250	441	178	460	348							
Estimation des émissions de méthane moyenne $\pm$ les incertitudes totales ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	342 $\pm$ 10															
Utilisation des corrélations entre les concentrations de méthane et d'acétylène																
Estimation des émissions de méthane pour chaque traversée ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	-	422	-	-	-	412	-	333	385							
Estimation des émissions de méthane moyenne $\pm$ les incertitudes totales ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	388 $\pm$ 17															
<b>03.11.14 : Estimation des émissions de la zone sud</b>																
Utilisation des maxima de concentrations																
Estimation des émissions de méthane pour chaque traversée ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	206	174	183	158	225	77	110	142	176	85	187	139	98	196	236	315
Estimation des émissions de méthane moyenne $\pm$ les incertitudes totales ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	169 $\pm$ 20															
Utilisation des corrélations entre les concentrations de méthane et d'acétylène																
Estimation des émissions de méthane pour chaque traversée ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	137	125	-	-	-	75	-	109	161	85	206	250	102	201	246	276
Estimation des émissions de méthane moyenne $\pm$ les incertitudes totales ( $\text{kg.j}^{-1}$ )	165 $\pm$ 19															

Les deux estimations des émissions de méthane obtenues pour un jour donné avec les deux méthodes de

calcul sont relativement proches les unes des autres, en particulier pour les mesures réalisées le 23.10.14, le 24.10.11 et le 03.11.14. Les parties des différentes traversées pour lesquelles les concentrations en méthane et en acétylène sont corrélées s'étendent généralement du début du panache jusqu'au maximum de concentration du traceur. La partie de traversée intégrée pour déterminer le rapport  $p_m/p_t$  est donc largement influencée par la concentration maximale, ce qui explique la proximité des résultats obtenus. Les résultats obtenus le 24.10.14, présentent cependant une différence plus importante selon la méthode employée puisqu'en utilisant les maxima de concentrations, on obtient un flux de  $238 \pm 18 \text{ kg.j}^{-1}$  alors qu'en intégrant les parties de traversée où les concentrations en traceur et en méthane sont corrélées on obtient  $143 \pm 3 \text{ kg.j}^{-1}$ . Cet écart entre les estimations obtenues avec les différentes méthode est difficilement explicable.

Si on compare à présent les résultats obtenus pour une même zone d'un jour à l'autre, on s'aperçoit que les estimations des émissions de méthane de la zone nord sont relativement proches contrairement aux estimations des émissions de la zone sud. En effet, trois des estimations des émissions de méthane de la zone nord sont comprises entre 136 et 160  $\text{kg.j}^{-1}$ . Seule l'estimation obtenue en utilisant les maxima de concentrations des traversées du 24.10.14 est un peu plus importante puisqu'elle est de 238  $\text{kg.j}^{-1}$ . Pour la zone sud, les estimations déterminées d'un jour à l'autre sont très différentes puisque l'on passe d'un flux estimé à 365  $\text{kg.j}^{-1}$  le 27.10.14 (en faisant la moyenne des estimations obtenues avec les deux méthodes) à un flux de 167  $\text{kg.j}^{-1}$  le 03.11.14 et passent donc au double d'un jour de mesures à l'autre. Cette différence pourrait venir d'un problème de méthode ou bien du fait d'une variabilité des émissions des sources situées dans cette partie de la station d'épuration. La variabilité des estimations d'un jour à l'autre pour une même zone peut aussi être en partie expliquées par la différence d'échantillonnage selon les jours de mesures. Cette différence peut avoir un impact direct sur les estimations moyennes calculées.

#### 4.2.3.4 Comparaison des estimations obtenues avec les différentes méthodes

Les mesures réalisées avec le DIAL ont permis d'estimer les émissions des zones nord et sud séparément et de conclure qu'elles sont réparties de façon équivalente entre ces deux zones :  $270 \pm 58$  et  $275 \pm 24 \text{ kg.j}^{-1}$  pour la zone nord et sud respectivement. Les émissions de méthane de la zone nord ont été estimées à partir d'une série de mesures réalisées le 29.10.14 alors que les émissions de la zone sud correspondent à la moyenne des estimations obtenues lors de deux séries de mesures réalisées le 28.10.14. L'estimation des émissions totales de la station d'épuration de Cergy déterminée par cette méthode est de  $545 \pm 62 \text{ kg.j}^{-1}$  et correspond à la somme des estimations obtenues pour chacune des deux zones.

Les estimations des émissions de méthane de la partie sud de la station d'épuration de Cergy obtenues avec le DIAL sont comprises entre les estimations que nous avons obtenues avec la méthode traceur durant les deux séries de mesures. Ces résultats tendent à confirmer la variabilité des émissions de la zone sud qui ont probablement diminué progressivement entre le 27.10.14 et le 03.11.14. Les estimations des émissions de la zone nord du NPL sont presque deux fois plus importantes que celles que nous avons trouvés durant nos deux jours de mesures. Étant donné que ces mesures n'ont pas été réalisées au même moment, on peut également faire l'hypothèse que cet écart est dû à une variabilité des émissions de cette source au cours du temps.

## Conclusions

L'estimation des émissions de méthane de la station d'épuration de Cergy représentait un challenge du fait de la topographie du site assez complexe ne nous permettant pas d'utiliser le modèle gaussien mais aussi du fait de la présence de plusieurs sources de méthane au sein du site. Nous avons de ce fait choisi d'utiliser la méthode traceur classique et de réaliser plusieurs séries de mesures en déplaçant notre source de traceur afin d'estimer séparément les émissions des différentes parties de la station d'épuration. Du fait du chevauchement des panaches d'émission provenant des deux parties du site, nous avons testé deux méthode de calcul du rapport  $p_m/p_t$  de la méthode traceur : le rapport des maxima de concentrations en méthane correspondant à la zone étudiée et en traceur lors de la traversée du panache et l'utilisation du calcul de la corrélation entre les concentrations en traceur et en méthane sur une zone de taille croissante à partir du début du panache pour sélectionner la partie de la traversée à intégrer où les deux sources sont bien colocalisées pour le calcul du rapport. Ces deux méthodes ont donné des résultats à peu près similaires avec les deux méthodes de calcul sauf pour les mesures réalisées le 24.10.14. Pour cette journée de mesures, nous n'avons que quatre traversées du panache d'émission ce qui n'est pas suffisant pour avoir une estimation robuste des émissions. Nos estimations ainsi que celles obtenues avec la méthode



DIAL nous ont permis de mettre en évidence une certaine variabilité des émissions de méthane d'un jour à l'autre pour chacune de ces deux sources.

## 4.2.4 L'unité de traitement des boues d'Achères

### 4.2.4.1 Description du site

La station d'épuration d'Achères est située à environ 20 km au nord-ouest de Paris (longitude : 2,122539 °, latitude : 48,984010 °, altitude : 27 m asl). Dirigée par le SIAAP (Syndicat Interdépartemental pour l'Assainissement de l'Agglomération Parisienne), elle est capable de traiter 1 500 000 m<sup>3</sup> d'eaux usées par jour, ce qui représente environ 70% des eaux usées de l'agglomération parisienne. Le site de traitement est très étendu puisqu'il occupe une superficie totale de 800 ha comprenant deux unités bien distinctes géographiquement, à savoir une unité de traitement des eaux mettant en œuvre un procédé biologique et une unité de traitement des 135 000 tonnes de boues produites par an. Ces boues riches en matière organique sont un milieu anaérobie propice au développement des micro-organismes méthanogènes. Nous nous sommes donc focalisés sur l'estimation des émissions de méthane provenant de l'unité de traitement des boues.

L'unité de traitement des boues d'Achères, présentée sur la figure 4.24, dispose d'un ensemble de trois groupes de quatre bassins épaisseurs au niveau de sa partie nord qui permettent d'éliminer progressivement l'eau des boues. Les boues sont dans un premier temps envoyées au niveau du groupe de bassins situé à l'est dans lequel les boues sont le plus hydratées, puis elles passent successivement dans les bassins centraux puis ouest où elles sont progressivement déshydratées. Une fois ces boues suffisamment déshydratées, elles sont incinérées dans des fours situés dans la partie sud du site. Les résidus de boues incinérées sont stockés dans des casiers avant d'être évacués du site vers des sites de stockage des déchets non dangereux ou des zones agricoles où elles serviront d'engrais. L'eau séparée des boues est envoyée dans quatre bassins de clarification situés à l'est du site afin d'éliminer les éventuels résidus de boues restants puis est renvoyée à l'unité de traitement des eaux usées. Les principales zones que l'on suspecte d'émettre du méthane sur le site sont les bassins épaisseurs au nord et la zone de stockage des boues calcinées au sud. Les bassins épaisseurs situés à l'ouest devraient émettre une plus grande quantité de méthane étant donné que les boues y sont plus concentrées que dans les bassins centraux et est. De même on s'attend à ce que les bassins centraux émettent plus de méthane que les bassins est.

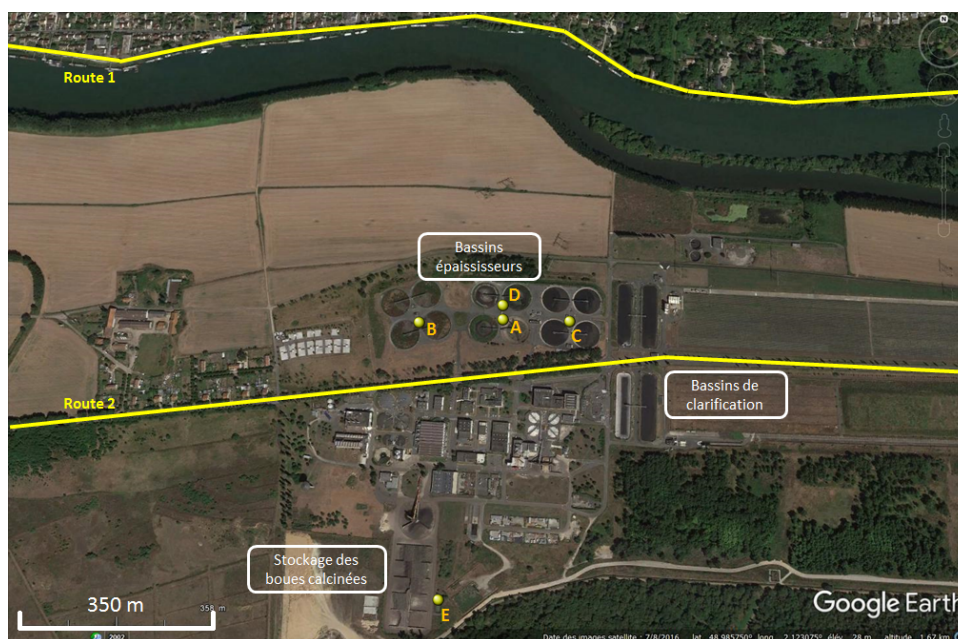


FIGURE 4.24 – Vue aérienne de l'unité de traitement des boues de la station d'épuration d'Achères sur laquelle sont représentées les principales sources de méthane. Les points jaunes indiquent les différentes positions de la source d'acétylène.

#### 4.2.4.2 Mesures atmosphériques

Deux campagnes de mesures ont été réalisées au sein de l'unité de traitement des boues d'Achères : la première s'est déroulée en novembre 2014 et la seconde en avril 2015. Les conditions de vent durant ces deux campagnes étaient très différentes nous permettant d'essayer d'étudier séparément les différentes sources de méthane du site avec la méthode traceur. Lors de la campagne de novembre, le vent venait du sud/sud-est et nous avons ainsi pu mesurer les concentrations au travers des panaches d'émission provenant de la zone sud du site au niveau de la route 2 mais également celles provenant de l'ensemble du site au niveau de la route 1. Durant la campagne d'avril, le vent venait du nord nous permettant de mesurer les concentrations au travers des panaches provenant des bassins localisés dans la partie nord de l'unité de traitement des boues au niveau de la route 2.

Les profils de concentrations mesurés au cours de ces deux campagnes nous ont permis de confirmer les émissions de méthane provenant des bassins épaisseurs et de la zone de stockage des boues calcinées, mais ils nous ont également permis de mettre en évidence les émissions de méthane provenant des bassins de clarification. En effet, la figure 4.25a présente un exemple de concentrations en méthane et en acétylène mesurées le 17.11.14 lors de la traversée du panache d'émission venant de la zone sud de l'unité de traitement des boues d'Achères. Sur ce profil, on observe deux pics de concentrations en méthane, l'un colocalisé avec le pic de concentration du traceur dont la source était placée près de la zone de stockage des boues calcinées et l'autre provenant d'une deuxième source localisée plus à l'est que nous suspicions de provenir des bassins de clarification. Ces émissions de méthane provenant des bassins de clarification ont été confirmées lors de la campagne de mesures réalisées en avril 2015. La figure 4.25b présentent un exemple de profil de concentration de méthane et d'acétylène mesuré le 22.04.15 lors de la traversée du panache d'émission de la zone nord. En plus des trois pics de concentrations de méthane associés au trois groupes de bassins épaisseurs, on observe également sur ce profil un quatrième pic de concentration de méthane, bien que plus faible, à proximité des bassins de clarification.

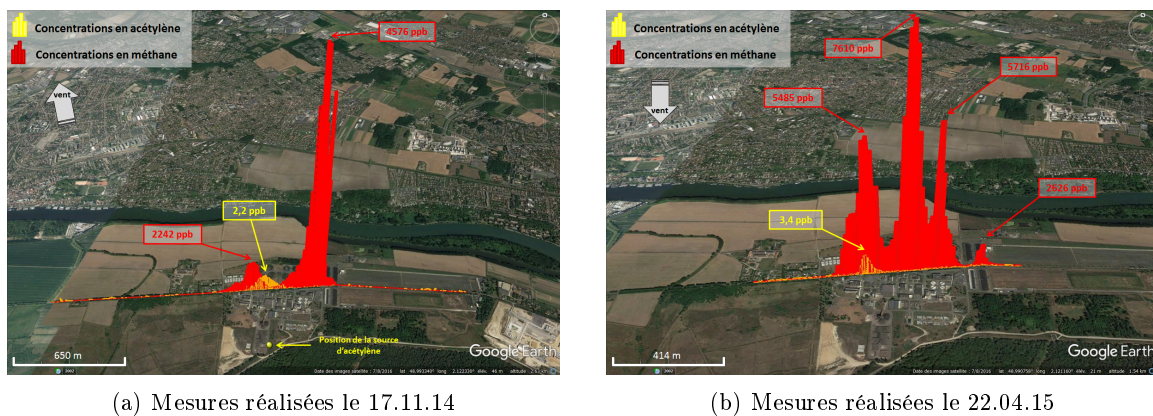


FIGURE 4.25 – Exemple de profils de concentrations en méthane (rouge) et en acétylène (jaune) supérieures à leur concentration de fond mesurés lors des différentes campagnes de mesures réalisées au sein de l'unité de traitement des boues d'Achères.

Durant ces deux campagnes de mesures, nous avons donc essayé d'estimer les émissions des différentes sources ou des différents groupes de sources de l'unité de traitement des boues d'Achères en colocalisant la source de traceur avec chacune d'entre elles. Lors de la campagne de novembre, la source de traceur a été successivement placée au niveau des bassins épaisseurs (14.11.14 et 17.11.15 (série 1)) et au niveau de la zone de stockage des boues calcinées (17.11.15 (série 2)) tandis que pendant la campagne d'avril, celle-ci a été déplacée au niveau des trois groupes de bassins épaisseurs situés dans la partie nord du site afin d'essayer d'estimer séparément leurs émissions de méthane. Le tableau 4.13 regroupe les différentes localisations de la source de traceur pour chaque série de mesures réalisées lors de ces deux campagnes ainsi que les conditions météorologiques survenues pour chacune d'entre elles.

La figure 4.26 présente les 11 séries de mesures réalisées lors de nos deux campagnes au sein de l'unité de traitement des boues d'Achères. Chacune de ces séries présente l'augmentation des concentrations en méthane et en acétylène mesurées lors des traversées successives des panaches d'émission. Les traversées surlignées en bleu correspondent à celles que j'ai utilisées pour calculer les estimations des émissions de

TABLE 4.13 – Récapitulatif des différentes séries de mesures réalisées au sein de l’unité de traitement des boues d’Achères et des conditions météorologiques survenues pour chacune d’entre elles.

	Campagne 1			Campagne 2							
	14.11.14	17.11.14 (série 1)	17.11.14 (série 2)	21.04.15 (série 1)	21.04.15 (série 2)	22.04.15 (série 1)	22.04.15 (série 2)	22.04.15 (série 3)	23.04.15 (série 1)	23.04.15 (série 2)	23.04.15 (série 3)
Position de la source d’acétylène	A	B	E	A	B	B	B	C	A	D	B
Localisation des mesures	Route 1	Route 1	Route 2	Route 2	Route 2	Route 2	Route 2	Route 2	Route 2	Route 2	Route 2
Flux d’acétylène émis ( $\text{kg j}^{-1}$ )	11,6	11,5	9,2	4,6	2,3	2,3	1,0	2,3	4,7	4,6	2,3
Direction du vent	SE	S-SE	S	N	N	N	N	N	N	N	N
Vitesse du vent ( $\text{m.s}^{-1}$ )	4,1	2,6	1,8	1,5-3,2	1,3-3,6	1,6-2,2	1,6-2,8	2,1-4,1	1,0-1,9	1,2-1,7	1,6-3,5
Nombre de traversées utilisées	6	12	7	8	12	8	13	14	8	10	8

méthane avec la méthode traceur. Certaines traversées n’ont pas été retenues lorsqu’elles présentaient des profils de concentrations différents de ceux auxquels on pouvait s’attendre (plusieurs maxima de concentrations pour le signal du traceur) ou lorsque le signal de traceur n’était pas correctement colocalisé avec le signal de la source étudiée.

Des mesures mobiles des isotopes du méthane ont également été réalisées durant la campagne d’avril afin de déterminer la signature isotopique associée aux sources de méthane de l’unité de traitement des boues d’Achères. Cette étude a été réalisée en collaboration avec Chistiane Yeman, étudiante en Master 2 à l’université de Heidelberg, qui a analysé les mesures obtenues pendant son stage de fin d’étude. Les résultats obtenus ne sont pas discutés ici mais sont présentés dans son rapport (Yeman, 2015).

Dans un premier temps, nous allons étudier les émissions de méthane provenant de la partie sud du site avec la méthode traceur classique et l’inversion statistique paramétrée avec les données du gaz traceur. Pour cela, nous allons utiliser la deuxième série de mesures réalisées sur la route centrale le 17.11.14 durant laquelle la source de traceur était placée en position E (à proximité de la zone de stockage des boues calcinées) avec un vent venant du sud. La méthode traceur nous permet d’estimer les émissions de la zone de stockage des boues calcinées tandis que l’inversion statistique nous donne une estimation des émissions des deux sources de cette partie du site. Dans un second temps, nous nous intéresserons aux émissions des différentes sources de la partie nord de l’unité de traitement des boues d’Achères. Pour cela, nous allons utiliser les deux premières séries de mesures réalisées sur la route au nord du site durant la campagne de novembre avec un vent venant du sud mais également l’ensemble des séries de mesures réalisées au niveau de la route centrale durant la deuxième campagne de mesures avec un vent venant du nord. La méthode traceur nous permet d’estimer les émissions des trois groupes de bassins épaisseurs en utilisant le rapport des maxima de concentrations en traceur et en méthane correspondant à la source étudiée. Pour l’inversion statistique, nous avons utilisé l’ensemble des traversées réalisées durant la seconde campagne de mesures afin d’estimer les émissions des trois groupes de bassins épaisseurs mais également celles des bassins de clarification.

#### 4.2.4.3 Estimations des émissions de méthane provenant de la zone sud de l’unité de traitement des boues d’Achères

##### 4.2.4.3.1 Estimations des émissions de méthane avec la méthode traceur

La deuxième série de mesures réalisées le 17.11.14 nous a permis d’estimer les émissions de méthane de la zone de stockage des boues calcinées. Pour cela, la source d’acétylène était placée en position E (voir figure 4.24) et les concentrations au travers du panache d’émission étaient mesurées au niveau de la route 2. Lors de cette série de mesures, le panache d’émission a été traversé 8 fois et 7 de ces traversées ont été utilisées pour l’estimation des émissions. La dernière traversée n’a pas été utilisée car les concentrations associées à la zone de stockage étaient anormalement élevées en comparaison des autres traversées (4 000 ppb contre  $\simeq 2\ 250$  ppb).

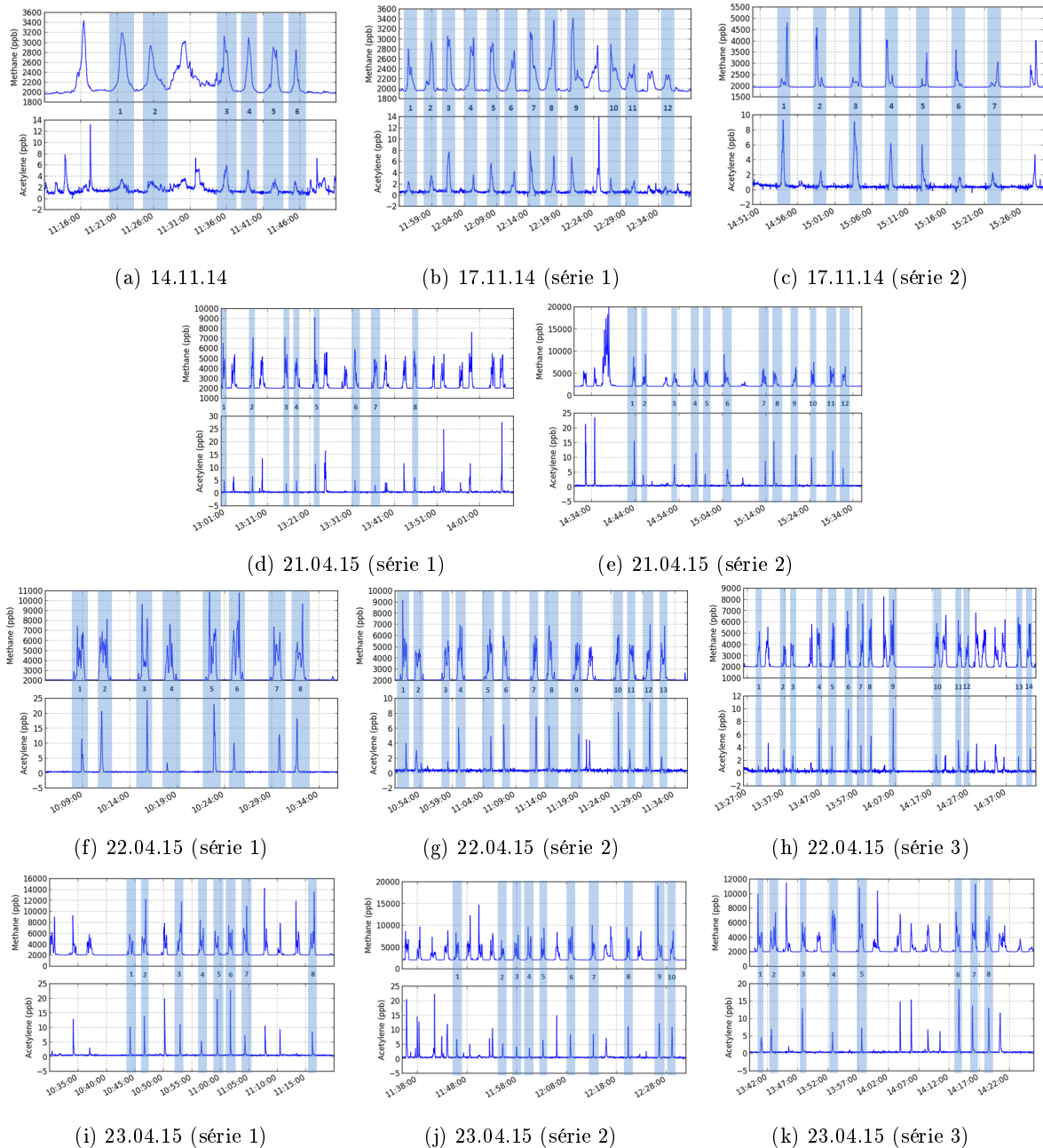


FIGURE 4.26 – Concentrations en méthane et en acétylène mesurées lors des différentes traversées des panaches d'émission provenant de la station d'épuration d'Achères pendant les trois jours de mesures de la campagne de novembre. Les pics surlignés en bleu sont utilisés pour le calcul des émissions en méthane.

La zone sud de l'unité de traitement des boues présentent deux sources de méthane dont les extrémités des panaches d'émission se superposent pour la plupart des traversées. Le rapport  $p_m/p_t$  est donc déterminé en utilisant l'amplitude des signaux associés à la zone de stockage et au traceur. Les résultats obtenus sont regroupés dans le tableau 4.14. La méthode traceur nous permet d'estimer que les émissions de méthane associées à la zone de stockage des boues calcinées sont comprises entre 240 et 1 074  $\text{kg.j}^{-1}$  avec une estimation moyenne de  $518 \pm 106$  (98 ; 41)  $\text{kg.j}^{-1}$ . Le biais associé à la mauvaise colocalisation du traceur et de la source de méthane est estimé avec les OSSEs à de 8 % des estimations des émissions.



TABLE 4.14 – Estimations des émissions de méthane de la zone de stockage des boues calcinées d’Achères calculées grâce à la méthode traceur en utilisant l’amplitude des signaux pour le calcul du rapport  $p_m/p_t$ . Le flux moyen est déterminé à partir des estimations calculées pour chacune des 7 traversées. Les incertitudes sont présentées de a façon suivante : incertitude totale (erreur type sur l’estimation de la moyenne avec un échantillon de dimension finie calculée en divisant l’écart-type des différentes estimations par la racine carrée du nombre de traversées ; biais associé à une mauvaise colocalisation du traceur).

Numéro du pic	1	2	3	4	5	6	7
<b>Estimation des émissions de la zone de stockage des boues calcinées d’Achères</b>							
Estimation des émissions de méthane pour chaque traversée (kg.j <sup>-1</sup> )	240	1 074	275	519	376	562	582
Estimation des émissions de méthane moyenne ± les incertitudes totales (kg.j <sup>-1</sup> )	518 ± 106 (98; 41)						

#### 4.2.4.3.2 Optimisation du modèle gaussien à l’aide des concentrations en traceur mesurées

Durant la campagne de mesures de novembre, notre station météorologique n’a pas fonctionné correctement. De ce fait, les données utilisées pour cette série de mesures viennent du modèle ECMWF qui nous donne une vitesse de vent moyenne de 1,7 m.s<sup>-1</sup>. Dans ces conditions, les classes de stabilité étudiées sont les classes A, B et C. Les augmentations des concentrations en traceur lors de la traversée du panache mesurées et modélisées avec les différentes classes sont intégrées et les écarts relatifs entre ces valeurs sont présentés dans le tableau 4.15. Pour la majorité des cas, la classe de stabilité sélectionnée correspond à celle pour laquelle l’écart relatif entre l’aire mesurée et modélisée est la plus faible. Cependant, la traversée 4 présente deux classes de stabilité dont les écarts relatifs sont très proches : un écart de 30 % avec la classe de stabilité B et un écart de 28 % pour la classe de stabilité C. Pour cette traversée, nous avons donc également pris en compte la forme du panache pour sélectionner la classe la plus adaptée et la classe B s’avère être la plus représentative. Dans ce tableau, on remarque également des écarts relatifs entre les aires sous les profils de concentrations mesurés et modélisés supérieurs à 100 % pour la classe de stabilité C de certaines traversées. Cet écart indique que l’aire sous les signaux modélisés avec cette classe de stabilité est plus de deux fois supérieures à celle sous les signaux mesurés. Pour ces traversées, la classe de stabilité sélectionnée est généralement la classe A.

TABLE 4.15 – Classes de stabilité sélectionnées pour chaque traversée du panache d’émission provenant de la zone sud de l’unité de traitement des boues d’Achères et les écarts relatifs entre les aires sous les signaux mesurés et modélisés avec le modèle gaussien pour les classes de stabilité A, B et C.

Traversée	1	2	3	4	5	6	7
Écart relatif modèle observation avec la classe de stabilité A (%)	57	14	61	53	41	23	21
Écart relatif modèle observation avec la classe de stabilité B (%)	36	72	42	30	7	89	82
Écart relatif modèle observation avec la classe de stabilité C (%)	8	153	16	28	41	182	167
Classe de stabilité sélectionnée	C	A	C	B	B	A	A

#### 4.2.4.3.3 Estimation des émissions de méthane avec l’inversion statistique paramétrée avec les données du gaz traceur

### Configuration de l'inversion statistique

Pour cette inversion statistique, le vecteur de contrôle  $f$  est constitué des flux d'émission des deux sources de la zone sud de l'unité de traitement des boues d'Achères que sont la zone de stockage des boues calcinées et les bassins de clarification. Les émissions de méthane sont supposées constantes durant la série de mesures et uniformément réparties sur la surface des deux sources. Comme pour les inversions précédentes, le signal mesuré est divisé en six parties de même distance et chacun de ces segments est intégré afin de déterminer le vecteur d'observation  $p$ .

Concernant la matrice de transport  $H$ , les fonctions de réponse des deux sources sont modélisées en forçant le modèle gaussien avec un flux unitaire, les classes de stabilité sélectionnées précédemment et les conditions de vent données par le modèle ECMWF. L'exemple des fonctions de réponse obtenues pour la traversée 5 sont présentées sur la figure 4.27. On remarque que les fonctions de réponse des deux sources de méthane de la zone sud de l'unité de traitement des boues d'Achères sont bien séparées et impactent différents segments de la traversée du panache. L'inversion statistique ne devrait donc pas avoir de mal à séparer ces deux sources.

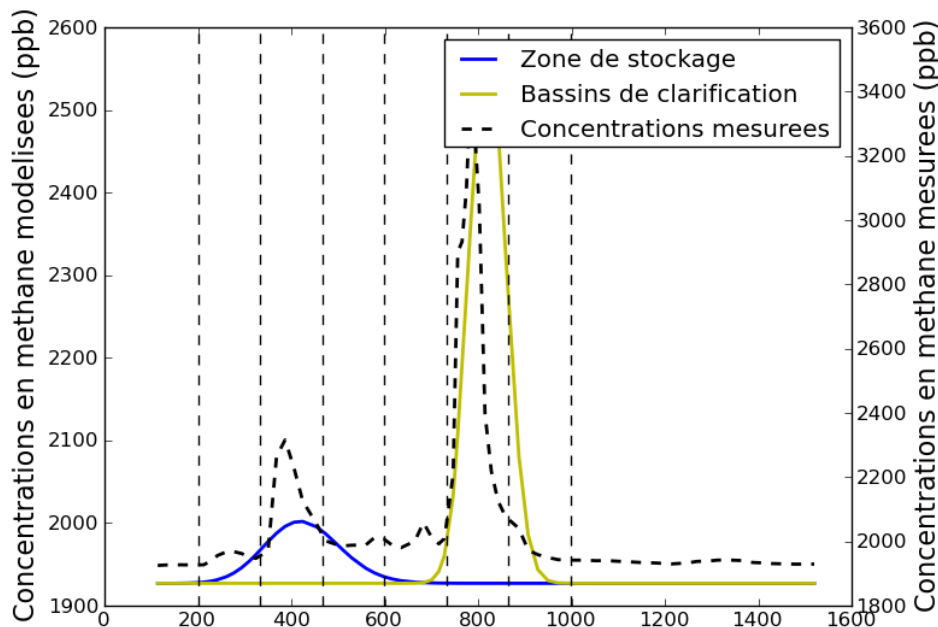
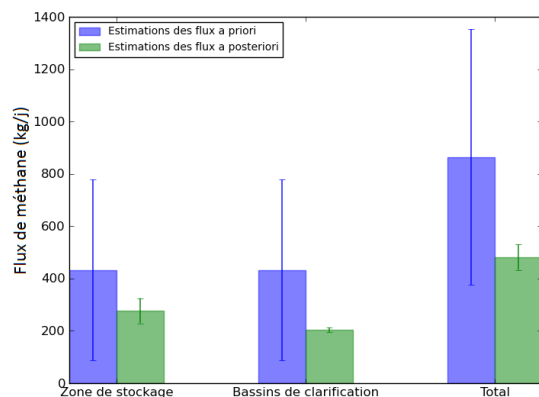


FIGURE 4.27 – Fonctions de réponse des deux sources de méthane de la zone sud de l'unité de traitement des boues d'Achères simulées grâce au modèle gaussien avec les conditions météorologiques de la traversée 5. Les courbes en traits continus correspondent aux concentrations modélisées pour ces deux sources avec un flux unitaire. La courbe en pointillés noirs correspond aux concentrations en méthane mesurées.

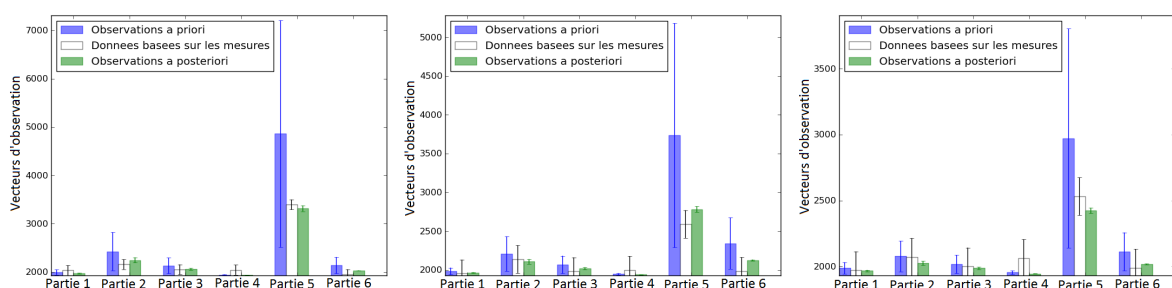
Pour cette inversion, nous avons utilisé l'erreur d'observation moyenne pour les différents segments d'une traversée  $R_{moy}$ . Compte tenu des concentrations en méthane mesurées au travers du panache d'émission de la zone sud de l'unité de traitement des boues d'Achères, les estimations *a priori* des émissions  $f^b$  sont arbitrairement fixées à  $432 \text{ kg.j}^{-1}$  et l'incertitude sur ces estimations *a priori* à 80 % de ces flux.

### Résultats obtenus avec l'inversion statistique

Les émissions totales de méthane de la partie sud de l'unité de traitement des boues d'Achères sont estimées à  $481 \pm 49 \text{ kg.j}^{-1}$  avec l'inversion statistique paramétrée grâce aux données du gaz traceur. Cette estimation est nettement plus faible que celle donnée *a priori*. La forte réduction des incertitudes associées aux estimations *a posteriori* des émissions totales nous permettent d'être confiant quant à la robustesse des résultats obtenus.



(a) Estimations des flux d'émissions de méthane *a priori* et *a posteriori* de la partie sud de l'unité de traitement des boues d'Achères



(b) Traversée 1 simulée avec une classe de stabilité A

(c) Traversée 5 simulée avec une classe de stabilité B

(d) Traversée 7 simulée avec une classe de stabilité C

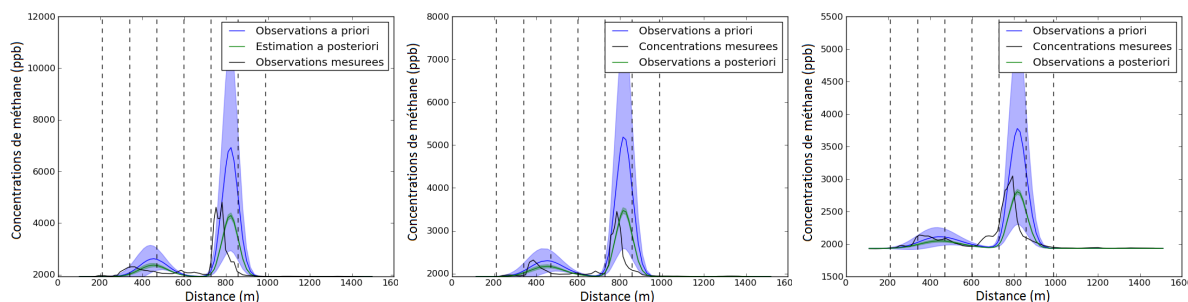


FIGURE 4.28 – Résultats obtenus avec l'inversion statistique pour la partie sud de l'unité de traitement des boues d'Achères. (a) Estimation des flux de méthane *a priori* (bleu) et *a posteriori* (vert) pour les différentes sources mais également pour les émissions totales du site. (b), (c) et (d) Exemple de vecteurs d'observations et de profils de concentrations obtenus grâce aux estimations *a priori* (bleu) et *a posteriori* (vert) des flux avec le modèle gaussien comparés aux concentrations mesurées pour trois traversées, la traversée 1 pour laquelle la classe de stabilité A a été sélectionnée, la traversée 5 avec une classe B et la traversée 7 avec une classe C.

Les exemples de trois traversées du panache d'émission venant de la zone sud de l'unité de traitement des boues d'Achères sont donnés en exemple sur la figure 4.28 : la traversée 1 simulée avec un classe de stabilité A, la traversée 5 avec une classe B et la traversée 7 simulée avec une classe C. Comme pour les inversions précédentes, les graphiques du milieu présentent les vecteurs d'observation modélisés avant (bleu) et après inversion (vert) ainsi que les vecteurs d'observation mesurés (blanc). Les graphiques du dessous présentent en noir les profils de concentrations mesurés au travers du panache d'émission, en bleu les profils modélisés avec les estimations *a priori* et en vert les profils modélisés avec les estimations *a posteriori*. En regardant

ces graphiques, on s'aperçoit que les estimations *a priori* donnent des vecteurs d'observations et des profils de concentrations beaucoup plus importants que ceux mesurés. Les estimations *a posteriori* permettent quant à elles de rapprocher grandement des valeurs mesurées pour les différentes classes de stabilité utilisées.

L'inversion statistique nous permet d'estimer séparément les émissions des deux sources de méthane de la zone sud de l'unité de traitement des boues d'Achères. Comme le montre la figure 4.28a, les émissions de méthane de la zone de stockage des boues calcinées sont estimées à  $277 \pm 48 \text{ kg.j}^{-1}$  et celles des émissions des bassins de clarification à  $204 \pm 9 \text{ kg.j}^{-1}$ . On remarque que l'incertitude associée à l'estimation *a posteriori* des émissions de la zone de stockage des boues est beaucoup plus importante que celle associée aux bassins de clarification. L'estimation des émissions de méthane de la zone de stockage des boues calcinées obtenue avec l'inversion statistique est presque deux fois plus faible que celle obtenue avec la méthode traceur. Comme nous pouvions nous y attendre nous y attendre, les corrélations sur les incertitudes *a posteriori* entre ces deux sources sont proches de zéro nous confirmant que le système ne rencontre pas de difficultés à séparer les deux sources. Cela nous permet d'accorder une confiance relativement importante aux estimations obtenues pour chacune de ces deux sources avec l'inversion statistique et notamment pour la zone de stockage des boues calcinées contrairement à celle obtenue avec la méthode traceur classique du fait de la grande variabilité des estimations obtenues d'une traversée à l'autre avec cette dernière.

#### 4.2.4.4 Estimations des émissions de méthane provenant de la zone nord de l'unité de traitement des boues d'Achères

##### 4.2.4.4.1 Estimations des émissions de méthane avec la méthode traceur

Durant la campagne d'avril, plusieurs séries de mesures ont été réalisées afin d'estimer séparément les émissions des différents bassins épaisseurs présents dans la partie nord de l'unité de traitement des boues d'Achères. Pour ce faire, la source de traceur était successivement placée au centre de chaque groupe de bassins et l'augmentation des concentrations en méthane et en traceur au travers de leur panaches d'émission était mesuré au niveau de la route 2. Du fait du chevauchement des panaches d'émission des différents groupes de bassin, le flux de méthane émis est estimé avec la méthode traceur en utilisant l'amplitude du signal de traceur et du signal de méthane associé au groupe de bassins étudié afin de déterminer le rapport  $p_m/p_t$ . Pour certains groupes de bassins, nous avons réalisé plusieurs séries de mesures au cours des différents jours de la campagne avec différents flux de traceur.

Les résultats sont donnés avec une incertitude totale calculée comme la racine carrée de la somme des carrés de l'erreur type sur l'estimation de la moyenne avec un échantillon de dimension finie et du biais associé à une mauvaise colocalisation du traceur et de la source de méthane estimé avec le modèle gaussien comme décrit avant.

#### Bassins ouest

Nous avons réalisé 4 séries de mesures au niveau des bassins épaisseurs situés au nord-ouest durant trois jours positionnant notre source d'acétylène en position B. Les estimations obtenues pour chaque série de mesures lors des différentes traversées du panache d'émission sont présentées dans le tableau 4.16. Pour chacune de ces séries, le flux moyen est déterminé à partir des estimations calculées pour les différentes traversées et l'incertitude donnée est calculée en divisant l'écart-type des différentes estimations par la racine carrée du nombre de traversées. Les estimations des émissions de méthane obtenues pour chaque traversée lors des différentes séries sont relativement variables puisqu'elles sont comprises entre 161 et 1 555  $\text{kg.j}^{-1}$ . Cette variabilité des estimations de méthane d'une traversée à l'autre dans un même série peut s'expliquer ici, en plus de la variabilité habituelle de la méthode traceur, par la présence de systèmes appelés "nourrices" localisés au centre de chaque groupe de bassins qui dégazent à intervalle régulier du méthane. Les estimations moyennes de ces différentes séries de mesures sont quant à elle relativement proches les unes des autres puisqu'elles sont comprises entre 546 et 649  $\text{kg.j}^{-1}$ . Les deux séries de mesures effectuées le 22.04.15 au niveau de ce groupe de bassins, réalisées l'une à suite de l'autre (et donc dans les mêmes conditions) en modifiant uniquement le flux d'acétylène émis, nous permettent de confirmer que le flux d'acétylène utilisé n'a pas d'influence sur les estimations obtenues. Durant notre campagne de mesure, le flux moyen des bassins épaisseurs situés à l'ouest est donc estimé à  $585 \pm 384$  (51 ; 333)

kg.j<sup>-1</sup>. Le biais lié à la mauvaise colocalisation du traceur et de la source de méthane calculé avec le modèle gaussien est relativement important pour ces bassins et cette position du traceur puisqu'il est de 57 % des estimations des émissions. Une telle valeur est liée au fait que les sources de méthane soient très étendues mais également à la proximité des mesures.

TABLE 4.16 – Estimations des émissions de méthane des bassins épaisseurs ouest d'Achères calculées grâce à la méthode traceur en utilisant l'amplitude des signaux pour le calcul du rapport  $p_m/p_t$ . Le flux moyen est déterminé à partir des estimations calculées pour chacune des traversées.

Numéro du pic	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
<b>Estimation des émissions des bassins épaisseurs ouest</b>													
<b>21.04.15 (série 2)</b>													
Estimation des émissions de méthane pour chaque traversée (kg.j <sup>-1</sup> )	401	858	592	161	1125	504	366	311	576	534	483	639	
Estimation des émissions de méthane moyenne ± les incertitudes totales (kg.j <sup>-1</sup> )	546 ± 319 (70; 311)												
<b>22.04.15 (série 1)</b>													
Estimation des émissions de méthane pour chaque traversée (kg.j <sup>-1</sup> )	606	334	362	1531	320	711	537	299					
Estimation des émissions de méthane moyenne ± les incertitudes totales (kg.j <sup>-1</sup> )	587 ± 361 (136; 335)												
<b>22.04.15 (série 2)</b>													
Estimation des émissions de méthane pour chaque traversée (kg.j <sup>-1</sup> )	542	555	1 555	295	425	385	312	492	388	313	649	330	1 006
Estimation des émissions de méthane moyenne ± les incertitudes totales (kg.j <sup>-1</sup> )	557 ± 331 (95; 317)												
<b>23.04.15 (série 3)</b>													
Estimation des émissions de méthane pour chaque traversée (kg.j <sup>-1</sup> )	870	586	449	1 371	776	185	420	540					
Estimation des émissions de méthane moyenne ± les incertitudes totales (kg.j <sup>-1</sup> )	649 ± 389 (119; 370)												

### Bassins centraux

Nous avons réalisé 3 séries de mesures au niveau des bassins épaisseurs situés au centre, la première le 21.04.15 en positionnant la source de traceur en A et les deux autres le 23.04.15 en plaçant la source de traceur en position A puis en D. Les estimations obtenues pour chaque série de mesures lors des différentes traversées du panache d'émission sont présentées dans le tableau 4.17. Pour chacune de ces séries, le flux moyen est déterminé à partir des estimations calculées pour les différentes traversées et l'incertitude donnée est calculée en divisant l'écart-type des différentes estimations par la racine carrée du nombre de traversées. Les estimations moyennes des émissions de méthane obtenues lors des différentes séries de mesures sont comprises entre 1 078 et 1 950 kg.j<sup>-1</sup> avec une estimation des émissions moyenne durant la campagne de 1 507 ± 592 (125; 467) kg.j<sup>-1</sup>. Le biais lié à la mauvaise colocalisation du traceur et de la source de méthane calculé avec le modèle gaussien est estimé à 31 % des estimations des émissions pour ces bassins et cette position du traceur.

### Bassins est

Les mesures permettant d'estimer les émissions des bassins épaisseurs situés à l'est ont été réalisées le 22.04.16 avec la source de traceur placée en position C. Les estimations obtenues lors des différentes traversées du panache d'émission sont présentées dans le tableau 4.18 et le flux moyen est déterminé à partir des estimations calculées pour les différentes traversées. L'incertitude donnée est calculée en divisant l'écart-type des différentes estimations par la racine carrée du nombre de traversées. Les estimations des émissions de méthane calculées pour les diverses traversées sont assez variables puisqu'elles sont comprises entre 550 et 2 755 kg.j<sup>-1</sup>. Grâce à nos mesures, les émissions de méthane moyennes associées à ce

TABLE 4.17 – Estimations des émissions de méthane des bassins épaisseurs centraux d'Achères calculées grâce à la méthode traceur en utilisant l'amplitude des signaux pour le calcul du rapport  $p_m/p_t$ . Le flux moyen est déterminé à partir des estimations calculées pour chacune des traversées.

Numéro du pic	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
<b>Estimations des émissions des bassins épaisseurs centraux</b>										
<b>21.04.15 (série 1)</b>										
Estimation des émissions de méthane pour chaque traversée (kg.j <sup>-1</sup> )	1 872	1 674	2 474	1 880	720	2 217	2 951	1 814		
Estimation des émissions de méthane moyenne ± les incertitudes totales (kg.j <sup>-1</sup> )	1 950 ± 641 (215; 604)									
<b>23.04.15 (série 1)</b>										
Estimation des émissions de méthane pour chaque traversée (kg.j <sup>-1</sup> )	910	639	1 539	1 581	333	521	1 571	1 527		
Estimation des émissions de méthane moyenne ± les incertitudes totales (kg.j <sup>-1</sup> )	1 078 ± 378 (177; 334)									
<b>23.04.15 (série 2)</b>										
Estimation des émissions de méthane pour chaque traversée (kg.j <sup>-1</sup> )	1 566	1 539	2 824	1 292	1 183	1 888	1 382	1 245	888	1 138
Estimation des émissions de méthane moyenne ± les incertitudes totales (kg.j <sup>-1</sup> )	1 494 ± 490 (162; 463)									

groupe de bassins épaisseurs sont estimées à  $1\,237 \pm 745$  (176; 569) kg.j<sup>-1</sup>. Le biais lié à la mauvaise localisation du traceur et de la source de méthane calculé avec le modèle gaussien est estimé à 46 % des estimations des émissions pour ces bassins et cette position du traceur.

TABLE 4.18 – Estimations des émissions de méthane des bassins épaisseurs est d'Achères calculées grâce à la méthode traceur en utilisant l'amplitude des signaux pour le calcul du rapport  $p_m/p_t$ . Le flux moyen est déterminé à partir des estimations calculées pour chacune des 14 traversées.

Numéro du pic	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14
<b>Estimations des émissions des bassins épaisseurs est</b>														
Estimation des émissions de méthane pour chaque traversée (kg.j <sup>-1</sup> )	2 755	770	1 095	608	849	550	782	1 083	841	1 417	1 211	1 218	2 657	1 487
Estimation des émissions de méthane moyenne ± les incertitudes totales (kg.j <sup>-1</sup> )	1 237 ± 596 (176; 569)													

### Estimations des émissions de méthane de l'ensemble des bassins épaisseurs

Les mesures effectuées le 14.11.16 et le matin du 17.11.16 sur la route située au nord du site nous ont permis d'estimer les émissions en méthane provenant de l'ensemble des bassins épaisseurs de l'unité de traitement des boues d'Achères. À cette distance, les panaches d'émission des trois groupes de bassins se mélangent les uns aux autres et on n'observe qu'un seul pic de concentrations en méthane très étalé. Durant ces deux séries de mesures, la source d'acétylène était localisée respectivement en position A et B. Pour ces deux séries de mesures, j'ai utilisé l'intégration de l'augmentation des concentrations en traceur et en méthane lors de la traversée des panaches d'émission pour déterminer le rapport  $p_m/p_t$  utilisé dans la formule de la méthode traceur étant donné que l'ensemble du signal provenait des sources que nous cherchions à estimer.

Les estimations obtenues pour les différentes traversées du panache réalisées au cours de ces deux jours de mesures sont regroupées dans le tableau 4.19. L'incertitude donnée est calculée en divisant l'écart-type des différentes estimations par la racine carrée du nombre de traversées. Les estimations des émissions de méthane moyennes calculées pour chacun de ces deux jours de mesures sont très proches l'une de l'autre puisqu'elles sont respectivement de  $2\,758 \pm 1488$  (164; 1324) kg.j<sup>-1</sup> et  $2\,693 \pm 1733$  (306; 1427) kg.j<sup>-1</sup>

pour le 14.11.16 et le 17.11.16. En faisant la moyenne de ces deux valeurs, les émissions de l'ensemble des bassins épaisseurs lors de la campagne de novembre sont estimées à 2 725 kg.j<sup>-1</sup>.

TABLE 4.19 – Estimations des émissions de méthane de l'ensemble des bassins épaisseurs d'Achères calculées grâce à la méthode traceur en utilisant l'intégration de l'augmentation des concentrations en traceur et en méthane lors de la traversée des panaches d'émission pour le calcul du rapport  $p_m/p_t$ . Le flux moyen est déterminé à partir des estimations calculées pour chacune des traversées.

Numéro du pic	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
<b>Estimations des émissions de l'ensemble des bassins épaisseurs</b>												
<b>14.11.14</b>												
Estimation des émissions de méthane pour chaque traversée (kg.j <sup>-1</sup> )	2 973	2 465	2 285	3 083	3 364	2 379						
Estimation des émissions de méthane moyenne ± les incertitudes totales (kg.j <sup>-1</sup> )							2 758 ± 1334 (164; 1324)					
<b>17.11.14 (série 1)</b>												
Estimation des émissions de méthane pour chaque traversée (kg.j <sup>-1</sup> )	2 522	2 026	1 416	4 134	1 966	2 091	2 092	2 522	2 995	5 439	2 969	2 152
Estimation des émissions de méthane moyenne ± les incertitudes totales (kg.j <sup>-1</sup> )							2 693 ± 1459 (306; 1427)					

En additionnant les estimations des émissions de méthane des différents bassins épaisseurs obtenues avec les mesures de la campagne d'avril, on estime les émissions de méthane de la zone nord à 3 329 kg.j<sup>-1</sup> sans prendre en compte les émissions des bassins de clarification. Cette estimation est supérieure à celle obtenue lors de la campagne de novembre. Durant la campagne de novembre, les concentrations au travers du panaches d'émission ont été mesurées sur la route située au nord du site, à une distance plus importante que pour la campagne d'avril durant laquelle les concentrations ont été mesurées sur la route 2. Étant donné l'étendue des bassins épaisseurs par rapport à la source de traceur, il est préférable de réaliser les traversées du panache d'émission pour la méthode traceur à une distance suffisamment importante pour que les sources de méthane puissent être assimilées le plus possible d'un point source. Nous aurions donc tendance à faire plus confiance aux estimations obtenues durant la campagne de novembre pour la méthode traceur classique. La variabilité saisonnière des émissions, notamment la différence de température durant ces deux campagnes, peut également en partie expliquer cette différence. En effet, durant la campagne de novembre les températures extérieures étaient d'environ 8 °C alors que pendant la campagne d'avril les températures étaient plutôt situées autour de 19 °C. Or les émissions de méthane d'origine bactérienne sont fortement dépendantes de la température. Il faut également prendre en compte le haut niveau d'incertitudes vis-à-vis des estimations obtenues avec la méthode traceur.

#### 4.2.4.4.2 Estimation des émissions de méthane avec l'inversion statistique paramétrée avec les données du gaz traceur

Pour cette inversion statistique, nous avons essayé d'utiliser un plus grand nombre de traversées du panache d'émission par rapport aux inversions réalisées précédemment en essayant d'inclure un maximum de traversées réalisées durant la campagne de mesures d'avril 2015. Parmi les traversées utilisées pour l'estimation des émissions avec la méthode traceur classique, nous avons sélectionné celles que le modèle gaussien permettait de reproduire correctement et celles dont le profil de concentrations de méthane présentait les quatre pics associés aux différentes sources de la partie nord du site. L'inversion statistique a ainsi été réalisée en utilisant 36 traversées du panache d'émission.

#### Optimisation du modèle gaussien à l'aide des concentrations en traceur

Comme précédemment, nous avons utilisé le modèle gaussien sélectionner la classe de stabilité permettant de représenter le mieux les conditions de stabilité atmosphérique durant chaque traversée. Les classes A, B ou C ont été sélectionnées pour représenter les conditions atmosphériques des différentes traversées utilisées dans l'inversion statistique.

### Configuration de l'inversion statistique

Pour cette inversion statistique, le vecteur de contrôle  $f$  est constitué des flux d'émission des quatre sources de méthane de la zone nord du site : les trois groupes de quatre bassins épaisseurs correspondant à trois sources distinctes et les deux bassins de clarification regroupés en une unique source. Les émissions de méthane sont supposées constantes durant les mesures et uniformément réparties sur la surface de ces deux sources. Les profils de concentrations mesurés lors de chaque traversée sont divisés en six parties de même distance et chacun de ces segments est intégré afin de déterminer le vecteur d'observation  $p$ .

En ce qui concerne la matrice de transport  $H$ , les fonctions de réponse des différentes sources sont modélisées en forçant le modèle gaussien avec un flux unitaire, les classes de stabilité sélectionnées précédemment et les conditions de vent mesurées durant la campagne avec notre station météorologique. L'exemple des fonctions de réponse obtenues pour la traversée 2 de la série 2 du 21.04.15 est présenté sur la figure 4.29. Les fonctions de réponse des différentes sources de méthane de cette partie du site couvrent l'ensemble du profil de concentrations de méthane mesuré et sont relativement bien séparées les unes des autres avec ces conditions météorologiques. Le système ne devrait donc pas avoir de difficultés à les séparer.

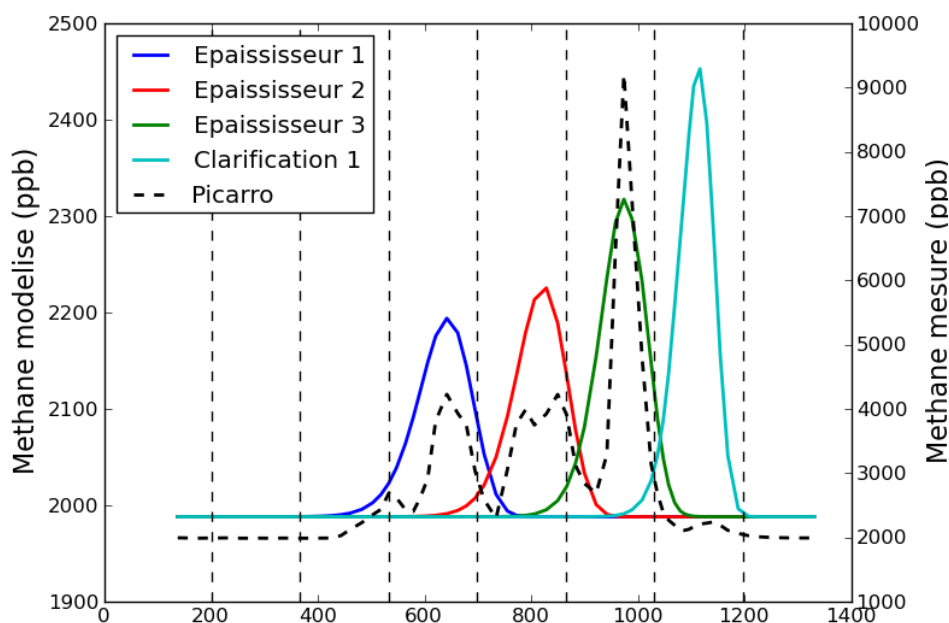


FIGURE 4.29 – Fonctions de réponse des différentes sources de méthane de la partie nord de l'unité de traitement des boues d'Achères simulées grâce au modèle gaussien avec les conditions météorologiques de la traversée 2 de la série 2 du 21.04.15. Les courbes en traits continus correspondent aux concentrations modélisées pour ces deux sources avec un flux unitaire. La courbe en pointillés noirs correspond aux concentrations en méthane mesurées.

Pour cette inversion, nous avons utilisé l'erreur d'observation moyenne pour les différents segments d'une traversée  $R_{moy}$  afin de bien prendre en compte les différents pics de concentrations situés dans les segments au centre des différentes traversées. Les estimations *a priori* des émissions  $f^b$  sont fixées, identiques à chaque source, à  $432 \text{ kg.j}^{-1}$ . L'incertitude sur ces estimations *a priori* est fixée à 80 % de ces flux afin de laisser au système une certaine liberté.

### Résultats obtenus avec l'inversion statistique

Les résultats obtenus avec l'inversion statistique paramétrée grâce aux données du gaz traceur sont présentés sur la figure 4.30a. L'inversion statistique donne une estimation *a posteriori* des émissions



totales de méthane de la partie nord de l'unité de traitement des boues d'Achères de  $2\,569 \pm 26 \text{ kg.j}^{-1}$ . Cette estimation est supérieure à celle donnée *a priori*, juste au-dessus de son enveloppe d'incertitudes. Elle est également inférieure à la somme des estimations des émissions des trois groupes de bassins de la campagne d'avril obtenues avec la méthode traceur classique et relativement proche de celle déterminée avec la méthode traceur lors de la campagne de novembre. Ces résultats tendent à valider la supposition selon laquelle les estimations des émissions totales de la zone nord obtenues durant la campagne de novembre avec la méthode traceur classique sont plus proches de la réalité que celles obtenues en avril avec cette même méthode du fait de la distance plus importante séparant les sources des observations.

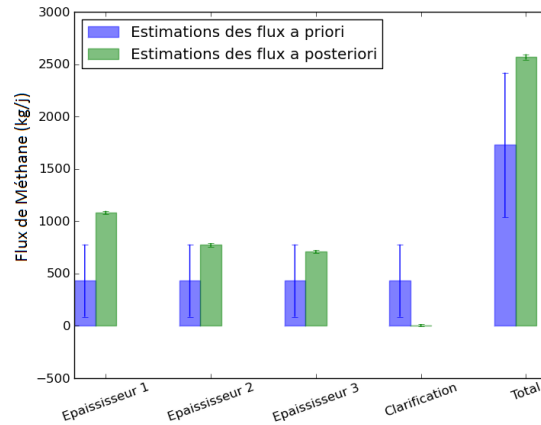
Trois traversées sont présentées en exemple : la traversée 3 de la série 2 du 21.04.15 simulée avec une classe de stabilité A, la traversée 7 de la série 1 du 22.04.15 simulée avec une classe de stabilité B et la traversée 7 de la série 2 du 22.04.15 simulée avec une classe C. Les graphiques situés au centre de la figure 4.30 présentent les vecteurs d'observation utilisés dans l'inversion, à savoir l'aire entre les concentrations de fond de méthane et les concentrations mesurées (blanc) ou modélisées avant (bleu) et après inversion (vert) pour chaque segment. Les profils de concentrations mesurés (noir) et modélisés avant (bleu) et après inversion (vert) sont présentés sur les graphiques inférieurs. Les vecteurs observations simulés en forçant le modèle gaussien avec les estimations *a posteriori* sont globalement plus proches des observations que les vecteurs d'observations simulés avec les estimations *a priori* pour chacune des trois classes de stabilités. Cela se traduit par des profils de concentrations modélisés plus ressemblants même si la forme des profils de concentrations de méthane mesurés, composée de trois pics de concentrations principaux et d'un plus petit pic à 1 200 mètres, et sa variabilité d'une traversée à l'autre ne permet pas de reproduire exactement chacun d'entre eux. La forme des profils de méthane obtenus avec les estimations *a posteriori* reste tout de même globalement très satisfaisante. Il est à noter que le système a des difficultés à reproduire le plus petit pic de concentrations situé à 1 200 mètres. L'estimation des émissions de la source associée à cette partie de la traversée, à savoir les bassins de clarification, risque donc de ne pas correspondre aux émissions réelles.

Les estimations *a posteriori* des émissions de méthane des différentes sources de méthane de la partie nord de l'unité de traitement des boues d'Achères sont présentées sur la figure 4.30a. Les émissions des trois groupes de bassins épaisseurs ont été augmentées suite à l'inversion statistique et sont estimées à  $1\,082 \pm 16 \text{ kg.j}^{-1}$  pour les bassins situés à l'ouest, à  $773 \pm 17 \text{ kg.j}^{-1}$  pour les bassins centraux et à  $709 \pm 5 \text{ kg.j}^{-1}$  pour les bassins situés à l'est. Ces résultats sont relativement différents de ceux obtenus avec la méthode traceur classique puisque cette dernière attribue des émissions de méthane plus importantes aux bassins épaisseurs centraux alors que l'inversion statistique les attribue aux bassins ouest comme on pouvait le suspecter. Ces résultats restent relativement proches de l'enveloppe d'incertitudes donnée à  $1\sigma$  des estimations obtenues avec la méthode traceur. Les émissions de méthane associées aux bassins de clarification sont estimées à  $5 \pm 11 \text{ kg.j}^{-1}$  et sont très différentes de celles trouvées avec l'inversion statistique pour les bassins de partie sud du site ( $204 \pm 9 \text{ kg.j}^{-1}$ ). Avec cette configuration, l'inversion statistique ne reproduit pas du tout les observations associées à cette source car elles sont faibles par rapport aux autres sources et se situent à l'extrémité du panache. En utilisant l'erreur d'observation spécifique à chaque segment de chaque traversée  $R_{indiv}$  pour mieux prendre en compte cette information, l'inversion donne une estimation des émissions de cette de  $16 \pm 5 \text{ kg.j}^{-1}$ , bien loin de l'estimation obtenue avec l'inversion statistique pour les bassins de clarification de la zone sud. Cette différence est difficilement explicable mais il faut tout de même noter que l'amplitude des signaux de méthane mesurés pour ces bassins lors des deux campagnes est très différente puisque lors de la campagne de novembre, l'augmentation des concentrations de méthane lors de la traversée du panache d'émission associé à cette source étaient d'environ 2 500 ppb tandis que durant la campagne d'avril elles étaient de 500 ppb. Cette grosse différence est sûrement à l'origine de l'écart des estimations trouvées.

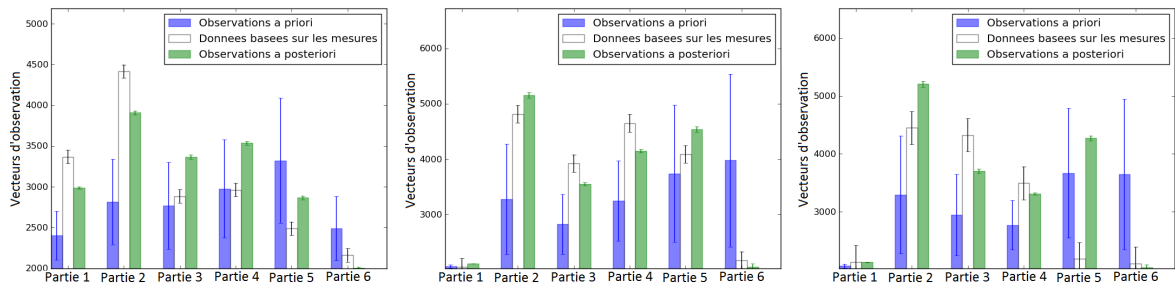
Les fonctions de réponse des différentes sources de méthane laissent à penser que le système n'allait pas avoir de mal à séparer les émissions des différentes sources de méthane de la partie nord du site et l'analyse des corrélations sur les incertitudes *a posteriori* entre ces sources, présentées dans le tableau 4.20, nous permet de confirmer cette supposition.

#### 4.2.4.5 Conclusions

Les deux campagnes de mesures réalisées au sein de l'unité de traitement des boues d'Achères nous ont permis de mettre en œuvre l'inversion statistique paramétrée avec les données du gaz traceur. Les différentes conditions de vent durant ces deux campagnes nous ont permis d'estimer séparément les



(a) Estimations des flux d'émissions de méthane *a priori* et *a posteriori* de la partie nord de l'unité de traitement des boues d'Achères



(b) Traversée 3 de la série 2 du 22.04.15 simulée avec une classe de stabilité A

(c) Traversée 7 de la série 1 du 22.04.15 simulée avec une classe de stabilité B

(d) Traversée 7 de la série 2 du 22.04.15 simulée avec une classe de stabilité C

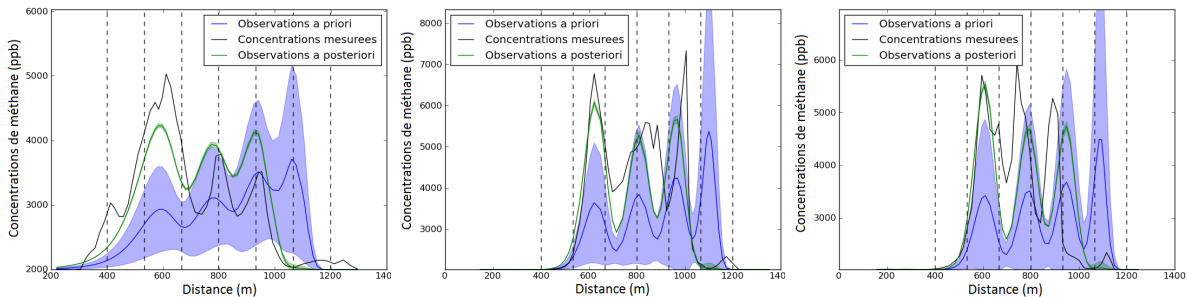


FIGURE 4.30 – Résultats obtenus avec l'inversion statistique pour l'unité de traitement des boues d'Achères. (a) Estimation des flux de méthane *a priori* (bleu) et *a posteriori* (vert) pour les différentes sources mais également pour les émissions totales du site. (b), (c) et (d) Exemple de vecteurs d'observations et de profils de concentrations obtenus grâce aux estimations *a priori* (bleu) et *a posteriori* (vert) des flux avec le modèle gaussien comparés aux concentrations mesurées pour trois traversées, la traversée 6 pour laquelle la classe de stabilité B a été sélectionnée, la traversée 11 avec une classe C et la traversée 7 avec une classe D.

émissions de méthane des différentes sources de la zone nord et la zone sud de ce site. Nous avons ainsi pu montrer que les principales sources de méthane étaient les bassins épaisseur situés dans la partie nord du site avec des émissions totales estimées à environ  $2\,564 \pm 24 \text{ kg.j}^{-1}$  avec l'inversion statistique. Cette estimation est relativement proche de celles obtenues avec la méthode traceur classique durant la campagne de novembre pour l'ensemble de la partie nord du site. En revanche, les estimations obtenues avec la méthode traceur classique pour ces mêmes bassins durant la campagne d'avril sont beaucoup plus

TABLE 4.20 – Corrélations sur les incertitudes *a posteriori* entre les différentes sources de méthane de la partie nord de l’unité de traitement des boues d’Achères.

	Épaisseur 1	Épaisseur 2	Épaisseur 3	Clarification
Épaisseur 1	1,00	-0,11	0,02	-0,01
Épaisseur 2	-0,11	1,00	-0,23	0,06
Épaisseur 3	0,02	-0,23	1,00	-0,28
Clarification	-0,01	0,06	-0,28	1,00

importantes. Cependant, les mesures réalisées durant la campagne d’avril n’ont probablement pas été effectuées à une distance suffisamment importante étant donné l’étendue des sources de méthane étudiée pour que la méthode traceur donne des résultats robustes.

L’inversion statistique nous a permis d’estimer que la zone de stockage des boues calcinées émettait quant à elle  $277 \pm 48 \text{ kg.j}^{-1}$ . Cette estimation est presque deux fois moins importante que celle obtenue avec la méthode traceur classique en laquelle nous n’avons pas vraiment confiance du fait de la grande variabilité des estimations obtenues d’une traversée à l’autre.

En ce qui concerne les bassins de clarification, les estimations obtenues pour les bassins situés dans la partie sud du site avec les mesures réalisées en novembre sont très différentes de celles obtenues pour les bassins de la partie nord avec les mesures réalisées en avril. Les émissions des bassins de clarification de la zone sud ont été estimées à  $204 \pm 9 \text{ kg.j}^{-1}$  avec l’inversion statistique tandis que celles des bassins nord ont été estimées à  $5 \pm 11 \text{ kg.j}^{-1}$ . De telles variations des émissions ne peuvent être justifiées du fait de la variabilité saisonnière. Les émissions totales de méthane de l’unité de traitement des boues d’Achères peuvent donc être estimées à  $2945 \pm 55 \text{ kg.j}^{-1}$ .

## Conclusions sur les émissions de méthane provenant du secteur des déchets

Nous avons réalisé un certain nombre de campagnes de mesures au sein d’installations de stockage de déchets non dangereux et de plusieurs stations d’épuration mais également utilisé des données récoltées durant d’autres projets afin d’estimer leurs émissions de méthane. L’ensemble des résultats obtenus sont regroupés dans le tableau 4.21.

TABLE 4.21 – Récapitulatif des différentes estimations des émissions de méthane, exprimées en  $\text{kg.j}^{-1}$ , obtenues pour l’ensemble des ISDND et des stations d’épuration étudiées.

Installations de stockage des déchets dangereux		Traitement des eaux usées					
Fouju Moisenay 500 - 800		Réseau d’assainissement					
		Bassin stockage	0,5				
Attainville 300 - 500		Stations dépuraton					
			Total	Pré-traitement	Aération	Clarification	Incinerateur
Le Plessis Gassot 9 400 - 16 900		Romans	10 - 19	$2 \pm 1$	$8 \pm 1$	$0,04 \pm 0,01$	$9 \pm 1$
		Valence	17 - 35	$1 \pm 1$	$6 \pm 1$	$0,02 \pm 0,01$	$4 \pm 1$
Monthyon 300 - 900		Cergy	435 ± 42				
		Traitement des boues					
Butte-Bellot 5 813 ± 380 - 2 016 ± 206			Total	Épaisseurs	Stockage	Clarification	
		Achères	2945 ± 55	2564 ± 24	277 ± 48	104 ± 10	
Ipswich 1863							

Pour les ISDND, nous avons utilisé différentes méthodes d’estimation des émissions de méthane en fonction des sites et des mesures réalisées. Nous avons dans un premier temps utilisé une inversion déterministe en utilisant le modèle gaussien et des mesures de concentrations en méthane autour de cinq sites. Durant ces mesures, aucun traceur n’a été émis et les panaches d’émission n’ont été traversés qu’une ou deux fois. Nous avons ainsi pu donner une gamme d’estimation des émissions de méthane en simulant les concentrations avec les deux classes de stabilité permettant de représenter au mieux les conditions de stabilité de l’atmosphère selon les conditions météorologiques des campagnes. Ces gammes d’estimation ont ensuite été comparées aux valeurs données dans le registre français des émissions polluantes pour

les années précédentes. Cette étude nous a permis de constater que les émissions de méthane sont très variables d'un site à l'autre mais également d'une année à l'autre du fait de la quantité de déchets pris en charge par ces sites (fourchette totale :  $300 \text{ kg.j}^{-1}$  -  $16\,900 \text{ kg.j}^{-1}$ ). Ce type de campagne de mesures combiné à une inversion déterministe permet de donner un ordre de grandeur des émissions d'un site mais ne permet pas de donner d'estimations suffisamment précises pour satisfaire aux objectifs de cette thèse.

Lors d'une autre campagne, nous avons utilisé la méthode traceur pour suivre l'évolution des émissions de méthane d'une ISDND et vérifier l'efficacité des mesures d'atténuation mises en place pour réduire ces émissions. Nous avons également utilisé avec succès les données fixes récoltées lors d'une campagne de mesures au sein d'une ISDND au Royaume-Uni et couplées à un modèle CFD pour donner une estimation des émissions de méthane de ce site.

Les émissions de méthane survenant lors des différentes étapes du traitement des eaux usées ont été étudiées. Nous avons estimé les émissions moyennes d'un bassin de stockage des eaux usées du réseau d'assainissement de la ville de Romans-sur-Isère à  $0,5 \text{ kg.j}^{-1}$  en multipliant les concentrations à l'intérieur de la canalisation aspirant l'air du bassin fermé par son débit. Les estimations des émissions obtenues pour cette installation se sont révélées nettement inférieures à celles d'une station d'épuration.

Nous avons estimé les émissions totales de trois stations d'épuration et d'une unité de traitement de boues avec la méthode traceur et l'inversion statistique paramétrée avec les données du gaz traceur lorsque la topographie du site le permettait. Concernant les stations d'épuration, pour des débits d'eaux usées traitées à peu près similaires, nous avons trouvé des estimations des émissions de méthane très différentes. En effet, les émissions des sites de Valence et de Romans-sur-Isère ont été estimées entre  $10$  et  $35 \text{ kg.j}^{-1}$  toutes méthodes confondues alors que celles de la station d'épuration de Cergy ont été estimées à  $545 \text{ kg.j}^{-1}$  avec la méthode traceur classique. Cela montre qu'il existe une certaine variabilité d'un site à l'autre et que le débit journalier d'eaux traitées n'est pas l'unique facteur à prendre en compte pour savoir si une station d'épuration émet plus ou moins de méthane. Nous avons utilisé l'inversion statistique paramétrée avec les données du gaz traceur pour les sites de Valence et de Romans-sur-Isère pour estimer les émissions des différentes étapes du traitement des eaux usées. Pour chacun des deux sites, l'inversion a mis en évidence l'importance des émissions provenant des incinérateurs de boues et des bassins d'aération.

Les campagnes de mesures réalisées à Achères ont permis de quantifier les émissions des différentes étapes de traitement des boues. Les conditions météorologiques durant ces campagnes étaient optimales pour le déploiement de l'inversion statistique paramétrée avec les données du gaz traceur et nous ont permis de quantifier les émissions des différentes sources de ce site. Il a ainsi été mis en évidence que les bassins épaisseurs sont la principale source méthane de ce site.

L'ensemble de ces campagnes de mesures nous a permis de vérifier que les installations de stockage des déchets non dangereux étaient les principaux émetteurs de méthane du secteur des déchets. Les émissions associées à ce type de sites sont très variables d'un site à l'autre mais aussi d'une année à l'autre et peuvent être comprises dans une fourchette de  $300$  à  $16\,900 \text{ kg.j}^{-1}$ . Les émissions journalières déterminées pour ces différents sites sont donc très variables. Les émissions des stations d'épuration sont relativement moins importantes que celles des ISDND mais tout aussi variables avec des émissions comprises entre  $10$  et  $2\,945 \text{ kg.j}^{-1}$ . Nous avons pu mettre en évidence que les étapes du traitement qui émettaient le plus de méthane étaient les bassins d'aération et la gestion des boues produites lors du traitement.



---

# Conclusions et perspectives

## Sommaire

---

5.1	Conclusions . . . . .	138
5.2	Perspectives . . . . .	140

---

## 5.1 Conclusions

L'objectif de cette thèse était de développer une méthode d'estimation des émissions de méthane provenant de sites industriels robuste et fiable et de la confronter à d'autres approches atmosphériques ou à des inventaires, mais également de réaliser un certain nombre de campagnes de mesures afin d'améliorer les connaissances des émissions provenant de plusieurs sites industriels. Parmi les différentes méthodes testées, on trouve notamment la méthode traceur qui consiste à émettre un gaz appelé "traceur" à un flux donné de façon colocalisée à une source de méthane et de mesurer les concentrations de ces deux espèces au travers de leur panache d'émission. Le rapport des signaux de méthane et de traceur multiplié au flux connu du traceur permet d'estimer les émissions de la source de méthane (voir chapitre 2.1). D'autres méthodes font appel à des modèles pour simuler le transport du méthane de sa source jusqu'à l'endroit où sont réalisées les mesures et permettent de retrouver les émissions à partir des observations. C'est notamment le cas de deux méthodes que nous avons utilisées dans cette étude : l'inversion déterministe gaussienne avec des mesures mobiles (section 4.1.2) et l'inversion déterministe avec un modèle CFD et des mesures fixes (section 4.1.4). Les sites industriels choisis sont pertinents pour l'étude du cycle du méthane en région développées : les exploitations agricoles, l'industrie du gaz naturel et l'industrie de la gestion des déchets solides et liquides représentant respectivement 66 %, 4 % et 27% des émissions totales de méthane en France en 2014.

La méthode originale proposée dans ma thèse est basée sur la combinaison de la méthode traceur, d'un modèle de transport atmosphérique gaussien faisant le lien entre les émissions des sites et les mesures des concentrations atmosphériques et d'une inversion statistique. Cette méthode requiert des mesures atmosphériques que j'ai pu effectuer dans le cadre de projets de recherche sur différents sites industriels. La nouveauté de cette approche réside dans l'utilisation de l'information apportée par les mesures d'un gaz traceur sur le transport atmosphérique pour optimiser les paramétrisations du modèle gaussien. Notre approche permet également de déterminer l'erreur associée au modèle dans le cadre de l'inversion statistique. L'association de ces différentes techniques à l'ambition de compenser les limites rencontrées pour chacune d'entre elles lorsqu'elles sont utilisées séparément.

Pour mettre en œuvre cette méthode, plusieurs étapes ont été nécessaires. J'ai tout d'abord pris en main les différents modèles et effectué les développements informatiques nécessaires pour assembler la méthode. En préparation des nombreuses campagnes effectuées pendant cette thèse, j'ai en parallèle réalisé des tests sur l'instrument de mesure des concentrations atmosphériques en méthane et en traceur utilisé afin de m'assurer de ses capacités analytiques et vérifier qu'il pouvait être utilisé pour des applications mobiles. La méthode a ensuite été testée dans un cas académique grâce à des émissions contrôlées de points sources de méthane et de traceur suivant différentes configurations afin d'étudier la robustesse de cette méthode par rapport à la méthode traceur classique. Ces essais m'ont permis de montrer que l'inversion statistique paramétrée par les données du gaz traceur donne de meilleurs résultats que la méthode traceur classique lorsque les sources de traceur et de méthane ne sont pas parfaitement colocalisées, ce qui est souvent le cas dans les sites industriels réels où les sources de méthane sont rarement parfaitement ponctuelles. Ainsi l'erreur relative entre les estimations des émissions obtenues et les flux réellement émis passent de 29 % avec la méthode traceur classique à 8 % avec l'inversion statistique pour une source de traceur placée à 60 mètres en amont dans le sens du vent de celle de méthane. L'inversion statistique présente également l'avantage de permettre de donner une estimation séparée des différentes sources d'un site contrairement à la méthode traceur classique qui ne fournit qu'une estimation de la source totale échantillonnée par la mesure.

La méthode a ensuite été appliquée à deux sites réels, l'une au sein d'un élevage bovin et l'autre dans une installation de distribution de gaz, connus pour leurs émissions de méthane afin de tester son applicabilité et sa robustesse dans des conditions plus complexes de répartition des sources de méthane. L'inversion statistique paramétrée avec les données du gaz traceur donne des estimations robustes des émissions totales de méthane de chacun de ces deux sites tout en prenant en compte la localisation de la source de traceur par rapport aux sources de méthane. Les émissions totales de méthane de l'exploitation agricole de Grignon ont été estimées en moyenne à  $222 \pm 7 \text{ kg.j}^{-1}$  et celles de l'installation de distribution de gaz à  $572 \pm 62 \text{ kg.j}^{-1}$ . Il a également pu être montré que le choix des estimations *a priori* des flux utilisés lors de l'inversion n'avait pas d'influence sur l'estimation *a posteriori* des émissions totales. Ces estimations *a priori* sont toutefois très importantes pour l'estimation séparées des différentes sources de méthane d'un site qui reste relativement délicate. En effet, suivant la localisation des différentes sources et les conditions de vent rencontrées, il peut être difficile de séparer les sources les unes des autres.

L'analyse des corrélations sur les incertitudes *a posteriori* entre les différentes sources nous a permis de diagnostiquer ces problèmes de séparabilité des sources. La réalisation de mesures dans des conditions de vent différentes doit permettre de mieux séparer les sources d'un site.

Dans la suite de mon travail, je me suis concentré sur un secteur important des émissions de méthane en Europe : le secteur des déchets solides et liquides responsable de 27 % des émissions de méthane anthropique en France. J'ai ainsi réalisé six campagnes de mesures au sein et autour d'installations de stockage des déchets non dangereux et quatre campagnes dans des stations d'épuration. J'ai également traité et analysé les données récoltées lors de deux autres campagnes auxquelles je n'ai pas participé dans le cadre du projet Carbocount City et de ma mobilité à l'université de Manchester, tous deux financés par la KIC-Climat. Différentes méthodes d'estimation des émissions de méthane ont été utilisées en fonction des contraintes de chaque site et des possibilités offertes par chaque campagne, dont la méthode développée dans cette thèse. Nous avons pu mettre en évidence la grande variabilité des émissions de méthane d'un site à l'autre aussi bien au niveau des installations de stockage des déchets non dangereux que des stations d'épuration. Ainsi les émissions journalières trouvées s'étalent entre environ  $20 \text{ kg.j}^{-1}$  pour certaines stations d'épuration comme celle de Valence ou de Romans-sur-Isère et environ  $15\,000 \text{ kg.j}^{-1}$  pour certaines ISDND comme celle du Plessis Gassot. Concernant les ISDND, trois méthodes d'estimation ont été utilisées suivant les sites : l'inversion déterministe associant des données mobiles et un modèle gaussien développée pour cette thèse, la méthode traceur classique et une inversion déterministe associant des mesures fixes et un modèle CFD, plus sophistiqué que le modèle gaussien et mieux adapté aux sites à la topographie plus complexe. L'inversion déterministe avec un modèle gaussien a permis de donner rapidement un ordre de grandeur des émissions de méthane d'une multitude de sites sans atteindre le niveau de précision attendu dans le cadre de notre étude. Cette approche permet de rapidement détecter les sites s'écartant des niveaux d'émissions attendus (données industrielles ou inventaires) pour y revenir au besoin et mettre en œuvre des méthodes plus précises. La méthode traceur et l'inversion déterministe avec des mesures fixes et un modèle gaussien ont quant à elles permis d'estimer plus précisément les émissions de méthane de ces sites. Le déploiement de la méthode traceur au sein de l'ISDND de la Butte-Bellot durant plusieurs mois a également permis de mettre en évidence l'efficacité de certaines mesures mises en place pour réduire ces émissions. Nous avons constaté que les mesures de réduction mises en œuvre par l'industriel conduisent à une réduction de 65 % des émissions du site, illustrant le niveau de réduction que l'on pourrait atteindre généralisant ces approches en les adaptant aux processus et à la taille des installations.

Un certain nombre de campagnes de mesures ont également été réalisées au sein de stations d'épuration afin d'estimer les émissions de méthane des différents procédés de traitement. Pour cela, nous avons utilisé la méthode traceur paramétrée avec les données du gaz traceur lorsque le site le permettait. Nous avons pu mettre en évidence que les émissions associées aux bassins de stockage installés au sein des réseaux d'assainissement sont négligeables par rapport aux émissions des stations d'épuration. Nous avons également mis en évidence une certaine variabilité des émissions de méthane d'une station d'épuration à l'autre (qui peut typiquement varier d'un facteur 25) pour des débits traités relativement proches. Il pourrait donc être intéressant d'étendre cette étude à un plus grand nombre de stations afin de confirmer et de mieux comprendre cette variabilité. L'inversion statistique paramétrée par les données du gaz traceur a également été appliquée à une unité de traitement des boues d'épuration dans de bonnes conditions et a ainsi permis d'estimer précisément les émissions des différentes sources de méthane du site. Il a ainsi été mis en évidence que les principales émissions de méthane provenaient des bassins épaisseur situés dans la partie nord du site. Compte tenu des quantités de méthane produite, la couverture de ces bassins permettrait de réduire drastiquement les émissions de méthane du site et de valoriser du biogaz émis en énergie renouvelable. La méthode développée pour cette thèse ouvre donc des perspectives intéressantes concernant l'estimation des différents contributeurs aux émissions de méthane d'un site industriel.

Il est possible d'extraire de ce travail de thèse un certain nombre de recommandations importantes pour l'estimation des émissions de méthane d'un site industriel. Il faut tout d'abord adapter tant que faire se peut la méthode employée à la complexité du site (topographie, nombre de sources, routes à proximité...). L'inversion statistique paramétrée avec les données du gaz traceur avec un modèle gaussien apparaît bien adaptée pour des sites à sources multiples, peu complexe en termes de topographie et disposant de routes sous le vent du site à distance suffisante pour mesurer une augmentation des concentrations en méthane suffisamment importante ( $> 10 \text{ ppb}$ ) lors de la traversée du panache d'émission provenant du site. Il est préférable si possible de disposer de plusieurs routes autour du site afin de ne pas être



trop dépendant de la direction du vent pour la réalisation des mesures mais aussi pour pouvoir mieux séparer les différentes sources du site. Il faut également faire attention à ce que ces routes ne présentent pas de virages trop importants susceptibles de perturber les traversées de panache. Il est également nécessaire d'avoir un accès au site relativement facile afin de pouvoir s'y rendre lorsque les conditions météorologiques sont propices aux mesures et il faut de s'assurer que l'émission d'acétylène ne pose aucun problème à l'exploitant. Une fois toutes les conditions réunies, il est important de répéter la traversée du panache d'émission plusieurs fois, entre 10 et 20 fois, afin de réduire les erreurs aléatoires associées aux erreurs liées aux mesures, au modèle et à la mauvaise colocalisation du traceur d'une traversée à l'autre et d'obtenir une estimation moyenne. Un certain nombre de traversées sont fréquemment mises de côté durant le traitement des données et il est important de réaliser l'inversion statistique avec le plus de traversées possible. Il est également intéressant de renouveler les mesures sous plusieurs directions de vent afin d'aider le système à bien séparer les différentes sources présentes au sein d'un site.

Comme dans toute méthode d'inversion, plus on peut réunir d'information *a priori* sur le site, sur ses émissions estimées par les inventaires ou des mesures préalables faites sur le site, sur les erreurs et corrélations entre sources liées au processus d'émission, plus on obtiendra des résultats robustes. Ce travail préalable à celui de modélisation et d'inversion est indispensable même s'il n'est pas toujours possible de le mener complètement comme on l'a vu dans cette thèse. Il faut alors faire preuve de pragmatisme tout en étant bien conscient des limitations de la méthode choisie au final.

## 5.2 Perspectives

Un certain nombre de pistes peuvent être envisagées afin de poursuivre les travaux réalisés dans ce manuscrit et d'améliorer la nouvelle méthode d'estimation des émissions à l'échelle locale présentées ici.

### Méthodes avec d'autres instruments

Dans cette étude, nous avons utilisé un analyseur CRDS pour mesurer les concentrations en méthane au travers des panaches d'émission des différents sites étudiés. Cet instrument présente l'avantage de fournir des mesures d'une grande précision mais coûte cher. En considérant les anomalies de concentration relativement importantes mesurées durant certaines des différentes campagnes présentées dans ce manuscrit, on s'aperçoit qu'une telle précision n'est pas toujours indispensable et qu'il pourrait être intéressant d'essayer d'utiliser d'autres d'instruments un peu moins précis que l'analyseur CRDS. En effet, si on prend l'exemple de l'ISDND de la Butte-Bellot ou de l'unité de traitement des boues d'Achères pour lesquelles l'amplitude des signaux de méthane était comprise entre 500 et 3 000 ppb, un instrument avec une précision de 50-100 ppb serait suffisant. Il conviendrait alors d'adapter l'instrument utilisé à l'amplitude des émissions du site étudié. L'utilisation d'instruments de mesures moins coûteux pourrait permettre de réaliser un plus grand nombre de campagnes en parallèle ou bien d'installer plusieurs instruments sur un site afin de suivre l'évolution des concentrations en continu (voir section suivante).

### Application de la méthode à d'autres gaz

Il pourrait également être intéressant d'utiliser cette méthode pour quantifier les émissions à l'échelle locale d'autres espèces que le méthane. Pour cela, il est nécessaire de disposer d'instruments de mesures capables de mesurer en continu les concentrations de l'espèce en question de façon suffisamment précise pour détecter l'augmentation de ses concentrations au travers du panache d'émission du site. L'instrument doit également être adapté aux mesures mobiles en pouvant être facilement déplacé et ne pas être affecté par les secousses survenant sur la route. Le choix de l'espèce étudiée dépendra également de ses sources d'émission qui ne devront pas être liées au trafic routier et devra être suffisamment stable dans l'atmosphère aux échelles de temps considérées. Il faudra également veiller à adapter le choix du gaz traceur à l'espèce étudiée afin que tous deux aient le même comportement dans l'air. Le sulfure d'hydrogène ( $H_2S$ ) est l'une des espèces auxquelles nous pourrions penser pour ce type de mesures puisqu'il fait partie des polluants atmosphériques non réglementés à l'heure actuelle mais qui est toutefois surveillé du fait de la mauvaise odeur qui le caractérise. Le protoxyde d'azote ( $N_2O$ ), important gaz à effet de serre également émis par les installations de traitement de déchets, serait aussi intéressant à étudier.

### Utilisation d'un modèle de transport plus sophistiqué

Dans cette étude, nous avons fait le choix de coupler nos mesures mobiles à un modèle gaussien dans le cadre d'une inversion statistique. Le modèle gaussien a donné de bons résultats pour la plupart des sites que nous avons étudié puisque ceux-ci étaient situés dans des zones rurales ou péri-urbaines présentant des topographies relativement plates. Cependant, certains sites tels que la station d'épuration de Cergy ou encore les installations de stockage des déchets non dangereux présentent des topographies plus complexes pour lesquelles le modèle gaussien n'est pas adapté. Pour ces sites, il serait intéressant d'utiliser un autre type de modèle susceptible de prendre en compte les topographies et les écoulements plus complexes (modèle CFD par exemple) afin de représenter plus justement la dispersion atmosphérique des polluants étudiés. Il pourrait également être intéressant d'utiliser les deux modèles pour des sites localisés dans des zones plus vallonnées et de comparer les résultats obtenus avec chacun d'entre eux.

### Apport des mesures complémentaires pour séparer les émissions selon leur origine

Au cours des différentes campagnes de mesures présentées dans cette thèse, nous avons eu l'occasion de réaliser des mesures des isotopes du méthane et de COVs en parallèle de la méthode traceur. L'information apportée par ces mesures pourraient être prises en compte pour mieux séparer certaines sources lors de l'inversion statistique. L'utilisation des isotope du méthane pourrait particulièrement bien fonctionner pour des sites présentant des sources d'origines différentes comme une source d'origine biogénique et une source liée à l'exploitation des énergies fossiles. Ce cas de figure reste toutefois relativement rare. Cette méthode pourrait également permettre d'aider à séparer les émissions provenant des différentes sources de la ferme de Grignon puisque les travaux réalisés par C. Yeman (Yeman, 2015) ont permis de montrer que le méthane émis par les vaches, les brebis et le stockage du fumier n'avaient pas la même signature isotopique. De la même façon, l'étude de la composition en COVs peut notamment apporter des éléments de réponse sur des sites tels que les installations de production et de transport de gaz.

### Suivi à une fréquence plus élevée voir en continu

Pour finir, nos estimations des émissions de méthane reposent sur des campagnes de mesures ponctuelles. Il serait vraiment intéressant d'augmenter la fréquence de ces campagnes afin de suivre leur évolution au cours de l'année et de pouvoir calculer des estimations moyennes annuelles qui pourraient être comparées aux valeurs reportées dans les inventaires d'émission. Dans un premier temps, il serait envisageable de mettre en place des campagnes mensuelles pour un site donné. L'augmentation de la fréquence des mesures permettraient de récolter des données pour différentes conditions de vent, ce qui permettrait d'améliorer la séparabilité des différentes sources lors de l'inversion statistique. Pour réduire les coûts, on pourrait mettre en œuvre une instrumentation plus simple en la déployant en plus de points et sur une période plus importante que l'analyseur CRDS. À plus long terme, avec le développement de systèmes de mesures de plus en plus petits et légers, il pourrait être envisagé de placer ces capteurs sur des drones afin pouvoir mesurer les concentrations au travers du panache d'émission à la distance la plus adaptée suivant le site étudié et ce quelques soit la direction du vent. La méthode serait ainsi libérée de sa dépendance à la présence de route autour du site étudié et pourrait être automatisée afin de réaliser des mesures à une fréquence journalière.

Le LSCE est engagé dans plusieurs travaux sur l'estimation des émissions de gaz à effet de serre et de polluants à l'échelle du site ou de l'agglomération. Il s'agit d'une thématique importante dans le contexte de la régulation des émissions et de son contrôle par des méthodes les plus indépendantes possibles des inventaires déclaratifs, dans le cadre de l'application des accords de Paris sur le climat. Ce travail a contribué à documenter des méthodes atmosphériques permettant d'avancer vers de tels objectifs et ces approches seront probablement poursuivies et affinées au LSCE dans les années à venir, notamment dans le cadre du projet de chaire industrielle TRACE.





---

## Bibliographie

- Albertson, J. D., Harvey, T., Foderaro, G., Zhu, P., Zhou, X., Ferrari, S., Amin, M. S., Modrak, M., Brantley, H., and Thoma, E. D. : A Mobile Sensing Approach for Regional Surveillance of Fugitive Methane Emissions in Oil and Gas Production, *Environmental Science & Technology*, 50, 2487–2497, doi :10.1021/acs.est.5b05059, URL <http://dx.doi.org/10.1021/acs.est.5b05059>, 2016.
- Arya, S. P. : *Air Pollution Meteorology and Dispersion*, Oxford University Press, 1999.
- Babilotte, A., Lagier, T., Fiani, E., and Taramini, V. : Fugitive Methane Emissions from Landfills : Field Comparison of Five Methods on a French Landfill, *Journal of Environmental Engineering*, 136, 777–784, doi :10.1061/(ASCE)EE.1943-7870.0000260, URL [http://dx.doi.org/10.1061/\(ASCE\)EE.1943-7870.0000260](http://dx.doi.org/10.1061/(ASCE)EE.1943-7870.0000260), 2010.
- Baldocchi, D., Falge, E., Gu, L., Olson, R., Hollinger, D., Running, S., Anthoni, P., Bernhofer, C., Kenneth, D., Evans, R., Fuentes, J., Goldstein, A., Katul, G., Law, B., Lee, X., Malhi, Y., Meyers, T., Munger, W., Oechel, W., Paw, K. T., Pilegaard, K., Schmid, H. P., Valentini, R., Verma, S., Vesala, T., Wilson, K., and Wofsy, S. : FLUXNET : A New Tool to Study the Temporal and Spatial Variability of Ecosystem–Scale Carbon Dioxide, Water Vapor, and Energy Flux Densities, *Bulletin of the American Meteorological Society*, 82, 2415–2434, 2001.
- Bocquet, M. : An introduction to inverse modelling and parameter estimation for atmosphere and ocean sciences, vol. Special Issue, pp. 461–493, 2012.
- Bort, R. and Langeron, J. : *Rapport National d’Inventaire pour la France au titre de la Convention cadre des Nations Unies sur les changements climatiques et du protocole de Kyoto*, CITEPA, 2016.
- Bousquet, P., Ciais, P., Miller, J. B., Dlugokencky, E. J., Hauglustaine, D. A., Prigent, C., Van der Werf, G. R., Peylin, P., Brunke, E.-G., Carouge, C., Langenfelds, R. L., Lathière, J., Papa, F., Ramonet, M., Schmidt, M., Steele, L. P., Tyler, S. C., and White, J. : Contribution of anthropogenic and natural sources to atmospheric methane variability, *Nature*, 443, 439–443, doi :10.1038/nature05132, URL <http://www.nature.com/nature/journal/v443/n7110/abs/nature05132.html>, 2006.
- Broquet, G., Chevallier, F., Rayner, P., Aulagnier, C., Pison, I., Ramonet, M., Schmidt, M., Vermeulen, A. T., and Ciais, P. : A European summertime CO<sub>2</sub> biogenic flux inversion at mesoscale from continuous in situ mixing ratio measurements, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 116, D23 303, doi :10.1029/2011JD016202, URL <http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1029/2011JD016202/abstract>, 2011.
- Buccolieri, R. and Sabatino, S. D. : MUST experiment simulations using CFD and integral models, *International Journal of Environment and Pollution*, 44, 376–384, doi :10.1504/IJEP.2011.038439, URL <http://www.inderscienceonline.com/doi/abs/10.1504/IJEP.2011.038439>, 2011.

- Chen, I.-C., Hegde, U., Chang, C.-H., and Yang, S.-S. : Methane and carbon dioxide emissions from closed landfill in Taiwan, *Chemosphere*, 70, 1484–1491, doi :10.1016/j.chemosphere.2007.08.024, URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0045653507010491>, 2008.
- Chevallier, F. : On the statistical optimality of CO<sub>2</sub> atmospheric inversions assimilating CO<sub>2</sub> column retrievals, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 11 133–11 145, doi :10.5194/acp-15-11133-2015, URL <http://www.atmos-chem-phys.net/15/11133/2015/>, 2015.
- Chevallier, F., Fisher, M., Peylin, P., Serrar, S., Bousquet, P., Bréon, F.-M., Chédin, A., and Ciais, P. : Inferring CO<sub>2</sub> sources and sinks from satellite observations : Method and application to TOVS data, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 110, D24 309, doi :10.1029/2005JD006390, URL <http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1029/2005JD006390/abstract>, 2005.
- Chevallier, F., Bréon, F.-M., and Rayner, P. J. : Contribution of the Orbiting Carbon Observatory to the estimation of CO<sub>2</sub> sources and sinks : Theoretical study in a variational data assimilation framework, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 112, D09 307, doi :10.1029/2006JD007375, URL <http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1029/2006JD007375/abstract>, 2007.
- Czepiel, P. M., Crill, P. M., and Harriss, R. C. : Methane emissions from municipal wastewater treatment processes, *Environmental Science & Technology*, 27, 2472–2477, doi :10.1021/es00048a025, URL <http://dx.doi.org/10.1021/es00048a025>, 1993.
- Czepiel, P. M., Mosher, B., Harriss, R. C., Shorter, J. H., McManus, J. B., Kolb, C. E., Allwine, E., and Lamb, B. K. : Landfill methane emissions measured by enclosure and atmospheric tracer methods, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 101, 16 711–16 719, doi :10.1029/96JD00864, URL <http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1029/96JD00864/abstract>, 1996.
- Daelman, M. R., van Voorthuizen, E. M., van Dongen, U. G., Volcke, E. I., and van Loosdrecht, M. C. : Methane emission during municipal wastewater treatment, *Water Research*, 46, 3657–3670, doi :10.1016/j.watres.2012.04.024, URL <http://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S0043135412002795>, 2012.
- Di Bella, G., Di Trapani, D., and Viviani, G. : Evaluation of methane emissions from Palermo municipal landfill : Comparison between field measurements and models, *Waste Management*, 31, 1820–1826, doi :10.1016/j.wasman.2011.03.013, URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0956053X11001279>, 2011.
- Doury, A. : Une méthode de calcul pratique et générale pour la prévision des pollutions véhiculées par l’atmosphère, Rapport CEA-R-4280, 1976.
- EC-JRC/PBL : Emission Database for Global Atmospheric Research (EDGAR), release version 4.2, available at : <http://edgar.jrc.ec.europa.eu/overview.php?v=42> (last access : July 2015), 2011.
- EEA : Annual European Union greenhouse gas inventory 1990-2011 and inventory report, Tech. rep., European Environmental Agency, Copenhagen, Denmark, 2013.
- Eskridge, R. E., Binkowski, F. S., Hunt, J. C. R., Clark, T. L., and Demerjian, K. L. : Highway Modeling. Part II : Advection and Diffusion of SF<sub>6</sub> Tracer Gas, *Journal of Applied Meteorology*, 18, 401–412, 1979.
- Etheridge, D. M., Steele, L. P., Francey, R. J., and Langenfelds, R. L. : Atmospheric methane between 1000 A.D. and present : Evidence of anthropogenic emissions and climatic variability, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 103, 15 979–15 993, doi :10.1029/98JD00923, URL <http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1029/98JD00923/abstract>, 1998.
- Goetz, J. D., Floerchinger, C., Fortner, E. C., Wormhoudt, J., Massoli, P., Knighton, W. B., Herndon, S. C., Kolb, C. E., Knipping, E., Shaw, S. L., and DeCarlo, P. F. : Atmospheric Emission Characterization of Marcellus Shale Natural Gas Development Sites, *Environmental Science & Technology*, 49, 7012–7020, doi :10.1021/acs.est.5b00452, URL <http://dx.doi.org/10.1021/acs.est.5b00452>, 2015.

- Graedel, T. E. and McRae, J. E. : On the possible increase of the atmospheric methane and carbon monoxide concentrations during the last decade, *Geophysical Research Letters*, 7, 977–979, doi :10.1029/GL007i011p00977, URL <http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1029/GL007i011p00977/abstract>, 1980.
- Guisasola, A., de Haas, D., Keller, J., and Yuan, Z. : Methane formation in sewer systems, *Water Research*, 42, 1421–1430, doi :10.1016/j.watres.2007.10.014, URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0043135407006483>, 2008.
- Gurney, K. R., Law, R. M., Denning, A. S., Rayner, P. J., Baker, D., Bousquet, P., Bruhwiler, L., Chen, Y.-H., Ciais, P., Fan, S., Fung, I. Y., Gloor, M., Heimann, M., Higuchi, K., John, J., Maki, T., Maksyutov, S., Masarie, K., Peylin, P., Prather, M., Pak, B. C., Randerson, J., Sarmiento, J., Taguchi, S., Takahashi, T., and Yuen, C.-W. : Towards robust regional estimates of CO<sub>2</sub> sources and sinks using atmospheric transport models, *Nature*, 415, 626–630, doi :10.1038/415626a, URL <http://www.nature.com/nature/journal/v415/n6872/abs/415626a.html>, 2002.
- Hanson, R. S. and Hanson, T. E. : Methanotrophic bacteria., *Microbiological Reviews*, 60, 439–471, URL <http://mbr.asm.org/content/60/2/439>, 1996.
- Hegde, U., Chang, T.-C., and Yang, S.-S. : Methane and carbon dioxide emissions from Shan-Chu-Ku landfill site in northern Taiwan, *Chemosphere*, 52, 1275–1285, doi :10.1016/S0045-6535(03)00352-7, URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0045653503003527>, 2003.
- Hensen, A. and Scharff, H. : Methane Emission Estimates from Landfills Obtained with Dynamic Plume Measurements, *Water, Air and Soil Pollution : Focus*, 1, 455–464, doi :10.1023/A :1013162129012, URL <http://link.springer.com/article/10.1023/A:1013162129012>, 2001.
- IPCC : Climate Change 2007 : The physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 2007.
- IPCC : Climate Change 2013 : The physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 2013.
- Johnson, K. A. and Johnson, D. E. : Methane emissions from cattle., *Journal of animal science*, 73, 2483–2492, doi :10.2527/1995.7382483x, URL <https://dl.sciencesocieties.org/publications/jas/abstracts/73/8/2483>, 1995.
- Korsakissok, I. : Changements d'échelle en modélisation de la qualité de l'air et estimation des incertitudes associées. Thèse de doctorat de l'université de Paris-Est., Ph.D. thesis, 2009.
- Korsakissok, I. and Mallet, V. : Comparative Study of Gaussian Dispersion Formulas within the Polyphemus Platform : Evaluation with Prairie Grass and Kincaid Experiments, *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 48, 2459–2473, doi :10.1175/2009JAMC2160.1, URL <http://journals.ametsoc.org/doi/abs/10.1175/2009JAMC2160.1>, 2009.
- Krinner, G., Viovy, N., de Noblet-Ducoudré, N., Ogée, J., Polcher, J., Friedlingstein, P., Ciais, P., Sitch, S., and Prentice, I. C. : A dynamic global vegetation model for studies of the coupled atmosphere-biosphere system, *Global Biogeochemical Cycles*, 19, GB1015, doi :10.1029/2003GB002199, URL <http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1029/2003GB002199/abstract>, 2005.
- Lamb, B. K., Lorenzen, A., and Shair, F. H. : Atmospheric dispersion and transport within coastal regions—part I. Tracer study of power plant emissions from the Oxnard Plain, *Atmospheric Environment (1967)*, 12, 2089–2100, doi :10.1016/0004-6981(78)90164-6, URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0004698178901646>, 1978.
- Lamb, B. K., McManus, J. B., Shorter, J. H., Kolb, C. E., Mosher, B., Harriss, R. C., Allwine, E., Blaha, D., Howard, T., Guenther, A., Lott, R. A., Siverson, R., Westburg, H., and Zimmerman, P. : Development of Atmospheric Tracer Methods To Measure Methane Emissions from Natural Gas Facilities and Urban Areas, *Environmental Science & Technology*, 29, 1468–1479, doi :10.1021/es00006a007, URL <http://dx.doi.org/10.1021/es00006a007>, 1995.

- Lelieveld, J., Crutzen, P. J., and Dentener, F. J. : Changing concentration, lifetime and climate forcing of atmospheric methane, *Tellus B*, 50, 128–150, doi :10.1034/j.1600-0889.1998.t01-1-00002.x, URL <http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1034/j.1600-0889.1998.t01-1-00002.x/abstract>, 1998.
- Liebetrau, J., Clemens, J., Cuhls, C., Hafermann, C., Friehe, J., Weiland, P., and Daniel-Gromke, J. : Methane emissions from biogas-producing facilities within the agricultural sector, *Engineering in Life Sciences*, 10, 595–599, doi :10.1002/elsc.201000070, URL <http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1002/elsc.201000070/abstract>, 2010.
- Lopez, M., Schmidt, M., Delmotte, M., Colomb, A., Gros, V., Janssen, C., Lehman, S. J., Mondelain, D., Perrussel, O., Ramonet, M., Xueref-Remy, I., and Bousquet, P. : CO, NO<sub>x</sub> and <sup>13</sup>CO<sub>2</sub> as tracers for fossil fuel CO<sub>2</sub> : results from a pilot study in Paris during winter 2010, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 7343–7358, doi :10.5194/acp-13-7343-2013, URL <http://www.atmos-chem-phys.net/13/7343/2013/>, 2013.
- Mallet, V., Quélo, D., Sportisse, B., Ahmed de Biasi, M., Debry, ., Korsakissok, I., Wu, L., Roustan, Y., Sartelet, K., Tombette, M., and Foudhil, H. : Technical Note : The air quality modeling system Polyphemus, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 5479–5487, doi :10.5194/acp-7-5479-2007, 2007.
- Marik, T. and Levin, I. : A new tracer experiment to estimate the methane emissions from a dairy cow shed using sulfur hexafluoride (SF<sub>6</sub>), *Global Biogeochemical Cycles*, 10, 413–418, doi : 10.1029/96GB01456, URL <http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1029/96GB01456/abstract>, 1996.
- Minschwaner, K., Carver, R. W., and Briegleb, B. P. : Infrared Radiative Forcing and Atmospheric Lifetimes of Trace Species Based on Observations from UARS, URL <http://ntrs.nasa.gov/search.jsp?R=19980007547>, 1997.
- Mønster, J. and Scheutz, C. : Quantification of the methane emission from Masons landfill-Part II, Tech. rep., Department of Environmental Engineering, Technical University of Denmark (DTU), 2015.
- Mønster, J., Samuelsson, J., Kjeldsen, P., and Scheutz, C. : Quantification of methane emissions from 15 Danish landfills using the mobile tracer dispersion method, *Waste Management*, 35, 177–186, doi :10.1016/j.wasman.2014.09.006, URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0956053X14004280>, 2015.
- Mønster, J. G., Samuelsson, J., Kjeldsen, P., Rella, C. W., and Scheutz, C. : Quantifying methane emission from fugitive sources by combining tracer release and downwind measurements – A sensitivity analysis based on multiple field surveys, *Waste Management*, 34, 1416–1428, doi : 10.1016/j.wasman.2014.03.025, 2014.
- Murray, R. M., Bryant, A. M., and Leng, R. A. : Methane production in the rumen and lower gut of sheep given lucerne chaff : effect of level of intake, *British Journal of Nutrition*, 39, 337–345, doi : 10.1079/BJN19780043, 1978.
- O’Keefe, A. and Deacon, D. A. G. : Cavity ring down optical spectrometer for absorption measurements using pulsed laser sources, *Review of Scientific Instruments*, 59, 2544–2551, 1988.
- Pasquill, F. : Atmospheric diffusion : the dispersion of windborne material from industrial and other sources, E. Horwood, 1974.
- Peylin, P., Rayner, P. J., Bousquet, P., Carouge, C., Hourdin, F., Heinrich, P., Ciais, P., and AERO-CARB contributors : Daily CO<sub>2</sub> flux estimates over Europe from continuous atmospheric measurements : 1, inverse methodology, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 3173–3186, doi :10.5194/acp-5-3173-2005, URL <http://www.atmos-chem-phys.net/5/3173/2005/>, 2005.
- Prather, M. J., Holmes, C. D., and Hsu, J. : Reactive greenhouse gas scenarios : Systematic exploration of uncertainties and the role of atmospheric chemistry, *Geophysical Research Letters*, 39, L09 803, doi :10.1029/2012GL051440, URL <http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1029/2012GL051440/abstract>, 2012.

- Rasmussen, R. A. and Khalil, M. a. K. : Atmospheric methane (CH<sub>4</sub>) : Trends and seasonal cycles, *Journal of Geophysical Research : Oceans*, 86, 9826–9832, doi :10.1029/JC086iC10p09826, URL <http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1029/JC086iC10p09826/abstract>, 1981.
- Riddick, S. N., Hancock, B. R., Robinson, A. D., Connors, S., Davies, S., Allen, G., Pitt, J., and Harris, N. R. P. : Development of a low-maintenance measurement approach to continuously estimate methane emissions : A case study, *Waste Management*, doi :10.1016/j.wasman.2016.12.006, URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0956053X16307449>, 2016.
- Robinson, R., Gardiner, T., Innocenti, F., Woods, P., and Coleman, M. : Infrared differential absorption Lidar (DIAL) measurements of hydrocarbon emissions, *Journal of Environmental Monitoring*, 13, 2213–2220, doi :10.1039/COEM00312C, URL <http://pubs.rsc.org/en/Content/ArticleLanding/2011/EM/COEM00312C>, 2011.
- Roscioli, J. R., Yacovitch, T. I., Floerchinger, C., Mitchell, A. L., Tkacik, D. S., Subramanian, R., Martinez, D. M., Vaughn, T. L., Williams, L., Zimmerle, D., Robinson, A. L., Herndon, S. C., and Marchese, A. J. : Measurements of methane emissions from natural gas gathering facilities and processing plants : measurement methods, *Atmos. Meas. Tech.*, 8, 2017–2035, doi :10.5194/amt-8-2017-2015, URL <http://www.atmos-meas-tech.net/8/2017/2015/>, 2015.
- Saunio, M., Bousquet, P., Poulter, B., Peregon, A., Ciais, P., Canadell, J. G., Dlugokencky, E. J., Etiope, G., Bastviken, D., Houweling, S., Janssens-Maenhout, G., Tubiello, F. N., Castaldi, S., Jackson, R. B., Alexe, M., Arora, V. K., Beerling, D. J., Bergamaschi, P., Blake, D. R., Brailsford, G., Brovkin, V., Bruhwiler, L., Crevoisier, C., Crill, P., Curry, C., Frankenberg, C., Gedney, N., Höglund-Isaksson, L., Ishizawa, M., Ito, A., Joos, F., Kim, H.-S., Kleinen, T., Krummel, P., Lamarque, J.-F., Langenfelds, R., Locatelli, R., Machida, T., Maksyutov, S., McDonald, K. C., Marshall, J., Melton, J. R., Morino, I., O’Doherty, S., Parmentier, F.-J. W., Patra, P. K., Peng, C., Peng, S., Peters, G. P., Pison, I., Prigent, C., Prinn, R., Ramonet, M., Riley, W. J., Saito, M., Schroeder, R., Simpson, I. J., Spahni, R., Steele, P., Takizawa, A., Thornton, B. F., Tian, H., Tohjima, Y., Viovy, N., Voulgarakis, A., van Weele, M., van der Werf, G., Weiss, R., Wiedinmyer, C., Wilton, D. J., Wiltshire, A., Worthy, D., Wunch, D. B., Xu, X., Yoshida, Y., Zhang, B., Zhang, Z., and Zhu, Q. : The Global Methane Budget : 2000–2012, *Earth System Science Data Discussions*, pp. 1–79, doi :10.5194/essd-2016-25, 2016.
- Scheutz, C., Kjeldsen, P., Bogner, J. E., De Visscher, A., Gebert, J., Hilger, H. A., Huber-Humer, M., and Spokas, K. : Microbial methane oxidation processes and technologies for mitigation of landfill gas emissions, *Waste Management & Research*, 27, 409–455, doi :10.1177/0734242X09339325, URL <http://journals.sagepub.com/doi/abs/10.1177/0734242X09339325>, 2009.
- Scheutz, C., Samuelsson, J., Fredenslund, A. M., and Kjeldsen, P. : Quantification of multiple methane emission sources at landfills using a double tracer technique, *Waste Management*, 31, 1009–1017, doi :10.1016/j.wasman.2011.01.015, URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0956053X1100047X>, 2011.
- Schmidt, M., Graul, R., Sartorius, H., and Levin, I. : Carbon dioxide and methane in continental Europe : a climatology, and <sup>222</sup>Rn-based emission estimates, *Tellus B*, 48, 457–473, doi :10.1034/j.1600-0889.1994.t01-2-00002.x-i1, URL <http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1034/j.1600-0889.1994.t01-2-00002.x-i1/abstract>, 1996.
- Schmidt, M., Lopez, M., Yver Kwok, C., Messenger, C., Ramonet, M., Wastine, B., Vuillemin, C., Truong, F., Gal, B., Parmentier, E., Cloué, O., and Ciais, P. : High-precision quasi-continuous atmospheric greenhouse gas measurements at Trainou tower (Orléans forest, France), *Atmos. Meas. Tech.*, 7, 2283–2296, doi :10.5194/amt-7-2283-2014, URL <http://www.atmos-meas-tech.net/7/2283/2014/>, 2014.
- Tarantola, A. : *Inverse Problem Theory and Methods for Model Parameter Estimation*, SIAM, google-Books-ID : qLSv6fpeMowC, 2005.
- Tissot, P. B. P. and Welte, P. D. H. : *From Kerogen to Petroleum*, in : *Petroleum Formation and Occurrence*, pp. 160–198, Springer Berlin Heidelberg, 1984.



- Wang, J., Zhang, J., Xie, H., Qi, P., Ren, Y., and Hu, Z. : Methane emissions from a full-scale A/A/O wastewater treatment plant, *Bioresource Technology*, 102, 5479–5485, doi :10.1016/j.biortech.2010.10.090, URL <http://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S0960852410017463>, 2011.
- Wang, Y., Jacob, D. J., and Logan, J. A. : Global simulation of tropospheric O<sub>3</sub>-NO<sub>x</sub>-hydrocarbon chemistry : 1. Model formulation, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 103, 10 713–10 725, doi : 10.1029/98JD00158, URL <http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1029/98JD00158/abstract>, 1998.
- Xydis, G., Nanaki, E., and Koroneos, C. : Exergy analysis of biogas production from a municipal solid waste landfill, *Sustainable Energy Technologies and Assessments*, 4, 20–28, doi :10.1016/j.seta.2013.08.003, URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S2213138813000568>, 2013.
- Yeman, C. : Quantifying emission rates and isotopic signatures of methane sources using a mobile CRDS analyzer, Tech. rep., 2015.
- Yoshida, H., Mønster, J., and Scheutz, C. : Plant-integrated measurement of greenhouse gas emissions from a municipal wastewater treatment plant, *Water Research*, 61, 108–118, doi :10.1016/j.watres.2014.05.014, URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0043135414003595>, 2014.
- Yver, C. E., Pison, I. C., Fortems-Cheiney, A., Schmidt, M., Chevallier, F., Ramonet, M., Jordan, A., Søvde, O. A., Engel, A., Fisher, R. E., Lowry, D., Nisbet, E. G., Levin, I., Hammer, S., Necki, J., Bartyzel, J., Reimann, S., Vollmer, M. K., Steinbacher, M., Aalto, T., Maione, M., Arduini, J., O’Doherty, S., Grant, A., Sturges, W. T., Forster, G. L., Lunder, C. R., Privalov, V., Paramonova, N., Werner, A., and Bousquet, P. : A new estimation of the recent tropospheric molecular hydrogen budget using atmospheric observations and variational inversion, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 3375–3392, doi :10.5194/acp-11-3375-2011, URL <http://www.atmos-chem-phys.net/11/3375/2011/>, 2011.
- Yver Kwok, C. E., Müller, D., Caldow, C., Lebègue, B., Mønster, J. G., Rella, C. W., Scheutz, C., Schmidt, M., Ramonet, M., Warneke, T., Broquet, G., and Ciais, P. : Methane emission estimates using chamber and tracer release experiments for a municipal waste water treatment plant, *Atmos. Meas. Tech.*, 8, 2853–2867, doi :10.5194/amt-8-2853-2015, URL <http://www.atmos-meas-tech.net/8/2853/2015/>, 2015.