



HAL
open science

Estimation in-situ des facteurs d'émission des polluants du trafic routier

Simon Martinet

► **To cite this version:**

Simon Martinet. Estimation in-situ des facteurs d'émission des polluants du trafic routier. Infrastructures de transport. Université de Lyon, 2020. Français. NNT : 2020LYSET006 . tel-03058446v1

HAL Id: tel-03058446

<https://theses.hal.science/tel-03058446v1>

Submitted on 11 Dec 2020 (v1), last revised 5 Jan 2021 (v2)

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.



N°d'ordre NNT : 2020LYSET006

THÈSE de DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE LYON
opérée au sein de
**L'institut français des sciences et technologies des transports,
de l'aménagement et des réseaux**

École Doctorale N° 162
Mécanique – Énergétique – Génie civil – Acoustique

Spécialité / discipline de doctorat :
Sciences de l'environnement / Émissions des transports

Soutenue publiquement le 22/06/2020, par :
Simon MARTINET

**Estimation in-situ des facteurs
d'émission des polluants du trafic routier**

Devant le jury composé de :

Christine Buisson	PhD, DR, ENTPE-LICIT	Présidente
Karine Sartelet	PhD, DR, Ecole des ponts ParisTech, CEREAS	Rapporteuse
Karine Deboudt	PhD, MdC, Université du Littoral Côte d'Opale	Rapporteuse
Laurent Gagnepain	ADEME, Responsable Transport et Mobilité	Examineur
Michel André	PhD, DR, IFSTTAR	Directeur de thèse
Yao Liu	PhD, CR, IFSTTAR/EASE	Co-directrice de thèse
Véronique Cerezo	PhD, Directrice de laboratoire, IFSTTAR/EASE	Invitée

Affiliation de l'auteur

Cette thèse est financée par :

L'Institut Français des Sciences et Technologies des Transports, de l'Aménagement et des Réseaux, IFSTTAR

14-20 Boulevard Newton Cité Descartes, Champs sur Marne

Les travaux présentés dans cette thèse ont été menés dans le laboratoire :

Environnement-Aménagement, Sécurité et Éco-conception (EASE)

IFSTTAR, Institut Français des Sciences et Technologies des Transports, de l'Aménagement et des Réseaux, Site de Lyon-Bron

Université Claude Bernard Lyon 1

25, avenue François Mitterrand, Case 24, Cité des mobilités, 69675 Bron Cedex, France

Les campagnes de mesures effectuées dans cette thèse font partie du **projet R&D « Connaissances, Réduction à la source et Traitement des Émissions dans l'Air » (CORTEA)** :

- **CEGEP** (Contribution à l'étude de l'Émission des éléments du GroupE du Platine : de l'échappement au champ proche)

Liste des publications liées aux travaux

Martinet, S., Liu, Y., Jean-Soro, L., Goriaux, M., André, M., 2019. In-situ estimation of non-regulated pollutant emission factors in an urban area of Nantes, France, with fleet composition characterization. *Transportation Research Part D: Transport and Environment* 76, 193–210. <https://doi.org/10.1016/j.trd.2019.09.023>

Martinet, S., Liu, Y., Louis, C., Tassel, P., Perret, P., Chaumont, A., & André, M. (2017). Euro 6 Unregulated Pollutant Characterization and Statistical Analysis of After-Treatment Device and Driving-Condition Impact on Recent Passenger-Car Emissions. *Environmental Science & Technology*, 51(10), 5847–5855. <https://doi.org/10.1021/acs.est.7b00481>

Résumé

La pollution atmosphérique en milieu urbain est un enjeu majeur pour la santé humaine et l'environnement. Le trafic routier représente la principale source de pollution dans les zones urbaines et contribue fortement à cette pollution atmosphérique dans ces zones malgré des améliorations de technologies de dépollution et de motorisations. Pour mesurer et approfondir les connaissances des émissions de polluants des véhicules routiers, différentes méthodes existent, avec chacune ses avantages et ses limites. Par exemple, les mesures sur un banc d'essai permettent d'étudier les émissions des véhicules selon leur technologie et avec une bonne reproductibilité des conditions de test. Cependant, cette approche reste limitée notamment pour la représentativité des émissions d'un parc de véhicules dans des conditions réelles de fonctionnement. La connaissance limitée des émissions des polluants non-réglés, tels que les BTEX, les alcanes de C9 à C22, les composés carbonylés, les particules en nombre et le carbone suie qui ont des effets néfastes sur la santé et l'environnement et qui sont rarement mesurés en raison de la complexité de la métrologie, constitue un second axe d'approfondissement des émissions du trafic.

L'objectif de ce travail est d'estimer in-situ des facteurs d'émission des polluants non-réglés du trafic routier, dans des conditions réelles de circulation des véhicules et pour des parcs dont la composition est caractérisée avec précision. Dans ce but, les travaux de cette thèse ont permis de développer et de mettre en œuvre des méthodologies de mesure in-situ, en zone urbaine, des émissions de polluants non-réglés du trafic routier, d'estimer des facteurs d'émission à partir des mesures effectuées sur différents sites (site ouvert en bord de route et site confiné). Ces facteurs d'émission sont établis pour des polluants non-réglés, et pour un parc automobile réel précisément défini (connaissance détaillée de la composition du parc automobile en circulation et des conditions locales de circulation). Les facteurs d'émission ainsi déterminés in-situ sont comparés avec ceux dérivés des mesures sur banc à rouleau afin d'en vérifier la cohérence et analyser en fonction des différents sites de mesure et de l'impact de la composition du parc sur les émissions de polluants.

Trois campagnes de mesure in-situ ont été menées, deux en bord de route dans des zones urbaines (sites ouverts) et une dans un tunnel proche d'une zone urbaine (site confiné). Les concentrations des polluants ciblés mesurées sur ces trois sites, ainsi que les différentes compositions de parc et les conditions de circulation relevées ont été utilisées pour estimer des facteurs d'émission par véhicule ou pour l'ensemble d'un parc.

Mots clés : Mesures in-situ ; Polluants non-réglés ; Compositions des parcs roulants ; Facteurs d'émission

In-situ estimation of emission factors for road traffic pollutants

Abstract

Urban air pollution is a major issue for human health and the environment. Road traffic is the main source of pollution in urban areas and contributes significantly to air pollution in these areas despite improvements in pollution control technologies and engines. To measure and improve knowledge of pollutant emissions from road vehicles, different methods exist, each with its own advantages and limitations. For example, measurements on a test bench make it possible to study vehicle emissions according to their technology and with good reproducibility of test conditions. However, this approach remains limited, particularly for the representativeness of vehicle fleet emissions under real operating conditions. The limited knowledge of emissions of unregulated pollutants, such as BTEX, C9-22 alkanes, carbonyl compounds, particulate matter and soot carbon, which have adverse effects on health and the environment and are rarely measured due to the complexity of metrology, is a second area for further study of traffic emissions.

The objective of this work is to estimate in-situ emission factors for unregulated pollutants from road traffic, under real vehicle traffic conditions and for fleets whose composition is precisely characterized. For this purpose, the work of this thesis has made it possible to develop and implement methodologies for in-situ measurement, in urban areas, of unregulated pollutant emissions from road traffic, and to estimate emission factors based on measurements made at different sites (open roadside site and confined site). These emission factors are established for unregulated pollutants, and for a precisely defined actual vehicle fleet (detailed knowledge of the composition of the vehicle fleet in use and local traffic conditions). The emission factors thus determined in-situ are compared with those derived from bench measurements in order to verify their consistency and analyse them according to the different measurement sites and the impact of the composition of the fleet on pollutant emissions.

Three in-situ measurement campaigns were carried out, two roadside in urban areas (open sites) and one in a tunnel near an urban area (confined site). The concentrations of the targeted pollutants measured at these three sites, as well as the different fleet compositions and traffic conditions identified, were used to estimate emission factors per vehicle or for the entire fleet.

Keywords: In-situ measurements; Unregulated pollutants; Fleet compositions; Emission factors

Remerciements

Je tiens à remercier particulièrement Yao qui m'a encadré pendant plus de quatre années à l'IFSTTAR et qui m'a offert la possibilité de faire cette thèse, moi qui n'avais jamais songé à en faire une. Merci pour tes conseils et pour tout ce que tu m'as apporté sur le travail de la recherche.

Merci aux rapporteurs d'avoir accepté de prendre le temps pour relire mon travail.

Merci Patrick et Pascal pour votre bonne humeur et tous les bons moments passés avec vous pendant les manips et en dehors.

Merci à tous mes collègues de l'IFSTTAR, anciens (qui sont devenus plus que des collègues) et actuels, pour tous les bons moments passés au labo, et notamment le tarot et les jeux de cartes à la pause de midi mais surtout pour toutes les soirées passées en dehors.

Merci à mes potes de toujours (vous êtes ma deuxième famille) et mes potes de foot pour ces innombrables week-ends et moments passés avec vous qui me permettent de penser à autres choses et de profiter tout simplement.

Merci à également à mes potes de fac, même si l'on ne se voit plus trop en ce moment, tous les moments passés avec vous pendant ces années d'études ont été géniaux.

Je remercie particulièrement mes parents qui ont toujours été là pour moi et qui m'ont toujours soutenu dans tous mes projets. Ce travail est pour eux.

Merci également à ma famille qui a toujours été présente et qui m'a toujours soutenu.

Enfin, Floriane, toi qui partage ma vie depuis plus de deux ans maintenant, merci d'avoir toujours été là pour moi dans les meilleurs moments et surtout dans les plus durs, et même si on était à 5 834 km l'un de l'autre, heureusement que tu étais présente au quotidien pour me soutenir <3.

Table des matières

Résumé	5
Abstract	9
Liste des figures	19
Liste des tableaux	23
Introduction	25
Chapitre 1 : Pollution de l'air des transports : État de l'art	29
1. Pollution de l'air	29
1.1. Impacts de la pollution de l'air	29
1.1.1. Impacts sur la santé.....	29
1.1.2. Impacts sur l'environnement et le climat.....	29
1.2. Sources de pollution.....	30
2. Pollution de l'air liée au transport routier.....	31
2.1. Polluants réglementés et réglementations	31
2.1.1. Polluants réglementés	31
2.1.2. Réglementation des véhicules particuliers et des véhicules utilitaires légers	32
2.1.3. Réglementations des poids lourds, bus et autocars	33
2.2. Évolution des motorisations et technologies de dépollution.....	34
2.3. Polluants non-réglementés	35
2.3.1. Particules	35
2.3.1.1. Particules ultrafines	35
2.3.1.2. Carbone suie	36
2.3.2. Composés organiques.....	36
2.3.2.1. Composés aromatiques	36
2.3.2.2. Composés aliphatiques.....	37
2.3.2.3. Composés carbonylés.....	37
3. Métrologie des émissions de polluants des véhicules	37
3.1. Mesures sur banc à rouleau	38
3.1.1. Description du banc à rouleau	38
3.1.2. Cycles de conduite	39
3.1.3. Facteurs d'émission calculés sur banc à rouleau.....	40
3.1.4. Avantages et inconvénients	44
3.2. Mesures alternatives au banc à rouleau	44

3.2.1.	Mesures embarquées (PEMS)	44
3.2.1.1.	Description du PEMS	44
3.2.1.2.	Facteurs d'émission calculés avec un PEMS.....	45
3.2.1.3.	Avantages et inconvénients	47
3.2.2.	Remote Sensing.....	48
3.2.2.1.	Description du Remote Sensing	48
3.2.2.2.	Méthode de calcul des facteurs d'émission	48
3.2.2.3.	Facteurs d'émission calculés avec le Remote Sensing.....	49
3.2.2.4.	Avantages et inconvénients	51
3.3.	Méthodes de mesure in-situ	51
3.3.1.	En bord de route.....	51
3.3.2.	En tunnel.....	51
3.3.3.	Poursuite d'un véhicule	52
3.3.4.	Calcul des facteurs d'émission.....	52
3.3.4.1.	Méthode des NO _x	52
3.3.4.2.	Méthode en tunnel.....	53
3.3.4.3.	Méthode du CO ₂	53
3.3.5.	Facteurs d'émission calculés avec les mesures in-situ.....	54
4.	Résumé.....	56
5.	Objectifs.....	57
Chapitre 2 : Matériels et méthodes		59
1.	Introduction.....	59
2.	Description des sites de mesure.....	59
2.1.	Site ouvert en bord de route à Nantes.....	59
2.2.	Site ouvert en bord de route à Lyon.....	60
2.3.	Site confiné dans le tunnel de la Défense à Nanterre	61
3.	Protocole expérimental	61
3.1.	Site ouvert.....	61
3.2.	Site confiné.....	63
4.	Mesures des concentrations de polluants	63
4.1.	Analyseurs en ligne.....	63
4.2.	Cartouches de prélèvement.....	64
5.	Observation du parc en circulation, du trafic et des conditions de circulation	65
5.1.	Comptage des véhicules et mesure des vitesses moyennes	65

5.2.	Enregistrements vidéo des plaques d'immatriculation.....	66
5.3.	Observation sur les sites ouverts.....	66
5.4.	Observation sur le site confiné.....	67
5.5.	Station météorologique.....	67
6.	Méthode de calcul des facteurs d'émission	68
6.1.	Site Ouvert.....	68
6.1.1.	Nantes.....	68
6.1.2.	Lyon	69
6.2.	Site confiné.....	69
7.	Méthode de caractérisation des parcs roulants.....	69
8.	Analyse de variance (ANOVA)	70
9.	Récapitulatif des méthodes pour chaque site de mesure.....	70
Chapitre 3 : Caractérisation des parcs roulants et des conditions de conduite sur les différents sites de mesure		73
1.	Introduction.....	73
2.	Volumes et vitesses moyennes du trafic routier sur les sites de mesure.....	73
3.	Caractérisation des parcs roulants sur les différents sites de mesure.....	75
3.1.	Compositions des parcs roulants par famille de véhicules.....	75
3.2.	Compositions des parcs par motorisations et par normes Euro pour chaque famille de véhicules.....	76
3.2.1.	Véhicules particuliers.....	77
3.2.2.	Véhicules utilitaires légers.....	78
3.2.3.	Poids lourds et bus.....	79
3.3.	Variations temporelles des compositions des parcs sur les sites de Nantes et du tunnel de La Défense.....	80
3.3.1.	Nantes.....	81
3.3.1.1.	Parc global.....	81
3.3.1.2.	Véhicules particuliers.....	81
3.3.2.	Tunnel.....	83
3.3.2.1.	Parc global.....	83
3.3.2.2.	Véhicules particuliers.....	83
4.	Conclusion	85
Chapitre 4 : Estimation des facteurs d'émission – Site ouvert en bord de route		87
1.	Introduction.....	87
2.	Estimation des facteurs d'émission avec la méthode des NO _x	87

2.1.	Nantes	87
2.1.1.	Bruit de fond des particules et du carbone suie.....	88
2.1.2.	Bruit de fond des BTEX, alcanes et composés carbonylés	89
2.1.3.	Facteurs d'émission des polluants étudiés	90
2.1.3.1.	Résumé de l'article	90
2.1.3.2.	Article : In-situ Estimation of Non-Regulated Pollutant Emission Factors in an Urban Area with Fleet Composition Characterization.....	91
2.1.4.	Analyses complémentaires.....	110
2.1.4.1.	Sources d'émission des BTEX.....	110
2.1.4.2.	Impact des points d'échantillonnage sur les PN	111
2.2.	Facteurs d'émission des COVI en bord de route à Lyon.....	115
2.2.1.	Facteurs d'émissions des polluants étudiés	115
3.	Conclusion	117
Chapitre 5 : Estimation des facteurs d'émission – Site confiné en tunnel.....		119
1.	Introduction.....	119
2.	Source d'émission dans le tunnel.....	119
2.1.	Corrélations entre les PN, les PM et le BC.....	121
2.2.	Corrélations entre les composés aromatiques, aliphatiques, carbonylés et les NO _x	124
3.	Estimation des facteurs d'émission avec la méthode des NO _x	125
3.1.	Calcul des facteurs d'émission de NO _x à partir de COPERT 5.....	125
3.2.	Facteurs d'émission par véhicule.....	125
3.3.	Corrélations des facteurs d'émission	127
3.4.	Facteurs d'émission globaux du trafic	129
3.4.1.	Particules et carbone suie.....	129
3.4.2.	Composés aromatiques, aliphatiques et carbonylés	130
3.4.3.	Impact de la composition du parc sur les facteurs d'émission	132
4.	Conclusion	134
Chapitre 6 : Validation et comparaison des facteurs d'émission		137
1.	Introduction.....	137
2.	Comparaison des facteurs d'émission calculés avec COPERT 4 et COPERT 5.....	137
3.	Comparaison des facteurs d'émission.....	138
3.1.	Comparaison des facteurs d'émission par véhicule estimés entre les différents sites de mesure et avec des facteurs d'émission estimés sur banc à rouleau	138
3.2.	Comparaison avec des facteurs d'émission d'autres études in-situ	141
3.3.	Comparaison de la proportion des BTEX.....	143

4. Linéarité des facteurs d'émission.....	146
4.1. Linéarité entre BTEX et C9-C11	146
4.2. Linéarité entre BC et PN.....	146
5. Conclusion	147
Conclusion générale.....	149
Annexe A : COPERT	153
Annexe B : Corrélations entre les concentrations des polluants mesurées à Nantes	157
Annexe C : Distribution en taille des particules mesurées avec le FMPS sur la semaine de mesure dans le tunnel	159
Annexe D : Euro 6 unregulated pollutant characterization and statistical analysis of the impact of aftertreatment devices and driving conditions on recent passenger cars emissions	161
Annexe E : Proportions des BTEX mesurés dans d'autres études in-situ.....	175
Références	177

Liste des figures

Figure 1. Estimations du forçage radiatif en 2011 par rapport à 1750 et incertitudes agrégées associées, pour les principaux facteurs du changement climatique. Les valeurs sont des moyennes du forçage radiatif global, réparties selon les composés émis ou les processus qui aboutissent à une combinaison de facteurs. Les meilleures estimations du forçage radiatif net sont présentées sous la forme d'un losange noir avec les intervalles d'incertitude correspondants ; les valeurs numériques sont fournies sur la droite de la figure de même que le degré de confiance (TÉ – très élevé, É - élevé, M - moyen, F - faible, TF – très faible) (GIEC, 2013).	30
Figure 2. Répartition des émissions de NO _x , de COV, de PM _{1,0} et de BC en France en 2018 (CITEPA, 2019).	31
Figure 3. Structure des différents composés BTEX.	37
Figure 4. Schéma du banc à rouleau de l'IFSTTAR et des équipements utilisés pour la mesure des émissions.	38
Figure 5. Profil des cycles de conduite Artémis, NEDC et WLTC.	39
Figure 6. Carte du boulevard urbain utilisé pour le site de trafic urbain à Nantes.	59
Figure 7. Carte du site de mesure de fond urbain à Nantes.	60
Figure 8. Site en bord de route de la campagne de mesure à Lyon.	60
Figure 9. Carte du site de mesure dans le tunnel de la Défense.	61
Figure 10. Intérieur du fourgon aménagé avec les différents appareils de mesure.	62
Figure 11. Emplacement du fourgon aménagé pour les prélèvements sur le site de fond urbain (à gauche) et sur le site de trafic urbain (à droite) à Nantes.	62
Figure 12. Renforcement de l'issue de secours 140 avec les appareils de mesure.	63
Figure 13. Caméra et tube pneumatique utilisés par la société AlyceSofreco.	66
Figure 14 : Caméras utilisées par la société AlyceSofreco.	67
Figure 15. Nombre de véhicules par heure et vitesses moyennes horaires sur la semaine de mesure à Nantes.	74
Figure 16. Nombre de véhicules par heure et vitesses moyennes horaires sur la semaine de mesure dans le tunnel.	75
Figure 17. Compositions des parcs roulants par famille de véhicules (a) à Nantes, (b) dans le tunnel de La Défense et (c) à Lyon.	76
Figure 18. Composition du parc roulant français par famille de véhicules en zone urbaine en 2017 et en 2018 (André et al., 2014).	76

Figure 19. Compositions des parcs roulants de véhicules particuliers selon les normes Euro, (a) à Nantes, (b) dans le tunnel de La Défense et (c) à Lyon.	77
Figure 20. Compositions selon les normes Euro des parcs nationaux roulants de véhicules particuliers en zone urbaine (a) en 2017 et (b) en 2018 (André et al., 2014).....	78
Figure 21. Compositions selon les normes Euro des parcs roulants de véhicules utilitaires légers (a) à Nantes, (b) dans le tunnel et (c) à Lyon.	78
Figure 22. Compositions selon les normes Euro des parcs nationaux roulants de véhicules utilitaires légers en zone urbaine (a) en 2017 et (b) en 2018 (André et al., 2014).....	79
Figure 23. Compositions selon les normes Euro des parcs roulants de poids lourds et de bus (a) à Nantes, (b) dans le tunnel de La Défense et (c) à Lyon.	79
Figure 24. Compositions selon les normes Euro des parcs nationaux roulants de poids lourds et bus en zone urbaine (a) en 2017 et (b) en 2018 (André et al., 2014).	80
Figure 25. Variations de la composition du trafic selon les familles de véhicules VP, VUL et PL/Bus au cours de la semaine de mesure à Nantes.	81
Figure 26. Variation de la répartition entre VP Diesel et essence au cours de la semaine de mesure à Nantes.....	82
Figure 27. Variations de la composition du trafic des voitures particulières selon les motorisations et normes, semaine de mesure à Nantes.	82
Figure 28. Variations de la composition du parc global selon les familles de véhicules VP, VUL et PL/Bus, au cours de la semaine de mesure dans le tunnel de La Défense	83
Figure 29. Variations de la composition du trafic des voitures particulières selon les motorisations, semaine de mesure dans le tunnel.....	84
Figure 30. Variations de la composition du trafic des voitures particulières selon les motorisations et normes, semaine de mesure dans le tunnel.	85
Figure 31. Profils de concentrations des particules en nombre, du carbone suie et des NO _x sur le site de trafic à Nantes.	88
Figure 32. Profils de concentrations des BTEX, des alcanes, des composés carbonylés et des NO _x sur le site de trafic à Nantes.....	90
Figure 33. Corrélations entre les facteurs d'émission du BC, du benzène et du toluène estimés sur le site de trafic.	110
Figure 34. Corrélations entre la somme des facteurs d'émission des BTEX et les facteurs d'émission du benzène et du toluène.	111
Figure 35. Distribution 3D des concentrations de particules en nombre mesurées à 2 mètres pour les 7 jours de mesure sur le site de trafic à Nantes.....	112

Figure 36. Distribution 3D des concentrations de particules en nombre mesurées à 4 mètres pour les 7 jours de mesure sur le site de trafic à Nantes.....	113
Figure 37. Corrélations entre les concentrations de particules en nombre mesurées à 2 mètres et à 4 mètres pour différentes gammes de taille ([10-30] nm, [30-50] nm, [50-100] nm, [100-500] nm) sur le site de trafic à Nantes.....	114
Figure 38. Distribution des facteurs d'émission moyens estimés à Lyon pour les alcanes de C6 à C22.	117
Figure 39. Profils de concentrations des particules en nombre, du carbone suie et des NO _x sur la semaine de mesure dans le tunnel.....	120
Figure 40. Profils de concentrations des BTEX, des alcanes, des carbonyles et des NO _x en fonction de l'heure et du jour de mesure dans le tunnel.	121
Figure 41. Corrélations entre les concentrations de BC et de PN pour différentes gammes de taille ([6-30] nm, [30-60] nm, [60-100] nm, [100-200] nm, [200-300] nm, [300-600] nm, [600-1000] nm) mesurées dans le tunnel sur la semaine de mesure.....	122
Figure 42. Corrélations entre les concentrations de BC et de PM pour la semaine de mesure dans le tunnel.	123
Figure 43. Corrélations entre les concentrations de NO _x et de BTEX, de composés carbonyles, et des alcanes de C6 à C11 et de C12 à C22 mesurées pour la semaine de mesure dans le tunnel.	124
Figure 44. Distribution des facteurs d'émission moyens estimés dans le tunnel pour les alcanes de C6 à C22.	127
Figure 45. Corrélations entre la somme des facteurs d'émission des BTEX et les facteurs d'émission du benzène et du toluène.	128
Figure 46. Corrélations entre les facteurs d'émission du toluène et des alcanes de C6 à C11 et de C12 à C22 estimés sur le site de trafic.	128
Figure 47. Profils des facteurs d'émission du parc pour les PN et le carbone suie, des concentrations de NO _x et du nombre de véhicules en fonction de l'heure et de la journée de mesure dans le tunnel.	130
Figure 48. Profils des facteurs d'émission du parc pour les BTEX, les alcanes et les composés carbonyles, des concentrations de NO _x et du nombre de véhicules en fonction de l'heure et de la journée de mesure dans le tunnel.	131
Figure 49. Corrélations entre les facteurs d'émission de NO _x calculés avec COPERT 4 et COPERT 5 pour les parcs présents à Lyon et dans le tunnel.	138
Figure 50. Comparaisons des facteurs d'émission estimés in-situ par véhicule (Nantes, Tunnel et Lyon) pour les PN, le carbone suie, le formaldéhyde, les BTEX et les alcanes de C9 à C11	

et de C12 à C22 avec des facteurs d'émission estimés par des mesures sur banc à rouleau pour des VP Diesel et essence de normes Euro 1 à Euro 6 (Louis et al., 2016 ; Martinet et al., 2017).....	139
Figure 51. Comparaisons des facteurs d'émission des PN, du BC et des BTEX estimés in-situ (Nantes, Tunnel et Lyon) avec des facteurs d'émission estimés par d'autres études (Ketzel et al., 2003 ; Gratmonev et al., 2004 ; Rose et al., 2005 ; Imhof et al., 2005 ; Stemmler et al., 2005 ; Jones et al., 2006 ; Kawashima et al., 2006 ; Hung-Lung et al., 2007 ; Handler et al., 2008 ; Ho et al., 2009 ; Westerdahl et al., 2009 ; Wang et al., 2010 ; Ait-Helal et al., 2015 ; Brimblecombe et al., 2015 ; Dai et al., 2015 ; Zhang et al., 2015 ; Krecl et al., 2018 ; Zhang et al., 2018).	142
Figure 52. Proportions des facteurs d'émission des BTEX pour les différents jours de mesure dans le tunnel de La Défense.....	144
Figure 53. Proportion des facteurs d'émission des BTEX pour les différents jours de mesure à Nantes.	145
Figure 54. Corrélations entre les facteurs d'émission des BTEX et des COV alcanes pour Nantes et le tunnel de La Défense.....	146
Figure 55. Corrélations entre les facteurs d'émission de PN et de BC pour les trois sites de mesure.	147
Figure 56. Corrélations entre les concentrations de NO _x et de PN et de BC mesurées pour la semaine de mesure à Nantes.....	157
Figure 57. Corrélations entre les concentrations de NO _x et de BTEX, de composés carbonylés, et des alcanes mesurées pour la semaine de mesure à Nantes.	158
Figure 58. Distribution 3D des concentrations de particules en nombre mesurées avec le FMPS pour les 7 jours de mesure dans le tunnel de La Défense.	160
Figure 59. Proportions des facteurs d'émission des BTEX calculés dans d'autres études in-situ en tunnel (Stemmler et al., 2005 ; Hung-Lung et al., 2007 ; Ho et al., 2009 ; Ait-Helal et al., 2015 ; Zhang et al., 2018).....	175

Liste des tableaux

Tableau 1. Valeur des limites d'émission mise en place par l'UE pour les véhicules particuliers.....	32
Tableau 2. Valeurs des limites d'émission en UE pour les véhicules utilitaires légers.	33
Tableau 3. Valeurs des limites d'émission en UE pour les poids lourds, les bus et les autocars.	33
Tableau 4. Principales caractéristiques des sous-cycles Artémis urbain.	40
Tableau 5. Facteurs d'émission obtenus sur banc à rouleau pour les polluants réglementés.....	41
Tableau 6. Facteurs d'émission obtenus sur banc à rouleau pour des polluants non-réglementés.	43
Tableau 7. Facteurs d'émission obtenus pour des mesures embarquées effectuées avec un PEMS sur des VP pour les différents polluants réglementés.	45
Tableau 8. Facteurs d'émission obtenus pour des mesures embarquées effectuées avec un PEMS sur des VUL et des PL pour les différents polluants réglementés.	47
Tableau 9. Facteurs d'émission obtenus par des mesures effectuées avec le Remote Sensing pour des VUL et des PL pour les polluants réglementés.	49
Tableau 10. Facteurs d'émission obtenus par des mesures effectuées avec le Remote Sensing pour des VP pour les polluants réglementés.	50
Tableau 11. Facteurs d'émission obtenus dans de précédentes études pour les polluants non-réglementés en utilisant différentes méthodes de mesure.	54
Tableau 12. Méthodes analytiques des cartouches de prélèvement.	65
Tableau 13. Récapitulatif des méthodes pour chaque site de mesure.....	71
Tableau 14. Facteurs d'émission estimés pour les PN, le BC, les BTEX et les alcanes à Lyon pour chaque heure de mesure.	115
Tableau 15. Facteurs d'émission estimés pour les PN, le BC, les BTEX, les composés carbonylés et les alcanes avec la méthode des NO _x dans le tunnel de la Défense.	125
Tableau 16. Résultats de l'analyse ANOVA sur l'impact de la composition du parc sur les facteurs d'émission du tunnel de la Défense.....	132
Tableau 17. Exemple de données d'entrée COPERT pour le calcul des facteurs d'émission de NO _x	153

Introduction

La pollution atmosphérique en zone urbaine est un enjeu majeur pour la santé humaine. Le trafic routier représente la principale source de pollution dans les zones urbaines, notamment avec des émissions de polluants tels que les particules et les NO_x mais également des polluants non-réglés tels que le carbone suie (BC), les BTEX (benzène, toluène, ethylbenzène, et xylènes), les alcanes et les composés carbonylés (formaldéhyde, acétaldéhyde, hexanal...) qui ont de graves effets sur la santé humaine et l'environnement (Sydbom et al., 2001 ; Lewtas et al., 2007), et qui peuvent être des précurseurs secondaires de particules. Afin de limiter ces émissions polluantes du trafic routier l'Union Européenne (UE) impose des limites d'émission pour les polluants réglementés [particules en masse et en nombre (PM et PN), oxydes d'azote (NO_x), monoxyde de carbone (CO), hydrocarbures (HC)] qui sont appelées normes Euro et qui sont de plus en plus strictes à chaque mise en place d'une nouvelle norme.

Indépendamment de ces normes d'émission des véhicules, des outils de calcul ou d'estimation des émissions et de la pollution sont développés. Ils intègrent des facteurs ou fonctions d'émission des polluants qui sont dérivés de mesures d'émission sur banc d'essai de véhicules ou banc à rouleau (Alves et al., 2015 ; Yang et al., 2015 ; Louis et al., 2016 ; Martinet et al., 2017). Plus récemment, des systèmes embarqués de mesures des émissions (PEMS - Portable Emissions Measurement System) (O'Driscoll et al., 2016 ; Ntziachristos et al., 2016) sont utilisés en complément des mesures sur banc. Ces outils de calcul et de mesure d'émission sont employés pour l'évaluation de la contribution du trafic à la pollution globale, pour l'évaluation de l'efficacité de différentes mesures, ou encore pour des travaux de recherche (connaissance de mécanismes de pollution, modélisation des phénomènes, caractérisation des polluants et de leurs effets, etc...).

Les mesures sur banc d'essai sont les plus fréquemment mises en œuvre, car elles permettent de maîtriser les conditions de mesure, et d'obtenir ainsi une bonne répétabilité et des facteurs d'émission robustes. De plus, les mesures sur banc permettent d'étudier les émissions des polluants non-réglés nécessitant des métrologies complexes. Cependant, les tests sur banc sont moins représentatifs des conditions réelles de conduite et le nombre de véhicules étudié est restreint ce qui limite la représentativité par rapport au parc automobile en circulation. Le développement de la mesure embarquée avec un PEMS permet de mesurer les émissions dans des conditions réelles de conduite pour un véhicule, mais comme les mesures sur banc, la représentativité du parc automobile roulant est restreinte. De plus, les mesures embarquées ne permettent pas encore d'étudier les émissions des polluants non-réglés. Actuellement, les mesures d'émissions de polluants non-réglés pour les véhicules récents sont peu nombreuses. Toutes ces contraintes, auxquelles ne peuvent pas encore répondre les mesures sur banc à rouleau et embarquées, entraînent des lacunes dans les bases de données des modèles d'émission qui ne peuvent ni estimer correctement les facteurs d'émission de l'ensemble d'un parc automobile pour les polluants ni étudier avec précision leurs impacts sur l'environnement et la santé humaine.

Dans le but de compléter les mesures sur banc et embarquées, qui servent à alimenter les bases de données des modèles d'émission, des campagnes de mesure in-situ ont été réalisées afin de mesurer des émissions et de calculer des facteurs d'émission de polluants pour un parc réel de véhicules dans des conditions réelles de conduite. Ces campagnes de mesure peuvent se faire de différentes façons dont une première qui consiste à mesurer les concentrations de polluants sur le bord de la route pour l'ensemble d'un parc automobile circulant sur le site de mesure (Ketzler et al., 2003 ; Imhof et al., 2005 ; Rose et al., 2005 ; Jones et al., 2006 ; Bukowiecki et al., 2010). Une deuxième méthode consiste à mesurer les concentrations de polluants dans un tunnel routier (Pierson et al., 1996 ; Ho et al., 2009 ; Ban-Weiss et al., 2010 ; Brimblecombe et al., 2015). Les mesures en bord de route sont effectuées dans un milieu urbain qui constitue un environnement ouvert qui peut être influencé par la présence d'autres sources d'émission. Tandis que les mesures en tunnel constituent un environnement confiné qui se limite aux émissions du trafic routier contrairement à l'environnement ouvert, mais qui ne représente pas toujours des conditions de circulation similaires à ce que l'on peut trouver dans une zone urbaine avec la présence de phénomènes de congestion et l'influence sur les émissions du démarrage à froid des véhicules.

Lors de campagnes in-situ exécutées dans de précédents travaux, les émissions sont mesurées pour un parc global défini seulement avec un nombre de véhicules, le pourcentage de véhicules particuliers et de poids lourds et le pourcentage de véhicules Diesel et essence. Ces données sont issues des observations du trafic réalisées sur le site de mesure, mais parfois elles sont dérivées des compositions du parc national qui ne sont pas toujours représentatives des parcs locaux présents sur les sites de mesure. De plus, ces mesures se focalisent généralement sur quelques polluants dont les réglementés, les particules et parfois le carbone suie, alors que les BTEX, les alcanes et les composés carbonylés sont très rarement étudiés.

Les mesures in-situ réalisées dans ce travail se concentrent sur l'analyse des concentrations de polluants non-réglés dans des zones urbaines, qui sont un enjeu majeur notamment sur la santé publique, ainsi que sur la caractérisation précise du parc automobile en circulation et des conditions de conduite avec notamment les vitesses moyennes du trafic, la famille de véhicules (véhicule particulier, véhicule utilitaire léger, poids lourd et bus), son carburant (Diesel, essence ou autre), sa cylindrée, son poids, et sa norme Euro. Ces données permettront une estimation précise des facteurs d'émission des différents polluants étudiés, et, comme la composition du parc automobile varie, il est possible d'analyser les émissions de polluants selon le parc et le trafic.

Dans ce contexte, le but de ce travail est :

- de développer et de mettre en œuvre des méthodologies de mesure des émissions de polluants non-réglés du trafic routier, in-situ en zone urbaine, avec notamment l'adaptation et l'instrumentation d'un véhicule utilitaire de type fourgon en laboratoire mobile de mesure avec des prises, plan de travail, points de prélèvement à différents niveaux...

- de développer des méthodes d'estimation précises des facteurs d'émission à partir des mesures effectuées sur différents sites. Ces facteurs d'émission seront établis pour des polluants non-réglés et pour un parc automobile réel précisément défini (connaissance détaillée de la composition du parc automobile en circulation et des conditions locales de circulation). Les facteurs d'émission ainsi déterminés in-situ seront comparés avec ceux dérivés des mesures sur banc à rouleau afin d'en vérifier la cohérence.
- d'analyser les facteurs d'émission en fonction des différents sites de mesure et l'impact de la composition du parc sur les émissions de polluants.

Ce manuscrit est composé de 6 parties.

La première partie est dédiée à l'étude bibliographique de la pollution de l'air en zone urbaine (polluants, impacts), de l'état de connaissance des polluants et de leurs impacts, des lacunes des données et des outils, des lacunes des méthodes traditionnelles de mesure ou de caractérisation des émissions réelles du trafic ainsi qu'un état de l'art des différentes méthodes de mesure des émissions. Cet état de l'art permet de faire ressortir les avantages et les limites de ces méthodes et de définir les principaux objectifs de la mise en place de méthodes de mesure in-situ dans le but de répondre aux limites des méthodes de mesures traditionnelles qui sont les problématiques auxquelles vont répondre ces travaux de thèse.

La deuxième partie présente les méthodologies proposées et mises en œuvre pour répondre aux limites des méthodes de mesure actuelles avec la description des sites de mesure in-situ et du protocole expérimental, la description de l'ensemble des dispositifs expérimentaux et des méthodologies utilisés lors des différentes campagnes pour les mesures des concentrations de polluants et les caractérisations des parcs roulants.

Les parcs roulants et les conditions de conduite caractérisés en fonction du nombre de véhicules, des compositions des parcs et des vitesses moyennes de circulation sont détaillés et analysés dans la troisième partie et seront employés pour le calcul des facteurs d'émission.

La quatrième et la cinquième parties s'étendent sur l'analyse des concentrations de polluants mesurées sur les sites de mesure, le calcul des facteurs d'émissions, en fonction des méthodes étudiées, à partir de ces concentrations et des caractérisations des compositions de parc et des conditions de conduite relevées sur les différents sites, ainsi que l'analyse de ces facteurs d'émission, notamment avec l'étude de l'impact des compositions des parcs sur les émissions de polluants.

Enfin, la sixième partie porte sur la validation des facteurs d'émission dérivés des mesures in-situ sur les trois sites, en les comparant à des mesures effectuées sur banc à rouleau. L'impact des caractéristiques du site de mesure est étudié en comparant les facteurs d'émission entre les trois sites et avec ceux mesurés lors d'autres études in-situ.

La conclusion générale rassemble les principaux résultats et permet de proposer les perspectives liées à ce travail.

Chapitre 1 : Pollution de l'air des transports : État de l'art

1. Pollution de l'air

1.1. Impacts de la pollution de l'air

1.1.1. Impacts sur la santé

Selon l'organisation mondiale de la santé (OMS), dans la région européenne, en 2016, plus de 550 000 décès étaient liés à la pollution de l'air (OMS, 2019), toutes sources confondues. En France, l'agence nationale de la santé publique (ANSP) estime que 48 000 décès prématurés par an sont dus à la pollution aux particules fines (de taille inférieure à 2,5 μm), ce qui correspond à 9 % de la mortalité en France et à une perte d'espérance de vie à 30 ans pouvant dépasser 2 ans (ANSP, 2016). L'OMS a réalisé une étude dans 1 600 villes de 91 pays qui révèle que seulement 12 % de la population qui vit dans ces ensembles urbains respirent un air qui est conforme aux valeurs guides de l'OMS (OMS, 2014). Le centre international de recherche sur le cancer (CIRC) a classé la pollution de l'air comme étant carcinogène pour l'Homme.

Les effets de la pollution atmosphérique observés sur la santé pour une exposition de quelques heures à quelques jours sont des irritations des voies respiratoires, des crises d'asthme, l'aggravation de troubles cardio-vasculaires et respiratoires (Pope et al., 2008). Pour une exposition sur le plus long terme (plusieurs années), les effets observés sont le développement ou l'aggravation de cancers, de pathologies cardiovasculaires et respiratoires, de troubles neurologiques (Sydbom et al., 2001 ; Pope et al., 2002 ; Lewtas et al., 2007).

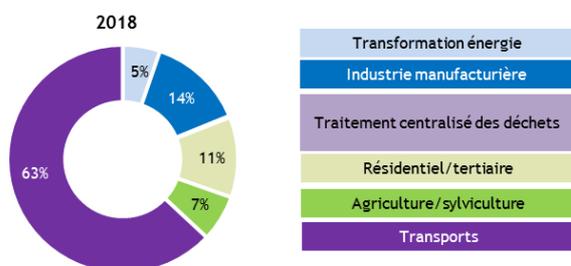
Concernant plus spécifiquement les transports, Silverman et al. (2012) a montré que les émissions directes des moteurs Diesel sont associées à un risque élevé de cancer du poumon.

1.1.2. Impacts sur l'environnement et le climat

En plus des graves effets sur la santé humaine, la pollution atmosphérique a des effets néfastes sur l'environnement et le climat. Ces polluants atmosphériques ont de lourds impacts sur les cultures et les écosystèmes avec notamment un affaiblissement des organismes et un fort ralentissement de la croissance des cultures agricoles lors d'une période d'exposition prolongée à l'ozone. Les dioxydes d'azote (NO_x) et le dioxyde de soufre (SO_2) modifient les pluies, les neiges et le brouillard qui deviennent plus acides et altèrent les sols, les cours d'eaux et le fonctionnement général des écosystèmes (ATMO ARA, 2019). Ces polluants influencent également le climat, de manière directe avec les aérosols, les COV (composés organiques volatils) et les NO_x qui ont des effets négatifs ou positifs sur le forçage radiatif (FR). Selon le rapport du GIEC (2013), le FR total de l'effet des aérosols dans l'atmosphère est de $-0,9[-1,9 \text{ à } -0,1]$ W.m^{-2} , et, pour les NO_x et les COV, le FR total est

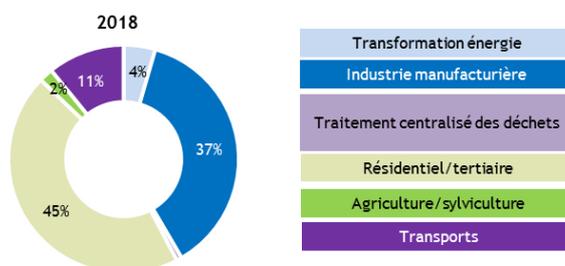
dues au transport dont 10 % par le routier, et, pour les particules inférieures à $1 \mu\text{m}$ ($\text{PM}_{1,0}$), ce sont 14 % de leur émission totale qui est issue du transport, dont 13 % par le transport routier (Figure 2). Dans une zone urbaine le long d'un axe routier, ces pourcentages peuvent être plus importants pour les émissions du transport routier.

Répartition des émissions de NO_x en France métropolitaine en 2018



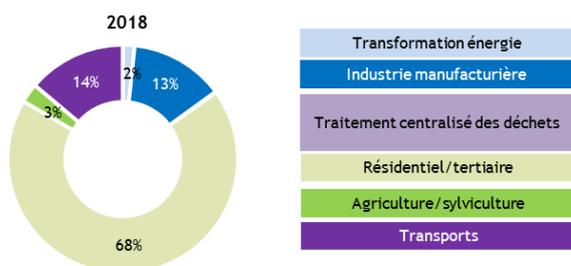
CITEPA-AEP-secteur-d/NOx.xlsx
Source CITEPA / format SECTEN - avril 2019

Répartition des émissions de COV en France métropolitaine en 2018



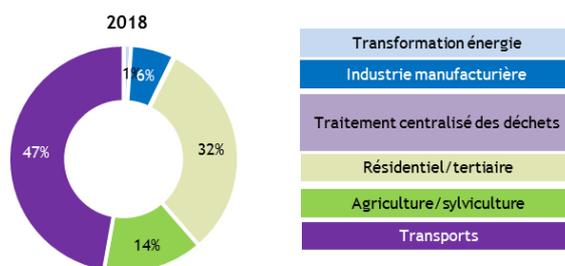
CITEPA-AEP-secteur-d/COVNM.xlsx
Source CITEPA / format SECTEN - avril 2019

Répartition des émissions de $\text{PM}_{1,0}$ en France métropolitaine en 2018



CITEPA-PM-secteur-d/PM1.xlsx
Source CITEPA / format SECTEN - avril 2019

Répartition des émissions de BC en France métropolitaine en 2018



CITEPA-PM-secteur-d/BC.xlsx
Source CITEPA / format SECTEN - avril 2019

Figure 2. Répartition des émissions de NO_x , de COV, de $\text{PM}_{1,0}$ et de BC en France en 2018 (CITEPA, 2019).

2. Pollution de l'air liée au transport routier

2.1. Polluants réglementés et réglementations

2.1.1. Polluants réglementés

Les polluants tels que les NO_x , le monoxyde de carbone (CO), les hydrocarbures (HC) et les particules en masse (PM) et en nombre (PN) sont émis en grandes quantités à l'échappement des véhicules routiers (Reşitoğlu et al., 2015). C'est pourquoi afin de réduire ces émissions de polluants par le trafic routier, l'Union Européenne (UE) a mis en place des normes d'émission, appelées normes Euro, qui définissent des valeurs limites que ne doivent pas dépasser les véhicules neufs lors de leur homologation. Depuis la mise en place de ces normes Euro, les limites d'émission sont régulièrement abaissées et sont fixées par des directives de l'UE. Les conditions de tests et de mesure à l'échappement des polluants pour l'homologation des véhicules (ou des moteurs) sont également fixées par l'UE. Les normes concernent les différents types de véhicules routiers avec des différences de procédures, de dates d'application et de valeurs limites d'émission.

2.1.2. Réglementation des véhicules particuliers et des véhicules utilitaires légers

Pour les véhicules particuliers (VP), la première norme d'émission a été introduite en janvier 1993 pour les véhicules Diesel et essence, avec des limites d'émission pour le CO, les HC + NO_x et les PM pour les VP Diesel, et uniquement pour le CO pour les VP essence. La mise en place de la norme Euro 3 a introduit, pour les VP essence, des limites d'émission pour les NO_x et les HC. À partir de la norme Euro 5, des limites sur les particules en masse, puis en nombre pour l'Euro 6 entrent en vigueur.

Tableau 1. Valeur des limites d'émission mise en place par l'UE pour les véhicules particuliers.

Normes	Euro 1	Euro 2	Euro 3	Euro 4	Euro 5	Euro 6
Date d'application	01/1993	01/1997	01/2001	01/2006	09/2010	09/2015
Diesel						
CO (mg/km)	2 720	1 000	640	500	500	500
HC + NO_x (mg/km)	970	900	560	300	230	170
NO_x (mg/km)	--	--	500	250	180	80
HC (mg/km)	--	--	--	--	--	--
Particules (PM) (mg/km)	140	100	50	25	5	4,5
Particules (PN) (#/km)	--	--	--	--	6×10 ¹¹	6×10 ¹¹
Essence						
CO (mg/km)	2 720	2 200	2 200	1 000	1 000	1 000
HC + NO_x (mg/km)	--	--	--	--	--	--
NO_x (mg/km)	--	--	150	80	60	60
HC (mg/km)	--	--	200	100	100	100
Particules (PM) (mg/km)	--	--	--	--	5	4,5
Particules (PN) (#/km)	--	--	--	--	--	6×10 ¹²

Pour les véhicules utilitaires légers (VUL), qui correspondent à des véhicules utilitaires avec un poids total en charge autorisé (PTAC) inférieur à 3,5 tonnes, les premières normes sont introduites à partir d'octobre 1994 avec des limites d'émission pour le CO, les HC + NO_x et les PM, identiques à celles des valeurs de la norme Euro 1 des VP Diesel. À partir de la norme Euro 3, les dates d'application et les valeurs limites d'émission des normes pour les VUL sont identiques à celles des VP Diesel.

Tableau 2. Valeurs des limites d'émission en UE pour les véhicules utilitaires légers.

Normes	Euro 1	Euro 2	Euro 3	Euro 4	Euro 5	Euro 6
Date d'application	10/1994	01/1998	01/2001	01/2006	09/2010	09/2015
CO (mg/km)	2 720	1 000	640	500	500	500
HC + NO_x (mg/km)	970	700	560	300	230	170
NO_x (mg/km)	--	--	500	250	180	80
HC (mg/km)	--	--	--	--	--	--
Particules (PM) (mg/km)	140	80	50	25	5	4,5
Particules (PN) (#/km)	--	--	--	--	6×10 ¹¹	6×10 ¹¹

2.1.3. Réglementations des poids lourds, bus et autocars

Tableau 3. Valeurs des limites d'émission en UE pour les poids lourds, les bus et les autocars.

Normes	Euro I	Euro II	Euro III	Euro IV	Euro V	Euro VI
Date d'application	10/1993	10/1996	10/2001	10/2006	10/2009	10/2014
CO (g/kWh)	4,9	4	2,1	1,5	1,5	1,5
NO_x (g/kWh)	9	7	5	3,5	2	0,4
HC (g/kWh)	1,23	1,1	0,66	0,46	0,46	0,13
Particules (PM) (g/kWh)	0,36	0,15	0,13	0,02	0,02	0,01

Les normes Euro mises en place pour les émissions polluantes des véhicules lourds (ayant un PTAC supérieur à 3,5 tonnes et qui comprennent les poids lourds, les bus et les autocars) ont été

introduites par l'UE dès 1993 avec la norme Euro I. Cette norme impose des limites d'émission pour les NO_x, le CO, les HC et les particules en masse.

2.2. Évolution des motorisations et technologies de dépollution

Les limites d'émission des polluants réglementés, imposées par l'UE, sont de plus en plus strictes à chaque entrée en application d'une nouvelle norme Euro. Les constructeurs ont donc développé, à partir de certaines normes, des technologies de dépollution ou des nouvelles motorisations afin de réduire les émissions de leurs véhicules et les ramener en dessous des niveaux réglementaires.

Les véhicules essence légers (particuliers et utilitaires avec un PTAC inférieur à 3,5 tonnes) ont tous été équipés d'un catalyseur trois voies (appelé généralement pot catalytique) à partir de 1993 avec la mise en application de la norme Euro 1. Cette technologie de dépollution permet de réduire considérablement les émissions de CO, de HC et de NO_x des véhicules essence (Miyoshi et al, 1995). Pour réduire la consommation de carburant, les constructeurs ont développé une motorisation essence à injection directe à partir de la norme Euro 4 et qui se généralise pour les normes Euro 5 et Euro 6. Cette injection directe, qui consiste à injecter le carburant à haute pression directement dans la chambre de combustion, permet un gain de performance et de rendement.

Pour les véhicules Diesel, une première technologie de dépollution rendue obligatoire en 1998 pour tous les véhicules est le catalyseur d'oxydation Diesel (DOC). Ce dispositif permet de réduire les émissions de CO et de HC par des réactions d'oxydation. La réduction des émissions de particules afin de se conformer aux limites d'émissions de PM et de PN de plus en plus strictes nécessite un filtre à particule (FAP) qui permet de réduire considérablement les émissions en masse des particules (environ 95 %). Les FAP sont utilisés dans la production de véhicules depuis 2000 et ils seront obligatoires pour satisfaire la norme Euro 5. Ils éliminent les particules des gaz d'échappement par filtration physique. Deux technologies de filtres sont employées actuellement : les FAP additivés et catalysés. La différence entre ces deux types de filtres est la méthode de catalyse lors des régénérations (phénomènes permettant de nettoyer les filtres pendant leur utilisation). Pour le FAP catalysé, un catalyseur de réchauffement des gaz est ajouté dans le filtre afin de faciliter l'élimination des particules en abaissant leur température de combustion. Tandis que pour le FAP additivé, c'est un additif ajouté au carburant qui permet d'abaisser la température de combustion des particules piégées dans le filtre. Pour contrôler les émissions de NO_x des véhicules Diesel, différents systèmes sont proposés par les constructeurs dont la recirculation des gaz d'échappement (RGE), qui par ajout au mélange frais permettent une baisse de la température dans la chambre de combustion et donc une réduction de la formation de NO_x. À partir de la norme Euro 6, la RGE ne permet pas de réduire suffisamment les émissions de NO_x pour satisfaire la valeur limite d'émission plus faible, et les constructeurs ont donc développé deux dispositifs de réduction des NO_x, le LNT (Lean NO_x Trap) et le SCR (Selective Catalytic Reduction) (Prasad et al., 2011 ; Reşitoğlu et al., 2015 ; Louis, 2018).

Bien que ces technologies permettent de réduire significativement les émissions de composés réglementés, elles peuvent affecter (positivement ou négativement) les émissions de certains autres polluants dit non-réglementés (dont les émissions ne sont pas limitées par les normes Euro). Ainsi par exemple, les FAP réduisent les émissions massiques de particules, avec une efficacité d'environ 95 %, mais ils peuvent induire une augmentation des émissions de particules fines et ultrafines (émissions en nombre) et affecter les émissions de NO₂, de composés organiques volatils (COV), d'hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP), de BTEX (benzène, toluène, éthylbenzène et xylène) et de BC (Hall et al., 1998 ; Sluder et al., 2000 ; Mohr et al., 2006 ; Fino et al., 2007 ; Bach et al., 2008 ; Ravindra et al., 2008 ; Louis et al., 2016 ; Louis et al., 2016). L'étude récente de Louis et al (2016) a montré que les véhicules avec un FAP catalysé émettent environ 3 fois plus de composés carbonylés et 10 fois plus de particules que les véhicules avec un FAP additivé pendant les cycles de conduite urbains, tandis que les véhicules avec un FAP additivé émettent 2 fois plus de BTEX et 5 fois plus de composés carbonylés pendant les cycles de conduite autoroutiers. Pour les VP essence, l'introduction des moteurs à injection directe entraîne des émissions importantes de PN et de BC (Köhler et al., 2013 ; Liang et al., 2013 ; Louis et al., 2016 ; Martinet et al., 2017).

2.3. Polluants non-réglementés

Les émissions des polluants non-réglementés ne sont que rarement mesurées en conditions réelles et leur intégration dans les modèles d'émissions est limitée ou de faible qualité. En conséquence, leurs émissions pour un trafic ou l'ensemble d'un parc automobile ne peuvent pas être estimées précisément, de même que leurs impacts sur la santé humaine et l'environnement. Pourtant certains polluants non-réglementés, qui seront étudiés par la suite, montrent des impacts importants sur la santé, l'environnement ou la formation de polluants secondaires.

2.3.1. Particules

2.3.1.1. Particules ultrafines

Les émissions de particules, notamment mesurées en nombre, sont limitées depuis la mise en place de la norme Euro 5. Cependant, lors des mesures réglementaires, le protocole de mesure des particules (PMP) mis en place par l'UE impose de ne pas mesurer les particules inférieures à 23 nm qui sont semi-volatiles (Giechaskiel et al., 2008). Toutefois, certaines études ont montré que les particules de taille inférieure à 23 nm peuvent représenter plus de 40 % des émissions de PN pour plusieurs catégories de véhicules (Kittelson et al., 2006 ; Gidney et al., 2010 ; Giechaskiel et al., 2010 ; Louis et al., 2016). De plus, il a été montré que plus les particules sont petites plus leurs effets sur la santé sont dangereux (Terzano et al., 2010 ; Knibbs et al., 2011) notamment en pénétrant plus profondément dans les poumons (Wichmann et al., 2000) d'où elles peuvent atteindre la circulation sanguine et même le cerveau (Zhu et al., 2007).

2.3.1.2. Carbone suie

La combustion incomplète dans le moteur entraîne la formation de particules qui sont principalement composées de suie, et qui sont appelées carbone suie, ou « black carbon (BC) ». Les émissions de suie contribuent largement au développement de problèmes de santé tels que des difficultés respiratoires, des maladies cardiovasculaires, des allergies, des cancers (notamment des poumons et de la vessie). Elles contribuent plus généralement à la pollution de l'air, de l'eau et du sol, à la perte de la productivité agricole, et affectent le climat au niveau local, régional et mondial (Prasad et al., 2011).

2.3.2. Composés organiques

Les composés organiques volatils (COV) sont définis comme des composés organiques contenant au moins l'élément carbone et un ou plusieurs éléments tels que l'hydrogène, les halogènes, l'oxygène..., et ayant une pression de vapeur de 0,01 kPa ou plus à une température de 293,15 K ou ayant une volatilité correspondante dans les conditions d'utilisations particulières (Cicoella, 2008). Cette volatilité est définie par différents degrés (volatils, volatils intermédiaires et semi-volatils), avec les COV présents en phase gazeuse dans l'atmosphère et dont les molécules contiennent entre 6 et 11 atomes de carbone, et les composés organiques semi-volatils (COSV) et intermédiaires (COVI) qui se répartissent en phase gazeuse et particulaire dans l'atmosphère (Haddad, 2011). Les COVI sont des composés dont les molécules comprennent entre 12 et 22 carbones, tandis que les COSV comprennent entre 23 et 30 carbones (Zhao et al., 2016). Les principales classes de COV émises par les véhicules routiers et présentes dans l'air urbain sont les alcanes (composés aliphatiques), les composés aromatiques et les composés carbonylés (Atkinson et Arey, 2003).

2.3.2.1. Composés aromatiques

Les composés aromatiques sont des molécules formées d'au moins un cycle d'atomes de carbone comme dans le cas du benzène (Figure 3). Les BTEX qui comprennent le benzène, le toluène, l'éthylbenzène, et les xylènes (o-xylène, m-xylène et p-xylène) sont tous des composés mono-aromatiques (Figure 3). En regard de leurs effets sur la santé, ils sont considérés comme des polluants prioritaires selon l'agence de protection de l'environnement des États-Unis (EPA) (Fayemiwo et al., 2017). Et notamment le benzène qui est classé comme substance cancérigène pour l'Homme par l'EPA et le CIRC.

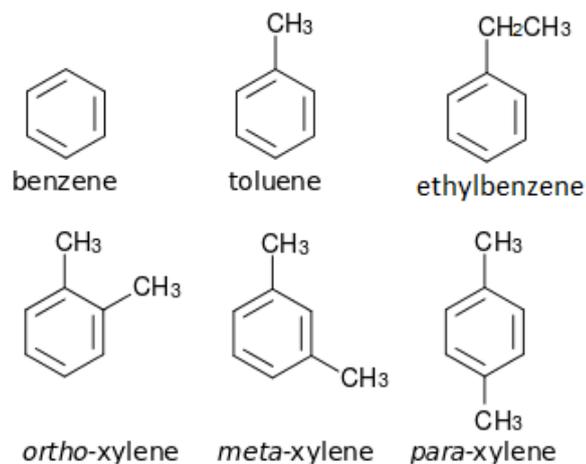


Figure 3. Structure des différents composés BTEX.

2.3.2.2. Composés aliphatiques

Les alcanes sont les composés aliphatiques les plus présents dans les gaz d'échappement et dans l'air urbain. Ce sont des hydrocarbures à chaîne carbonée linéaire ou ramifiée. Ces alcanes, notamment les linéaires comprenant entre 12 et 30 carbones (COVI et COSV), sont des précurseurs importants pour la formation des aérosols organiques secondaires (AOS) (Gentner et al., 2012). Ces AOS, qui résultent de cette formation, sont des particules de petite taille (entre 3 et 30 nm), très dangereuses pour la santé (Partie 2.3.1.1), et qui peuvent à leur tour générer par nucléation de nouvelles particules (Louis, 2018).

2.3.2.3. Composés carbonylés

Les composés carbonylés sont des composés organiques qui comportent un groupe carbonyle (CO). Ils incluent notamment les aldéhydes, caractérisés par le groupement fonctionnel COH. Le formaldéhyde et l'acétaldéhyde sont les deux composés les plus toxiques de cette famille, entraînant des irritations respiratoires et cancérogènes pour l'Homme. Les composés tels que le butanal et le propanal sont moins toxiques. L'acroléine qui est un aldéhyde insaturé, est également un puissant irritant respiratoire (Cicoella, 2008).

3. Métrologie des émissions de polluants des véhicules

Il existe plusieurs méthodes pour mesurer les émissions de polluants des véhicules routiers. Ce sont principalement :

- les approches qui reposent sur des tests des véhicules sur un banc d'essai (banc à rouleau),
- celles qui reposent sur du matériel de mesure embarqué à bord d'un véhicule (celui-ci pouvant être conduit sur route en conditions normales de circulation),
- des techniques de mesure à la suite d'un autre véhicule,

- les approches reposant sur des mesures in-situ de concentrations de polluants, dans un tunnel routier, en bord de route, ou encore celles utilisant des techniques de Remote Sensing au passage des véhicules.

3.1. Mesures sur banc à rouleau

3.1.1. Description du banc à rouleau

Un exemple de banc à rouleau, qui permet la mesure des polluants, est utilisé par le laboratoire Environnement-Aménagement, Sécurité et Éco-conception (EASE) de l'Institut français des sciences et technologies des transports, de l'aménagement et des réseaux (IFSTTAR). La Figure 4 montre le schéma du banc à rouleau et des équipements utilisés pour la mesure des émissions.

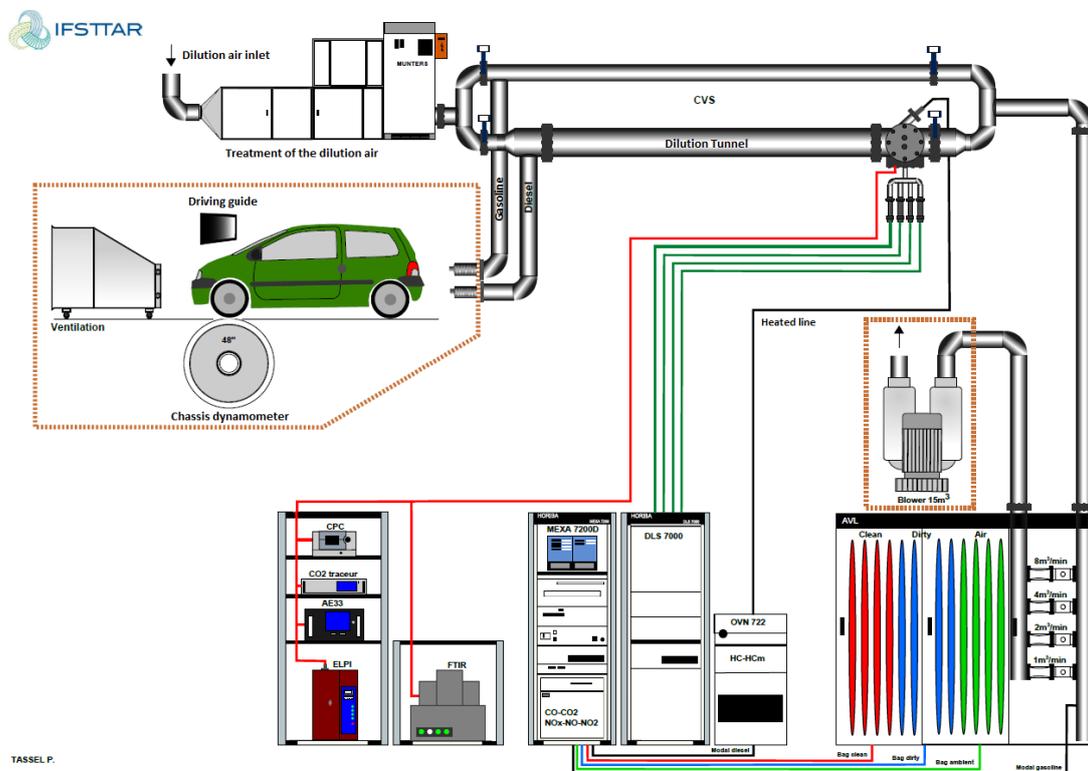


Figure 4. Schéma du banc à rouleau de l'IFSTTAR et des équipements utilisés pour la mesure des émissions.

Ce banc est caractérisé par un mono-rouleau de 48 pouces sur lequel sont placées les roues motrices du véhicule. Lorsque le véhicule roule, le rouleau applique une résistance qui permet de simuler les conditions de roulage sur route. Lors des essais, le moteur est refroidi par un système de ventilation sur l'avant du véhicule avec une vitesse égale à celle du véhicule. Pour simuler les conditions de conduite, des cycles de conduite (définis dans la partie suivante) sont visualisés sur un écran placé devant le véhicule, ce qui permet au conducteur de reproduire la vitesse du cycle en fonction du temps. Le logiciel du banc permet d'enregistrer les caractéristiques de fonctionnement du véhicule (consommation de carburant, vitesse, accélération, distance parcourue, température de fonctionnement). Pour la mesure des émissions, les gaz d'échappement sont prélevés en sortie du pot d'échappement par un système de prélèvement. Ces gaz sont dilués avec de l'air filtré et envoyés

dans un tunnel de dilution à volume constant (CVS). Les appareils de mesure sont placés en sortie du CVS et prélèvent le mélange « gaz d'échappement et air de dilution » afin de mesurer les concentrations de polluants dans les gaz d'échappement et d'en déduire les quantités émises par le véhicule.

3.1.2. Cycles de conduite

Les cycles de conduite utilisés pour la mesure des émissions de polluants sur banc à rouleau représentent des profils de vitesses que doivent reproduire les véhicules en fonction du temps. Ils permettent d'effectuer des mesures d'émission de manière répétable afin d'obtenir des émissions de polluants très précises et de permettre la comparaison entre différents véhicules. Pour représenter au mieux les conditions de conduite et d'émission, ces cycles doivent être représentatifs des utilisations quotidiennes. Ils sont donc construits en utilisant des véhicules privés instrumentés qui donnent des informations sur leurs conditions d'usage et de fonctionnement. Ces conditions sont analysées à partir des vitesses enregistrées lors de leurs déplacements quotidiens. Différents types de trajets sont établis en fonction des conditions d'usage qui sont des trajets urbains, routiers ou autoroutiers (André 1998).

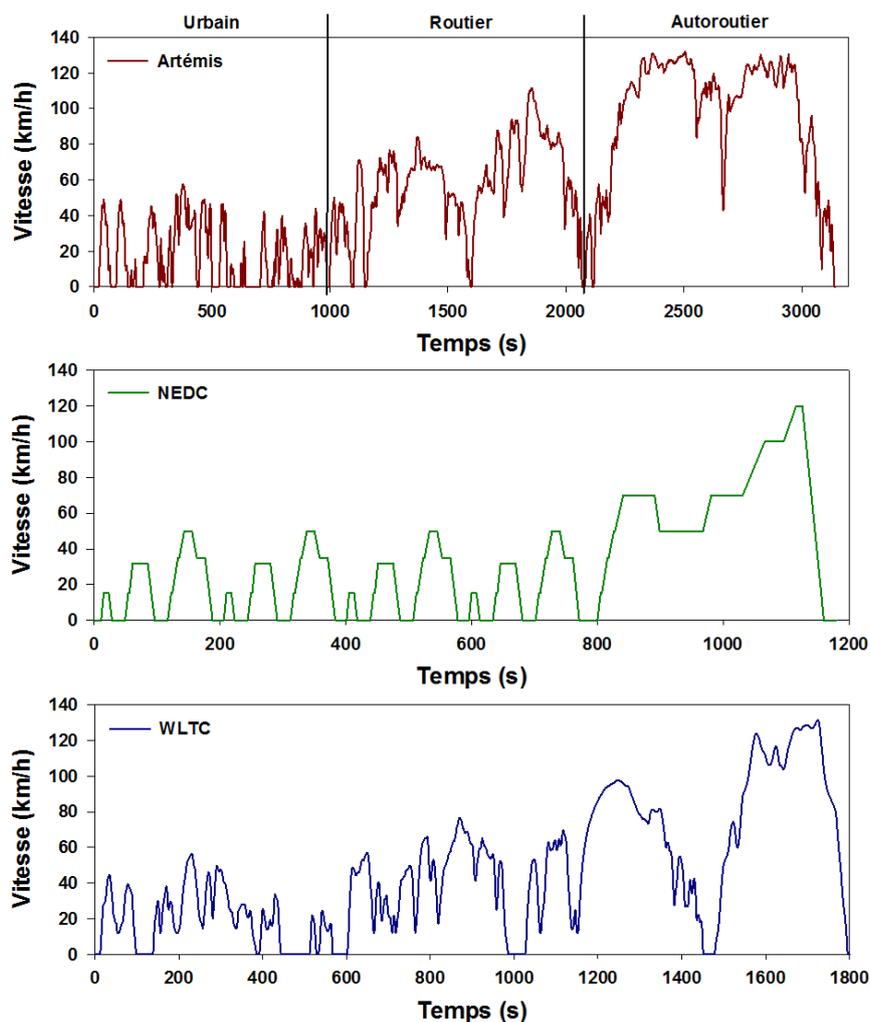


Figure 5. Profil des cycles de conduite Artémis, NEDC et WLTC.

Pour l'homologation des véhicules, les directives Européennes prescrivent des cycles de conduite spécifiques aux conditions de circulation en Europe. Jusqu'à la norme Euro 6, le cycle d'homologation est le NEDC (New European Driving Cycle), élaboré initialement pour représenter les conditions de circulation en zone urbaine. La représentativité de ce cycle a été largement questionnée ces dernières années notamment en raison des sous-estimations des émissions de polluants mesurées lors de son utilisation sur banc à rouleau. À partir de 2018, pour les nouvelles normes Euro (Euro 6c mise en place en septembre 2018), un nouveau cycle d'homologation a été développé, le WLTC (World harmonized Light-duty vehicles Test Cycles). Comparé au NEDC, ce cycle se rapproche d'avantage des conditions réelles de conduite des véhicules (Figure 5).

D'autres cycles peuvent être utilisés pour mesurer les émissions des véhicules, notamment les cycles de conduite Artémis qui ont été développés dans le cadre d'un projet Européen. Ces cycles sont représentatifs des conditions de conduite européenne pour des trajets urbains, routiers et autoroutiers (André, 2004). De plus, chacun de ces cycles Artémis inclut différentes conditions spécifiques de conduite (telles qu'une circulation urbaine dense ou fluide, des périodes de congestion avec des arrêts et de congestion avec des faibles vitesses pour le cycle urbain, Tableau 4).

Tableau 4. Principales caractéristiques des sous-cycles Artémis urbain.

	Durée (s)	Vitesse moyenne (km/h)	Nombre de stop	Durée du stop (s)
Urbain dense	236	15,5	5	69
Urbain fluide	198	31,8	2	16
Congestion et arrêt	243	8,7	6	141
Congestion à faible vitesse	128	11,8	3	24
Fluide stable	116	21,7	2	11

3.1.3. Facteurs d'émission calculés sur banc à rouleau

Les concentrations de polluants dans les gaz d'échappement dilués mesurés par les analyseurs permettent de calculer des facteurs d'émission pour les différents polluants étudiés, réglementés (CO, HC, NO_x, PM, PN) ou non-réglés (PN ultrafines, BTEX, alcanes, composés carbonylés). Le Tableau 5 donne des facteurs d'émission mesurés sur banc à rouleau, notamment à l'IFSTTAR (Rehn et al., 2013 ; Liu et al., 2017) pour le CO, les HC et les NO_x pour différents types de VP et différents cycles de conduite. Les facteurs d'émission des PN, du BC et des BTEX mesurés principalement à l'IFSTTAR (Louis et al., 2016 ; Martinet et al., 2017) sont donnés dans le Tableau 6 (pour différents véhicules et cycles de conduite).

Tableau 5. Facteurs d'émission obtenus sur banc à rouleau pour les polluants réglementés.

Véhicules	Cycles	Facteurs d'émission (mg/véh/km)						Publications
		Démarrage à chaud			Démarrage à froid			
		CO	HC	NO _x	CO	HC	NO _x	
VP Euro 6 Diesel (1 véhicule)	Artémis urbain	34	67	1070	260	35	610	
	Artémis routier	30	12	615	--	--	--	
	Artémis autoroutier	16	16	200	--	--	--	
	NEDC	--	--	--	105	64	560	
	WLTC	--	--	--	100	25	320	
VP Euro 6 essence injection directe (ID) (1véhicule)	Artémis urbain	30	3	14	105	11	10	
	Artémis routier	125	2	4	--	--	--	
	Artémis autoroutier	27 000	75	3	--	--	--	
	NEDC	--	--	--	420	50	6	
	WLTC	--	--	--	1220	35	15	
VP Euro 5 Diesel (3 véhicules)	Artémis urbain	590 – 760	12 – 37	590 – 760	150 – 870	27 – 125	330 – 720	Liu et al., 2017
	Artémis routier	24 – 37	2 – 14	380 – 490	--	--	--	
	Artémis autoroutier	3 – 24	0,3 – 2	500 – 910	--	--	--	
	NEDC	--	--	--	330 – 790	25 – 90	190 – 310	
VP Euro 5 essence ID (1 véhicule)	Artémis urbain	32	4	130	1 880	250	120	
	Artémis routier	30	2	23	--	--	--	
	Artémis autoroutier	85	3	5	--	--	--	
	NEDC	--	--	--	1000	250	210	
VP Euro 4 diesel (1 véhicule)	Artémis urbain	500	21	500	1 630	60	490	
	Artémis routier	280	8	310	--	--	--	
	Artémis autoroutier	60	60	290	--	--	--	
	NEDC	--	--	--	580	60	235	
VP Euro 4 essence (1 véhicule)	Artémis urbain	20	6	120	40	20	110	
	Artémis routier	80	6	30	--	--	--	

	Artémis autoroutier	950	32	12	--	--	--	
	NEDC	--	--	--	500	70	25	
VP Euro 5 essence (7 véhicules)	Artémis urbain	100 – 1 000	5 – 155	10 – 200	--	--	--	
	Artémis routier	210 – 800	1 – 17	10 – 24	--	--	--	
	Artémis autoroutier	480 – 1 700	2 – 33	2 – 43	--	--	--	
	NEDC	--	--	--	210 – 500	30 – 80	5 – 33	Fontaras et al., 2014
VP Euro 5 Diesel (6 véhicules)	Artémis urbain	10 – 180	3 – 16	410 – 760	--	--	--	
	Artémis routier	55 – 70	0,6 – 19	180 – 570	--	--	--	
	Artémis autoroutier	10 – 55	0,8 – 8	130 – 430	--	--	--	
	NEDC	--	--	--	140 – 340	8 – 48	60 – 210	
VP Euro 4 Diesel (2 véhicules)	Artémis urbain	25 – 115	10 – 30	250 – 530	93 – 325	12 – 65	370 – 530	
	Artémis routier	3 – 18	2 – 5	170 – 300	--	--	--	
	NEDC	--	--	--	120 – 310	40 – 70	260 – 280	
VP Euro 4 essence (1 véhicule)	Artémis urbain	50	10	160	125	13	93	
	Artémis routier	375	3	67	--	--	--	
	NEDC	--	--	--	620	45	25	Rehn, 2013
VP Euro 3 Diesel (1 véhicule)	Artémis urbain	365	110	730	600	150	750	
	Artémis routier	75	30	420	--	--	--	
	NEDC	--	--	--	620	110	390	
VP Euro 2 essence (1 véhicule)	Artémis urbain	2 250	175	500	2 300	235	600	
	Artémis routier	1 250	60	75	--	--	--	
	NEDC	--	--	--	2 400	175	650	

Tableau 6. Facteurs d'émission obtenus sur banc à rouleau pour des polluants non-réglementés.

Polluants	Véhicules	Cycles	Facteurs d'émission		Publications
			Démarrage à chaud	Démarrage à froid	
PN (#/véh/km)	VP Euro 6 Diesel	Artémis urbain	$9,3 \times 10^9$	$3,1 \times 10^{11}$	Martinet et al., 2017
	VP Euro 6 essence ID		$2,3 \times 10^{12}$	$1,4 \times 10^{12}$	
BC (ng/véh/km)	VP Euro 6 Diesel	Artémis urbain	3×10^3	$2,3 \times 10^4$	
	VP Euro 6 essence ID		$4,5 \times 10^4$	$5,5 \times 10^5$	
BTEX ($\mu\text{g}/\text{véh}/\text{km}$)	VP Euro 6 Diesel	Artémis urbain	470	145	
	VP Euro 6 essence ID		25	230	
PN (#/véh/km)	VP Euro 5 Diesel	Artémis urbain	9×10^9	$5,5 \times 10^{11}$	
	VP Euro 5 essence ID		2×10^{12}	$5,6 \times 10^{12}$	
	VP Euro 4 Diesel		$3,5 \times 10^{12}$	$6,1 \times 10^{12}$	
	VP Euro 4 essence		$1,4 \times 10^{12}$	$2,5 \times 10^{12}$	
	VP Euro 3 Diesel		$7,8 \times 10^{13}$	$8,1 \times 10^{13}$	
	VP Euro 3 essence		$1,1 \times 10^{11}$	$2,1 \times 10^{11}$	
BC (ng/véh/km)	VP Euro 5 Diesel	Artémis urbain	$4,1 \times 10^4$	$2,3 \times 10^5$	Louis et al., 2016
	VP Euro 5 essence ID		5×10^5	$1,5 \times 10^6$	
	VP Euro 4 Diesel		$1,1 \times 10^6$	$1,9 \times 10^6$	
	VP Euro 4 essence		$3,9 \times 10^5$	$5,2 \times 10^5$	
	VP Euro 3 Diesel		$4,2 \times 10^7$	$1,9 \times 10^7$	
	VP Euro 3 essence		$3,9 \times 10^4$	$8,6 \times 10^4$	
BTEX ($\mu\text{g}/\text{véh}/\text{km}$)	VP Euro 5 Diesel	Artémis urbain	240	780	
	VP Euro 5 essence ID		200	33 480	
	VP Euro 4 Diesel		180	500	
	VP Euro 4 essence		230	1 700	
	VP Euro 3 Diesel		1 940	3 320	
PN (#/véh/km)	VP Euro 2 Diesel	Artémis urbain	$2,1 \times 10^{14}$	--	EMEP/EEA, 2016
	VP Euro 1 Diesel		4×10^{14}		
	VP Euro 1 essence		$8,8 \times 10^{12}$		

3.1.4. Avantages et inconvénients

Les mesures sur banc à rouleau sont employées pour l'homologation des véhicules particuliers suivant les directives Européennes liées aux normes Euro, mais également pour étudier les caractéristiques d'émission de certains types de véhicules ou de polluants, évaluer les technologies de contrôle des émissions ou analyser les performances en matière d'émissions de différents types de carburants. Ces mesures sont effectuées dans des conditions de laboratoire très contrôlées, avec des opérateurs qui contrôlent le suivi des cycles de conduite et les conditions expérimentales. Toutes ces conditions de mesure permettent d'obtenir une forte répétabilité des résultats afin d'obtenir des facteurs d'émission robustes. Elles permettent également d'avoir un haut degré de standardisation des mesures. Cependant, les essais sur banc à rouleau ne représentent pas toujours les émissions réelles des véhicules individuels, notamment avec une gamme limitée de conditions d'essais (températures ambiantes, routines de pré-conditionnement du véhicule, absence de pente). De plus, les résultats obtenus sur banc peuvent ne pas être représentatifs des émissions de l'ensemble d'un parc de véhicules, étant donné que de manière générale, seuls quelques véhicules de chaque catégorie technologique sont testés. Alors que pour une même catégorie, on observe une grande diversité de marques et de modèles qui peuvent avoir des émissions très variables pour les polluants, comme c'est le cas pour les mesures données dans le Tableau 5, et, un même modèle de véhicule peut également avoir des différences d'émission pour un même polluant dans des conditions de mesures similaires. L'influence de l'état des véhicules (entretien, âge, kilométrage) ainsi que de la variabilité des comportements de conduite sur les émissions sont des facteurs très variables qui ne peuvent pas être suffisamment reproduits lors de mesures sur banc à rouleau.

3.2. Mesures alternatives au banc à rouleau

Pour répondre aux inconvénients du banc à rouleau sur les mesures dans des conditions réelles de conduite et avec des parcs de véhicules représentatifs, d'autres méthodes de mesure alternatives peuvent être appliquées.

3.2.1. Mesures embarquées (PEMS)

Les mesures embarquées permettent d'étudier les émissions des véhicules routiers tout en les conduisant sur route dans des conditions réelles de conduite. Cette méthode utilise un PEMS (Portable Emissions Measurement System) qui est embarqué sur le véhicule et permet de mesurer les émissions de polluants réglementés (CO, HC, NO_x et PN).

3.2.1.1. Description du PEMS

Le PEMS contient généralement trois analyseurs, pour le CO, les HC et les NO_x. Certains PEMS plus récents sont équipés d'un analyseur supplémentaire capable de mesurer les émissions de PN (Giechaskiel et al., 2015 ; Gallus et al., 2016 ; Giechaskiel et al., 2018). Ces analyseurs permettent de mesurer pour ces polluants, la quantité (en masse, ou en nombre pour les particules) émise par seconde par le véhicule. En plus des analyseurs de polluants, il est équipé d'un tube de Pitot qui

mesure le débit d'échappement, d'une sonde atmosphérique enregistrant la température et l'hygrométrie, d'une sonde pour la température des gaz d'échappement et d'un GPS pour connaître la vitesse du véhicule et sa position.

3.2.1.2. Facteurs d'émission calculés avec un PEMS

Les données mesurées par le PEMS permettent de déterminer les émissions de polluants du véhicule et ainsi de calculer des facteurs d'émission. Des mesures embarquées avec un PEMS ont été réalisées dans différentes études pour mesurer les émissions de CO, d'HC et de NO_x pour différents types de véhicules (VP, VUL, PL) de normes pré-Euro à Euro 6, et également, les émissions de PN pour des véhicules récents (Euro 5 et Euro 6). Les tests peuvent être exécutés dans différentes conditions de conduite (urbaines, routières et autoroutières). Le Tableau 7 et le Tableau 8 donnent les facteurs d'émission pour les différents polluants réglementés obtenus lors d'études reposant sur des mesures embarquées à l'aide d'un PEMS (Rubino et al., 2007 ; Daham et al., 2009 ; Weiss et al., 2011 ; May et al., 2014 ; Giechaskiel et al., 2015 ; Kadijk et al., 2015a ; Kadijk et al., 2015b ; Gallus et al., 2016 ; Ntziachristos et al., 2016).

Tableau 7. Facteurs d'émission obtenus pour des mesures embarquées effectuées avec un PEMS sur des VP pour les différents polluants réglementés.

Polluants	Véhicules	Conditions de conduite	Facteurs d'émission	Publications
PN (#/véh /km)	VP Euro 5 essence ID	Urbaine	5×10^{12}	Gallus et al., 2016
		Urbaine avec démarrage à froid	1×10^{13}	
PN (#/véh /km)	VP Euro 5 Diesel	Urbaine, routière et autoroutière (Vitesse moyenne environ 50 km/h)	8×10^{11}	Giechaskiel et al., 2015
	VP Euro 5 Diesel		8×10^{10}	
	VP Euro 6 essence ID (2 véhicules) VP Euro 5 essence ID (4 véhicules)		$(0,8 - 1) \times 10^{12}$ $(1 - 8) \times 10^{12}$	
NO _x (g/véh /km)	VP Euro 5 Diesel	Urbaine	0,8	Ntziachristos et al., 2016
	VP Euro 6 Diesel		0,5	
NO _x (g/véh /km)	VP Euro 6 Diesel (7 véhicules)	Urbaine	0,08 – 0,7	Kadijk et al., 2015a
CO (g/véh /km)	VP Euro 3 essence	Urbaine et routière (vitesse moyenne 35 km/h)	0,13	Weiss et al., 2011
	VP Euro 4 Diesel (2 véhicules)		0,13 – 0,27	
	VP Euro 4 essence		0,58	
	VP Euro 5 Diesel (2 véhicules) VP Euro 5 essence (3 véhicules)		0,17 – 0,25 0,17 – 0,40	
HC (mg/véh /km)	VP Euro 3 essence	Urbaine et routière (vitesse moyenne 35 km/h)	4	
	VP Euro 4 Diesel (2 véhicules)		7 – 13	

	VP Euro 4 essence		8	
	VP Euro 5 Diesel (2 véhicules)		2 – 4	
	VP Euro 5 essence (3 véhicules)		3 – 20	
NO_x (g/véh /km)	VP Euro 3 essence		0,06	
	VP Euro 4 Diesel (2 véhicules)	Urbaine et routière (vitesse moyenne 35 km/h)	0,6 – 0,8	
	VP Euro 4 essence		0,03	
	VP Euro 5 Diesel (2 véhicules)		0,35 – 0,65	
	VP Euro 5 essence (3 véhicules)		0,2 – 0,3	
CO (g/véh/km)	VP pré-Euro essence		0,98	
	VP Euro 1 essence	Urbaine	1,75	
	VP Euro 3 essence		0,98	
	VP Euro 4 essence		1,45	
HC (mg/véh/km)	VP pré-Euro essence		220	
	VP Euro 1 essence		170	
	VP Euro 2 essence	Urbaine	86	Daham et al., 2009
	VP Euro 3 essence		85	
	VP Euro 4 essence		68	
NO_x (g/véh/km)	VP pré-Euro essence		1	
	VP Euro 1 essence		0,74	
	VP Euro 2 essence	Urbaine	0,44	
	VP Euro 3 essence		0,39	
	VP Euro 4 essence		0,11	
CO (mg/véh/km)			750	
HC (mg/véh/km)	VP Euro 5 essence injection directe (ID)	Urbaine, routière et autoroutière (Vitesse moyenne environ 37 km/h)	20	May et al., 2014
NO_x (mg/véh/km)			70	
CO (mg/véh/km)			380	
HC (mg/véh/km)	VP Euro 5 Diesel	Urbaine, routière et autoroutière (Vitesse moyenne environ 45 km/h)	38	
NO_x (mg/véh/km)			480	

Tableau 8. Facteurs d'émission obtenus pour des mesures embarquées effectuées avec un PEMS sur des VUL et des PL pour les différents polluants réglementés.

Polluants	Véhicules	Conditions de conduite	Facteurs d'émission	Publications
PN (#/véh /km)	PL Euro 5 Diesel	Urbaine, routière et autoroutière (Vitesse moyenne environ 50 km/h)	2×10^{13}	Giechaskiel et al., 2015
	PL Euro 6 Diesel		6×10^{10}	
NO_x (g/véh /km)	VUL Euro 5 Diesel	Urbaine	1,6	Ntziachristos et al., 2016
NO_x (g/véh /km)	VUL Euro 5 Diesel (10 véhicules)	Urbaine	0,7 – 2,1	Kadijk et al., 2015b
CO (g/véh /km)	VUL Euro 3 Diesel	Urbaine et routière (vitesse moyenne 35 km/h)	0,15	
	VUL Euro 4 Diesel		0,23	
HC (mg/véh /km)	VUL Euro 3 Diesel	Urbaine et routière (vitesse moyenne 35 km/h)	5	Weiss et al., 2011
	VUL Euro 4 Diesel		12	
NO_x (g/véh /km)	VUL Euro 3 Diesel	Urbaine et routière (vitesse moyenne 35 km/h)	1,4	
	VUL Euro 4 Diesel		1,5	
NO_x (g/véh /km)	VUL Euro 3 Diesel	Urbaine (vitesse moyenne 14 km/h)	1,75	Rubino et al., 2007
HC (g/véh/km)			0,03	

3.2.1.3. Avantages et inconvénients

Les mesures embarquées effectuées avec un PEMS sont utilisées pour étudier le comportement des émissions de polluants réglementés dans des conditions réelles de fonctionnement des véhicules routiers afin de valider des facteurs d'émission, d'améliorer les modèles d'émission ou d'étudier des performances en matière d'émissions des nouvelles motorisations ou des nouvelles technologies de dépollution. De nombreuses études ont réalisées des comparaisons sur les performances du PEMS par rapport aux matériels employés lors de mesure sur banc à rouleau (Dearth et al, 2005 ; Pelkmans et Debal, 2006 ; Gierczak et al., 2006 ; Durbin et al, 2007 ; Rubino et al, 2010 ; Liu et al, 2010). Celles-ci rapportent une « corrélation acceptable » avec les résultats des instruments de mesure de référence, validant le PEMS comme un outil robuste pour mesurer les émissions des véhicules routiers. Cependant, les différents PEMS ne permettent que la mesure des polluants réglementés (NO_x, CO, HC et parfois PN), ne prenant ainsi pas en compte les émissions des non-réglementés. Et, comme pour les tests sur banc à rouleau, la mesure ne concerne que les émissions du véhicule testé, et compte tenu d'une installation assez lourde et complexe du matériel, cela limite le nombre de véhicules étudiés, et en conséquence la représentativité des émissions qui peuvent en être déduites, en regard de la grande variété des véhicules qui composent un parc automobile.

3.2.2. Remote Sensing

Les deux méthodes de mesure des émissions, sur banc à rouleau et embarquée, sont appliquées pour mesurer les émissions d'un unique véhicule, ce qui restreint le nombre de véhicules étudiés et limite la représentativité par rapport au parc automobile en circulation, notamment avec la présence de véhicules plus ou moins bien entretenus ou des conditions de conduite différentes en fonction des conducteurs. Le Remote Sensing (ou télédétection) est une méthode qui permet de mesurer les émissions des polluants réglementés (CO, HC et NO_x) en bord de route d'un grand nombre de véhicules (jusqu'à des milliers par jour) et offre la résolution nécessaire pour identifier les niveaux d'émission des véhicules individuels (Franco et al., 2013). Cependant, le Remote Sensing ne permet pas de quantifier les émissions réelles du trafic (conditions de fonctionnement au passage des véhicules très spécifiques) et trouve plutôt son application dans la détection de véhicules polluants.

3.2.2.1. Description du Remote Sensing

Le Remote Sensing est un système qui se base sur la mesure des concentrations de polluants avec une lumière infrarouge et ultraviolette de longueurs d'onde spécifiques émise par une source placée au bord de la route. Cette lumière traverse le panache des gaz d'échappement émis par un véhicule passant vers un détecteur, situé sur le côté opposé d'une seule voie de circulation. Dans ce détecteur, la quantité de lumière absorbée est proportionnelle à la concentration de CO ou d'HC (mesurée dans l'IR) et de NO_x (mesurée dans l'UV) (Chan et al., 2004 ; Chan et al., 2005 ; Franco et al., 2013).

3.2.2.2. Méthode de calcul des facteurs d'émission

Les concentrations mesurées par le Remote Sensing sont utilisées pour mettre au point des facteurs d'émissions basés sur la consommation de carburant, en mesurant les rapports des concentrations de polluants et d'espèces contenant du carbone (CO₂, CO et HC) dans l'air ambiant et en les rapportant à la quantité de carburant consommée. Sachant que le rendement de conversion du carbone élémentaire dans le carburant est d'environ 99 %, pour le fonctionnement normal des véhicules Diesel et essence, on peut supposer que la masse de carbone mesurée dans le panache de gaz d'échappement est principalement sous forme de CO₂ et de CO. Il est alors possible d'estimer un facteur d'émission pour un polluant P à partir de l'Équation (1) suivante (Singer et Harley, 1996 ; Franco et al., 2013) :

$$FE_P = \frac{w_C \times M_P}{M_C} \times \left(\frac{\left(\frac{[P]}{[CO_2]} \right)_{remote}}{1 + \left(\frac{[CO]}{[CO_2]} \right)_{remote}} \right) \quad \text{Équation (1)}$$

où FE_P est le facteur d'émission pour le polluant P donnée en kg de polluant émis par kg de carburant consommé, w_C est la fraction de masse de carbone pour le carburant considéré (0,85 pour

l'essence et 0,87 pour le Diesel), et M_P et M_C sont les masses moléculaires (en g/mol), respectivement, du polluant P et du carbone élémentaire.

3.2.2.3. Facteurs d'émission calculés avec le Remote Sensing

Le Remote Sensing a permis de calculer des facteurs d'émission pour les polluants réglementés (CO, HC et NO_x) dans des conditions réelles de conduite pour différentes catégories de véhicules. Le Tableau 9 et le Tableau 10 donnent les facteurs d'émission de ces polluants obtenus dans différentes études (Ekström et al., 2004 ; Guo et al., 2007 ; Chen et Borken-Kleefeld, 2014) pour des VP Diesel et essence, VUL Diesel et essence et PL Diesel de différentes normes Euro.

Tableau 9. Facteurs d'émission obtenus par des mesures effectuées avec le Remote Sensing pour des VUL et des PL pour les polluants réglementés.

Polluants	Véhicules	Conditions de conduite	Facteurs d'émission	Publications
CO (g/L)	VUL pré-Euro à Euro 2 essence	De 10 à 90 km/h, avec une vitesse moyenne de 40 km/h	160 – 280	Guo et al., 2007
	PL pré-Euro à Euro 2 essence		240	
HC (g/L)	VUL pré-Euro à Euro 2 essence	De 10 à 90 km/h, avec une vitesse moyenne de 40 km/h	6,7 – 22	
	PL pré-Euro à Euro 2 essence		14	
NO_x (g/L)	VUL pré-Euro à Euro 2 essence	De 10 à 90 km/h, avec une vitesse moyenne de 40 km/h	3,8 – 9,4	
	PL pré-Euro à Euro 2 essence		4	
NO_x (g/L)	PL pré-Euro Diesel	Urbaine et péri-urbaine (vitesse moyenne 44 km/h)	38	
	PL Euro I Diesel		25	
	PL Euro II Diesel		22	
	PL Euro III Diesel		21	
CO (g/kg)	VUL pré-Euro à Euro 5 essence	Péri-urbaine (vitesse moyenne 45 km/h)	17 – 220	Chen et Borken-Kleefeld, 2014
	VUL pré-Euro à Euro 5 Diesel		3 – 11	
HC (g/kg)	VUL pré-Euro à Euro 5 essence	Péri-urbaine (vitesse moyenne 45 km/h)	0,2 – 4,6	
	VUL pré-Euro à Euro 5 Diesel		0,4 – 1,2	
NO_x (g/kg)	VUL pré-Euro à Euro 5 essence	Péri-urbaine (vitesse moyenne 45 km/h)	0 – 31	
	VUL pré-Euro à Euro 5 Diesel		13 – 25	

Tableau 10. Facteurs d'émission obtenus par des mesures effectuées avec le Remote Sensing pour des VP pour les polluants réglementés.

Polluants	Véhicules	Conditions de conduite	Facteurs d'émission	Publications
CO (g/L)	VP pré-Euro à Euro 2 essence	De 10 à 90 km/h, avec une vitesse moyenne de 40 km/h	60 – 330	
HC (g/L)	VP pré-Euro à Euro 2 essence	De 10 à 90 km/h, avec une vitesse moyenne de 40 km/h	2 – 28	Guo et al., 2007
NO_x (g/L)	VP pré-Euro à Euro 2 essence	De 10 à 90 km/h, avec une vitesse moyenne de 40 km/h	4 – 10	
CO (g/L)	VP pré-Euro essence		144	
	VP Euro 1 essence	Urbaine et péri-urbaine (vitesse moyenne 44 km/h)	36	
	VP Euro 2 essence		15	
	VP Euro 3 essence		5	
HC (g/L)	VP pré-Euro essence		15	
HC (g/L)	VP Euro 1 essence	Urbaine et péri-urbaine (vitesse moyenne 44 km/h)	3,5	Ekström et al., 2004
	VP Euro 2 essence		0,7	
	VP Euro 3 essence		0,1	
NO_x (g/L)	VP pré-Euro essence		24	
	VP Euro 1 essence	Urbaine et péri-urbaine (vitesse moyenne 44 km/h)	9	
	VP Euro 2 essence		2,3	
	VP Euro 3 essence		1,4	
NO_x (g/L)	VP pré-Euro Diesel		7	
	VP Euro 1 Diesel	Urbaine et péri-urbaine (vitesse moyenne 44 km/h)	8	Ekström et al., 2004
	VP Euro 2 Diesel		12	
	VP Euro 3 Diesel		10	
CO (g/kg)	VP pré-Euro à Euro 5 essence	Péri-urbaine (vitesse moyenne 45 km/h)	8 – 110	
	VP pré-Euro à Euro 5 Diesel		3 – 8	
HC (g/kg)	VP pré-Euro à Euro 5 essence	Péri-urbaine (vitesse moyenne 45 km/h)	0 – 4,7	Chen et Borken-Kleefeld, 2014
	VP pré-Euro à Euro 5 Diesel		0,6 – 1,6	
NO_x (g/kg)	VP pré-Euro à Euro 5 essence	Péri-urbaine (vitesse moyenne 45 km/h)	0,6 – 25	
	VP pré-Euro à Euro 5 Diesel		14 – 19	

3.2.2.4. Avantages et inconvénients

Le principal avantage du Remote Sensing est qu'il permet de mesurer les émissions d'un grand nombre de véhicules présent sur un site de mesure avec des conditions de circulation spécifiques. Des études menées avec cette méthode peuvent aussi servir à évaluer les tendances des émissions et les effets des normes de contrôle des émissions sur les polluants réglementés pour des véhicules individuels dont la technologie d'émission peut être déterminée par l'enregistrement vidéo des plaques d'immatriculation et des références croisées avec les bases de données d'immatriculation des véhicules (Schifter et al., 2008 ; Carslaw et al., 2011). Cependant, cette méthode ne peut pas être utilisée sur plusieurs voies de circulation où le trafic est intense et, dans la plupart des cas, environ la moitié des données recueillies sont valides. De plus, le Remote Sensing est plus considéré comme une méthode de contrôle des véhicules (détection de gros pollueurs, influence de l'âge et de l'entretien sur les émissions) que comme une méthode de mesure des facteurs d'émission. Enfin, la plupart des études menées avec le Remote Sensing se concentrent sur les émissions de polluants réglementés ne prenant pas en compte celles des non-réglementés.

3.3. Méthodes de mesure in-situ

Des études ont montré que des différences significatives sont observées entre les émissions du trafic mesurées en laboratoire et dans des conditions réelles (Gertler et al., 2002 ; Yan et al., 2009 ; Ancelet et al., 2011). Les estimations d'émission dérivées de mesures de concentrations réalisées au bord de la route, soit dans un tunnel, soit près d'une autoroute, d'une route rurale ou d'une route urbaine, sont plus réalistes puisqu'elles représentent les émissions agrégées du parc roulant spécifiques aux conditions de circulation réelles représentées par les différents sites de mesure (Phuleria et al., 2007).

3.3.1. En bord de route

Les mesures de concentration en bord de route permettent d'étudier la contribution des émissions totales du trafic routier présent sur le site de mesure dans des conditions réelles de fonctionnement. Ces mesures s'effectuent dans l'air ambiant au plus proche du trafic routier mais où d'autres sources de polluants peuvent être présentes. Afin d'éliminer les impacts de ces sources dans les mesures, des concentrations de fond urbaines sont mesurées et sont soustraites aux mesures faites au bord de la route afin d'obtenir uniquement les émissions du trafic routier (Harrison, 2009).

3.3.2. En tunnel

Les études en tunnel consistent à mesurer les émissions totales de polluants provenant des véhicules qui traversent un tunnel et à établir une corrélation entre les émissions de polluants et le parc en circulation (Jamriska et al., 2004 ; Hueglin et al., 2006). Contrairement aux études en bord de route dans l'air ambiant, les études en tunnel, du fait du confinement du site, permettent de mesurer uniquement les émissions du trafic routier puisque qu'aucune autre source d'émission n'est présente. Les mesures en tunnel permettent d'étudier un échantillon représentatif du parc de véhicules routiers

et représentent des conditions réelles de fonctionnement en tunnel. Des études ont été utilisées pour valider les modèles d'émissions du transport routier en comparant les résultats des mesures avec les émissions estimées par les modèles correspondant à la composition des véhicules circulant dans le tunnel (Hsu et al., 2001 ; Hausberger et al., 2003 ; Colberg et al., 2005). Elles ont également permis d'évaluer l'impact des améliorations technologiques et réglementaires sur les émissions (Kean et al., 2002 ; Stemmler et al., 2005 ; Ban-Weiss et al., 2008 ; Kean et al., 2009).

3.3.3. Poursuite d'un véhicule

La méthode de poursuite consiste à suivre un véhicule sur la route avec un laboratoire mobile (généralement une camionnette) équipé d'instruments de mesure de gaz et de particules qui mesurent les concentrations dans le panache d'échappement du véhicule suivi. Elle permet de fournir des données réelles sur les émissions des véhicules dans une vaste gamme de conditions de fonctionnement et d'environnement (Franco et al., 2013). Pour calculer par la suite les facteurs d'émission des polluants étudiés, le CO₂ est défini comme traceur de combustion et l'Équation (1), décrite dans la Partie 3.2.2.2 pour les mesures de Remote Sensing, est appliquée. Dans certains cas, le laboratoire mobile peut mesurer les concentrations dans le panache d'échappement d'un groupe de plusieurs véhicules afin d'obtenir des facteurs d'émission moyen par véhicule (Yli-Tuomi et al., 2005 ; Hudda et al., 2013).

3.3.4. Calcul des facteurs d'émission

Les différentes méthodes de mesure de concentrations in-situ (bord de route, tunnel, poursuite d'un véhicule) doivent permettre de calculer des facteurs d'émission pour les polluants, et notamment les non-réglementés, avec plusieurs méthodes d'estimation se basant sur différents principes, telles que la méthode des NO_x, en tunnel et du CO₂.

3.3.4.1. Méthode des NO_x

Cette méthode, pour estimer les facteurs d'émission in-situ pour des polluants, consiste à utiliser la concentration en NO_x. Elle se base sur le fait que les émissions de NO_x sont considérées comme un traceur des émissions du trafic routier (Johansson et al., 2009 ; Krecl et al., 2017), et suppose que la dilution du polluant entre les émissions des gaz d'échappement des véhicules et l'entrée des analyseurs, la dispersion et le comportement dans l'atmosphère sont comparables pour les NO_x et les autres polluants (Lohmeyer et al., 2002 ; Amato et al., 2010 ; Bukowiecki et al., 2010 ; Gietl et al., 2010). Sur la base de cette hypothèse, on considère que la dilution d'autres polluants peut être approchée par la dilution des NO_x. La méthode applique les différences des concentrations des NO_x et des concentrations d'un autre polluant, pour lequel on veut estimer le facteur d'émission, entre un site de fond urbain, dit « background », et un site d'intérêt (Imhof et al., 2005 ; Jones et al., 2006). La méthode s'appuie sur la formule suivante pour le calcul des facteurs d'émission :

$$FE_P = [P]_{Trafic} - [P]_{Background} \times \frac{FE_{NOx}}{[NOx]_{Trafic} - [NOx]_{Background}}$$

$$FE_P = \Delta P \times \frac{FE_{NOx}}{\Delta NOx} \quad \text{Équation (2)}$$

où FE_P et FE_{NOx} sont respectivement les facteurs d'émission pour le polluant P et les NO_x donnés en masse ou nombre par véhicule par kilomètre ($\mu\text{g}/\text{véh}/\text{km}$ ou $\#/\text{véh}/\text{km}$). ΔP et ΔNO_x sont les différences de concentrations entre le site « background » et le site de trafic, respectivement, pour le polluant P et les NO_x . Les facteurs d'émission de NO_x peuvent être estimés à l'aide d'un modèle d'émission comme COPERT (COmputer Programme to calculate Emissions from Road Transport) en fonction de la composition du parc observé sur le site de mesure et de la vitesse de circulation. L'utilisation du logiciel COPERT pour l'estimation des facteurs d'émission de NO_x est décrite dans la partie 6.1.1 du Chapitre 2.

3.3.4.2. Méthode en tunnel

Cette méthode d'estimation des facteurs d'émission in-situ se base sur la mesure de concentrations de polluants dans un tunnel. Elle utilise la différence de concentrations entre deux points distants de prélèvement dans le tunnel et considère que la différence mesurée entre ces deux points représente le taux d'émission du parc de véhicules qui passe entre ces deux points pendant le temps d'échantillonnage. Le calcul des facteurs d'émission se fait avec la formule suivante :

$$FE_P = \frac{(C_2 - C_1) \times A \times U \times t}{N \times L} \quad \text{Équation (3)}$$

où FE_P est le facteur d'émission pour le polluant P donné en masse ou nombre par véhicule par kilomètre ($\text{masse}/\text{véh}/\text{km}$ ou $\#/\text{véh}/\text{km}$). C_1 et C_2 sont les concentrations pour le polluant P mesurées aux deux points de prélèvement, sachant que C_1 est en amont de C_2 dans la direction du trafic. A est la section du tunnel en m^2 , U est la vitesse du vent en m/s et t est la durée d'échantillonnage. N est le nombre de véhicules total passant pendant la durée d'échantillonnage et L est la distance entre les deux points de prélèvement (Pierson et al, 1996 ; Lechowicz et al., 2008 ; Ho et al., 2009).

3.3.4.3. Méthode du CO_2

Cette méthode de calcul des facteurs d'émission se réfère à la consommation de carburant, en mesurant le rapport entre les concentrations de polluants et le CO_2 , qui est relié à la consommation, provenant des gaz d'échappement. Elle permet ainsi d'obtenir une masse de polluant émis par masse de combustible brûlé (Geller et al., 2005 ; Kam et al., 2012 ; Ning et al., 2012). L'équation suivante est appliquée pour le calcul des facteurs d'émission :

$$FE_P = \frac{[P]_{Trafic} - [P]_{Background}}{[CO_2]_{Trafic} - [CO_2]_{Background}} \times w_c \times 10^6$$

$$FE_P = \frac{\Delta P}{\Delta CO_2} \times w_c \times 10^6 \quad \text{Équation (4)}$$

où FE_P est le facteur d'émission du polluant P (en masse ou nombre par kilogramme de carburant brûlé). ΔP et ΔCO_2 sont les différences de concentrations entre le site « background et le site de trafic, respectivement, pour le polluant P et le CO_2 . w_c est la fraction de masse de carbone pour le carburant considéré.

3.3.5. Facteurs d'émission calculés avec les mesures in-situ

Le Tableau 11 donne des facteurs d'émission calculés pour des polluants non-réglés lors de mesure in-situ réalisées dans de précédentes études avec les caractéristiques des sites de mesure et des informations sur les parcs étudiés. De nombreuses études ont estimé des facteurs d'émission pour les PN et le BC (Ketzler et al., 2003 ; Gratmonev et al., 2004 ; Rose et al., 2005 ; Jones et al., 2006 ; Handler et al., 2008 ; Westerdahl et al., 2009 ; Wang et al., 2010 ; Brimblecombe et al., 2015 ; Dai et al., 2015 ; Zhang et al., 2015 ; Krecl et al., 2018). Pour les COV, quelques études ont mesuré des facteurs d'émission principalement dans un tunnel et pour les BTEX (Stemmler et al., 2005 ; Kawashima et al., 2006 ; Hung-Lung et al., 2007 ; Ho et al., 2009 ; Ait-Helal et al., 2015 ; Zhang et al., 2018).

Tableau 11. Facteurs d'émission obtenus dans de précédentes études pour les polluants non-réglés en utilisant différentes méthodes de mesure.

Polluants	Véhicules/ Parcs	Sites de mesure	Facteurs d'émission	Méthodes de mesure	Publications
PN (#/véh/km)	4 300 véhicules/heure 72 % de VP essence, 18 % de PL Diesel et 10 % de VUL essence	Proche d'une autoroute à Brisbane (Australie) en jours de semaine	$2,8 \times 10^{14}$	In-situ en bord de route	Gratmonev et al., 2004
	80 000 véhicules par jour de semaine Environ 3 300 véh/h dont 3 000 de VP et VUL essence et 300 de PL Diesel	Site urbain du centre-ville de Londres	$5,8 \times 10^{13}$	In-situ en bord de route	Jones et al., 2006
	26 000 véh/jour de semaine 6 à 8 % de PL et bus. Pour les VP et les VUL, 62 % d'essence avec un pot catalytique, 31 % d'essence sans catalyseur et 7 % de Diesel	Rue urbaine à Copenhague	3×10^{14}	In-situ en bord de route	Ketzler et al., 2003

	23 000 véh/jour de semaine 4 % de PL et bus	Rue urbaine à Leipzig proche du centre-ville Présence de feux de circulation	$4,9 \times 10^{14}$	In-situ en bord de route	Rose et al., 2005
	22 000 véh/jour 6 % de PL et bus	Site urbain du centre-ville de Zurich Présence de feux de circulation	$3,8 \times 10^{14}$	In-situ en bord de route	Rose et al., 2005
	Grande proportion de VP essence et faible proportion de PL et bus Diesel 60 % de VP, 11% de VUL, 14 % de 2-roues et 15 % de PL et bus VP : 91 % d'essence et 9 % d'éthanol VUL : 71 % d'essence, 7 % d'éthanol et 22 % de Diesel PL et Bus : 100 % de Diesel	Périphérique urbain à Pékin	1×10^{14}	In-situ en bord de route	Westerdahl et al., 2009
	60 000 véh/jour 95 % de VP et VUL	Rue urbaine dans la ville de Londrina (Brésil) Présence de feux de circulation	$9,3 \times 10^{14}$	In-situ en bord de route	Krecl et al., 2018
	De 60 000 à 90 000 véhicules/jours Entre 17 et 54 % de véhicules Diesel, entre 5 et 32 % de véhicules au gaz et entre 39 et 67 % de véhicules essence	Rue urbaine à Copenhague Tunnels routiers à Hong-Kong Vitesse limitée à 70 et 80 km/h	$1,9 \times 10^{14}$ $1,1 \times 10^{14}$	In-situ en bord de route In-situ dans un tunnel	Wang et al., 2010 Brimblecombe et al., 2015
	Décrit précédemment		$3,5 \times 10^7$	In-situ en bord de route	Imhof et al., 2005
	Décrit précédemment		$1,7 \times 10^7$	In-situ en bord de route	Westerdahl et al., 2009
	Décrit précédemment		$2,6 \times 10^7$	In-situ en bord de route	Krecl et al., 2018
BC (ng/véh/km)	1 800 véh/h 60 % de véhicules essence, 14 % de véhicules Diesel et 26 % de véhicules au gaz	Tunnel urbain à Guangzhou (Chine) Trois voies unidirectionnelles Vitesses comprises entre 18 et 45 km/h avec une vitesse moyenne de 33,4 km/h	$1,6 \times 10^7$	In-situ dans un tunnel	Dai et al., 2015

	Entre 39 000 et 43 000 véh/jour En moyenne, 61 % de VP essence, 12 % de PL Diesel et 27 % de bus et taxis au gaz	Tunnel urbain à Guangzhou Vitesse limitée à 50 km/h	$1,3 \times 10^7$	In-situ dans un tunnel	Zhang et al., 2015
	Entre 31 000 et 52 000 véh/jour Entre 4 et 12 % de PL	Tunnel routier proche d'une zone urbaine à Vienne (Autriche) Trois voies unidirectionnelles limitées à 80 km/h	$1,7 \times 10^7$	In-situ dans un tunnel	Handler et al., 2008
BTEX ($\mu\text{g}/\text{véh}/\text{km}$)	53 300 véh/jour 47 % de PL et bus Diesel, 43 % de VP et 2-roues essence et 10 % de taxis au gaz	Tunnel à Hong Kong Deux voies unidirectionnelles	$2,3 \times 10^4$	In-situ dans un tunnel	Ho et al., 2009
	En moyenne 1 800 VP et 140 PL par heure VP principalement essence et PL Diesel	Tunnel routier près de Zurich Deux voies unidirectionnelles Vitesse moyenne de 90 km/h	$1,6 \times 10^4$	In-situ dans un tunnel	Stemmler et al., 2005
	Entre 9 et 20 % de PL et bus VP et VUL : 5 % de Diesel et 95 % d'essence PL et bus : 100 % de Diesel	Tunnel autoroutier à Taiwan Trois voies unidirectionnelles Vitesse moyenne de 110 km/h	$5,5 \times 10^4$	In-situ dans un tunnel	Hung-Lung et al., 2007
	Uniquement pour les VP et les VUL En moyenne 24 000 véh/jour	Tunnel dans le centre-ville de Bruxelles Voies bidirectionnelles Vitesse entre 50 et 70 km/h	$1,5 \times 10^4$	In-situ dans un tunnel	Ait-Helal et al., 2015
	Caractéristiques similaires à celles décrites pour Zhang et al., 2015		$3,1 \times 10^4$	In-situ dans un tunnel	Zhang et al., 2018
	81 % de VP et VUL (essence), 12 % de PL et bus (Diesel) et 7 % de 2-roues	Route nationale à Fujisawa (Japon) Vitesse moyenne de 22 km/h	3×10^4	In-situ en bord de route	Kawashima et al., 2006

4. Résumé

Différentes méthodes sont actuellement utilisables pour mesurer les émissions polluantes des véhicules routiers. De nombreuses mesures sont effectuées sur les émissions de polluants réglementés (NO_x , CO, HC, PM et PN), dont des valeurs limites d'émissions sont imposées par l'UE afin de réduire les émissions du trafic routier et donc la pollution atmosphérique. Cependant, des autres polluants émis à l'échappement des véhicules routiers ne sont pas réglementés par ces

normes malgré leurs effets néfastes sur la santé humaine et le climat (PN ultrafines, BTEX, alcanes, composés carbonylés) et leurs émissions par les véhicules ne sont pas autant connues que celles des polluants réglementés.

Le banc à rouleau est la méthode la plus utilisée pour étudier les émissions de polluants réglementés ou non-réglementés des véhicules car elle permet d'effectuer des mesures dans des conditions très contrôlées et très répétables afin d'obtenir des facteurs d'émission très robustes. Mais, les essais sur banc ne permettent d'approcher qu'imparfaitement les émissions réelles du trafic routier composé d'un parc de véhicules très diversifiés, car le nombre et la diversité des véhicules testés sur banc à rouleau est restreint, de même que la diversité des conditions de circulation est limitée à quelques cycles d'essais représentatifs. Des mesures embarquées peuvent être également mises en place dans des conditions réelles de fonctionnement des véhicules et permettent d'obtenir des émissions réelles pour les polluants réglementés. Cependant, le nombre de véhicules étudiés est également restreint et le PEMS ne permet pas la mesure des polluants non-réglementés.

Des méthodes de mesure in-situ (en bord de route et dans un tunnel) permettent d'estimer les émissions d'un parc de véhicules dans des conditions réelles de fonctionnement et en environnement ambiant.

Les études in-situ réalisées jusqu'à maintenant, en tunnel et en bord de route, se concentrent principalement sur les émissions de PN et de BC, alors que les COV sont rarement estimés notamment les composés aliphatiques et carbonylés. Les BTEX sont quelquefois étudiés mais principalement lors d'études en tunnel. De plus, lors de ces études, les compositions des parcs en circulation ne sont pas précisément caractérisées. De manière générale, les pourcentages de VP, VUL et PL sont déterminés ou approchés ainsi que les pourcentages de véhicules Diesel et essence. Les compositions plus précises en fonction des réglementations Euro, des motorisations et des technologies de dépollution - qui sont pourtant des facteurs prépondérants des émissions - ne sont généralement pas connues dans ces études.

5. Objectifs

Le principal objectif de ces travaux est de questionner, proposer, développer, améliorer des méthodologies de mesures in-situ en vue de déterminer les émissions réelles et les facteurs d'émissions représentatifs des véhicules et du trafic routier pour les polluants réglementés mais aussi et surtout pour les polluants moins étudiés (et peu connus) et qui représentent cependant des enjeux importants (santé, climat).

Il s'agira ainsi de déterminer les dispositifs de mesure des concentrations de polluants dans l'air ambiant ainsi que ceux permettant de caractériser la composition détaillée et précise du parc automobile en circulation.

Il s'agira également de déterminer les méthodologies d'estimation des facteurs d'émission à partir des mesures de concentrations, des conditions de circulation et ambiantes, et de la composition du parc.

Les méthodologies développées dans ce cadre seront mises en œuvre sur différents sites de mesure en bord de route dans une zone urbaine et dans un tunnel proche d'une zone urbaine.

Les facteurs d'émissions seront déterminés à partir des méthodes d'estimation définies, analysés en fonction des différents sites de mesures ou des différentes compositions de parcs afin d'étudier leurs impacts sur les émissions et comparés avec ceux mesurés sur banc à rouleau ou dans d'autres études in-situ et ainsi vérifier leur cohérence.

Chapitre 2 : Matériels et méthodes

1. Introduction

Différentes campagnes in-situ ont été mises en place pour la mesure des émissions de polluants non-réglés dans des conditions réelles de circulation et pour des parcs roulants réels avec des mesures en bord de route dans un centre-ville (Nantes) et en zone urbaine (Lyon), qui sont des sites ouverts, et dans un tunnel (Nanterre, tunnel de La Défense), qui est un site confiné. Pendant les campagnes, différents types de matériels sont utilisés pour la mesure des concentrations de polluants ainsi que la caractérisation du parc roulant présent sur les sites. Des protocoles expérimentaux ont été élaborés et adaptés avec les différentes méthodes de mesures in-situ et d'estimation des facteurs d'émission in-situ.

2. Description des sites de mesure

2.1. Site ouvert en bord de route à Nantes

Ce site a été choisi car il représente différentes conditions de circulation en zone urbaine, avec des périodes de congestion du trafic, notamment le matin et le soir, et une période durant la journée où le trafic est plus fluide. C'est un boulevard urbain bidirectionnel 2 x 1 voies, avec une zone de vitesse limitée à 30 km/h et la présence de feux de circulation (Figure 6). Le fourgon contenant les appareils de mesure a pu être placé au plus proche de la route pour effectuer les prélèvements (Figure 11). Le site est utilisé par Air Pays de la Loire (association pour la surveillance de la qualité de l'air des Pays de la Loire) pour le suivi de la pollution sur un site de trafic.



Figure 6. Carte du boulevard urbain utilisé pour le site de trafic urbain à Nantes.

Un deuxième site est également utilisé à Nantes, c'est un site dit « background », qui permet de mesurer la concentration des polluants pour le fond urbain (Figure 7). Il est également employé par Air Pays de la Loire pour le suivi de la pollution urbaine de fond.



Figure 7. Carte du site de mesure de fond urbain à Nantes.

2.2. Site ouvert en bord de route à Lyon

Ce deuxième site ouvert en bord de route se situe à Lyon et a été choisi car il a des caractéristiques similaires à celles du site de trafic de Nantes. C'est un boulevard urbain bidirectionnel 2 x 1 voies limité à 50 km/h, avec des feux de circulation qui sont présents en amont du point de prélèvement (Figure 8).

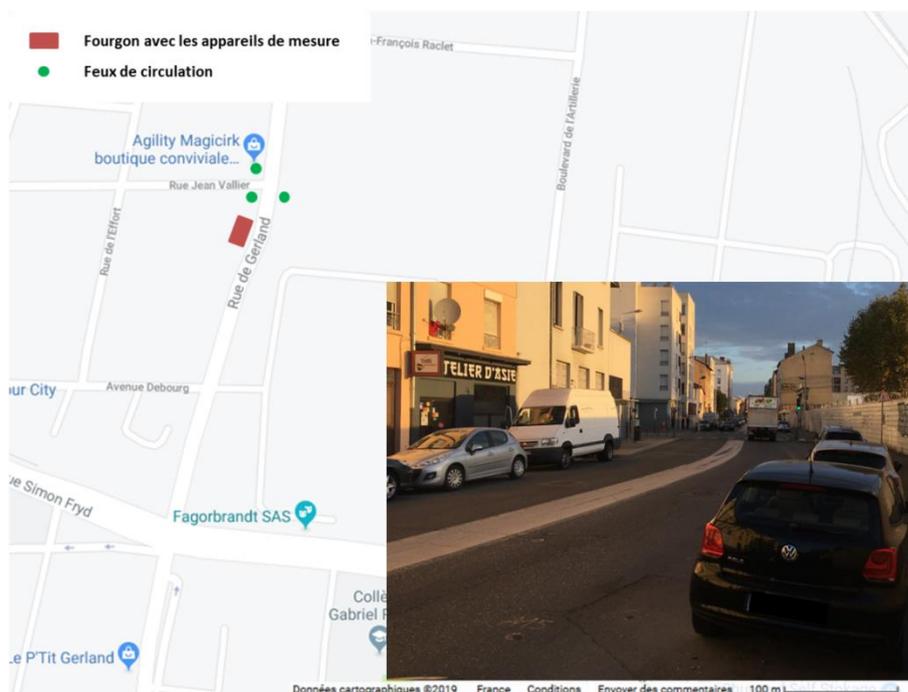


Figure 8. Site en bord de route de la campagne de mesure à Lyon.

2.3. Site confiné dans le tunnel de la Défense à Nanterre

La campagne de mesure a été effectuée à Nanterre, dans le tunnel de la Défense de l'autoroute A14 qui est composé de 3 voies unidirectionnelles limitées à 70 km/h. Ce site a été choisi car il correspond aux caractéristiques d'un site confiné qui se situe proche d'une zone urbaine. La présence d'un renforcement sur une issue de secours a permis de placer les appareils de mesure au plus près de la circulation pour le prélèvement (Figure 12).

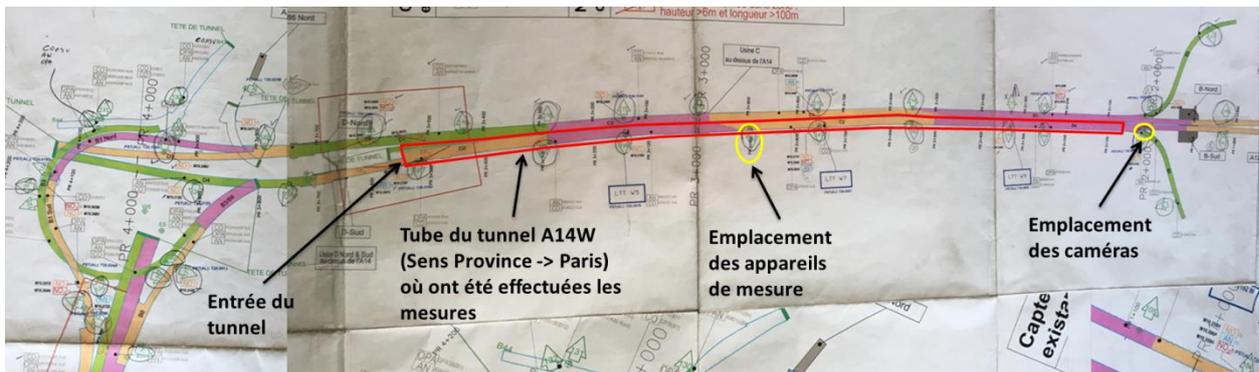


Figure 9. Carte du site de mesure dans le tunnel de la Défense.

3. Protocole expérimental

3.1. Site ouvert

Pour les campagnes de mesure à Nantes et à Lyon, un fourgon spécialement aménagé pour le prélèvement de l'air ambiant en bord de route a été utilisé avec les appareils de mesure installés à l'intérieur (Figure 10). Le fourgon a été aménagé avec des prises électriques pour alimenter les différents appareils de mesure, les ordinateurs et l'éclairage à l'intérieur du fourgon. Ces prises ont été connectées à un disjoncteur lui-même relié à une prise permettant de se brancher sur un réseau électrique lors des mesures in-situ. Différentes entrées d'échantillonnage ont été créées pour le prélèvement de l'air ambiant. Deux entrées se trouvent sur le toit du fourgon à une hauteur de 3,50 mètres et trois autres sur les côtés du fourgon à une hauteur de 2 mètres. Des passes-cloisons ont été ajoutés à ces entrées afin de faire passer les différents tuyaux de prélèvement des appareils de mesure. Pour l'une des deux entrées d'échantillonnage sur le toit, une tête de prélèvement a été installée pour couper les particules supérieures à 10 μm et pour protéger l'entrée de la poussière et de la pluie. Enfin, une table et des plans de travail ont été installés dans le fourgon afin de poser les différents appareils de mesure en ligne et les cartouches de prélèvement.

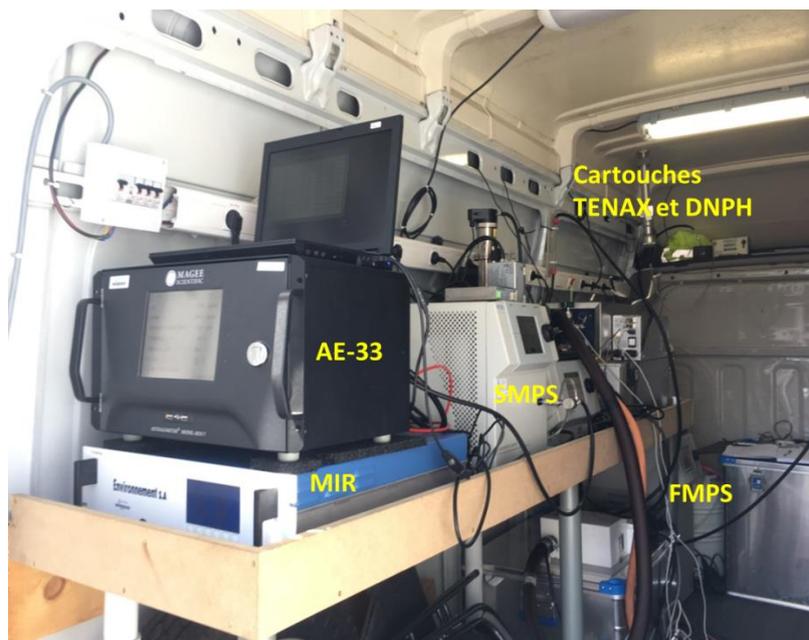


Figure 10. Intérieur du fourgon aménagé avec les différents appareils de mesure.

À Nantes, le fourgon a été placé en bordure de route sur le site de trafic. Il a été alimenté électriquement via le réseau électrique des deux stations de qualité de l'air (Air pays de la Loire) sur les sites de trafic et de fond urbain (Figure 11). Les mesures ont été effectuées entre le 19 et le 30 avril 2017. Du 19 au 23 avril, elles ont été réalisées sur le site de fond urbain et, du 24 au 31 avril, sur le site de trafic pour des périodes comprises entre 6h et 22h.



Figure 11. Emplacement du fourgon aménagé pour les prélèvements sur le site de fond urbain (à gauche) et sur le site de trafic urbain (à droite) à Nantes.

À Lyon, le fourgon a également été installé en bordure de route et a été alimenté par du courant électrique fourni par un bureau à proximité du site (Figure 8). Les mesures ont été réalisées du 2 au 4 octobre 2018, et se sont concentrées sur les heures de pointes de la matinée entre 8h et 11h où le trafic est le plus important.

3.2. Site confiné

Les mesures dans le tunnel de La défense ont été effectuées entre le 21 et le 27 juin 2018, de 7h à 21h pour les 7 jours, et également pendant 3 nuits de 21h à 7h, dont une nuit de fermeture du tunnel qui a eu lieu la nuit du jeudi 21 au vendredi 22 juin entre 22h et 4h. Ces mesures, lors de la fermeture du tunnel, ont permis d'obtenir des concentrations de fond du tunnel pour les particules, le carbone suie et les NO_x. Les appareils de mesure ont été placés dans un renforcement de l'issue de secours 140, située à 650 mètres de l'entrée du tunnel et à 900 mètres de la sortie (Figure 9). Ils ont été raccordés au réseau électrique. Le prélèvement s'est fait au bord de la route à une hauteur d'environ 1 mètre pour tous les appareils en ligne et les cartouches (Figure 12).

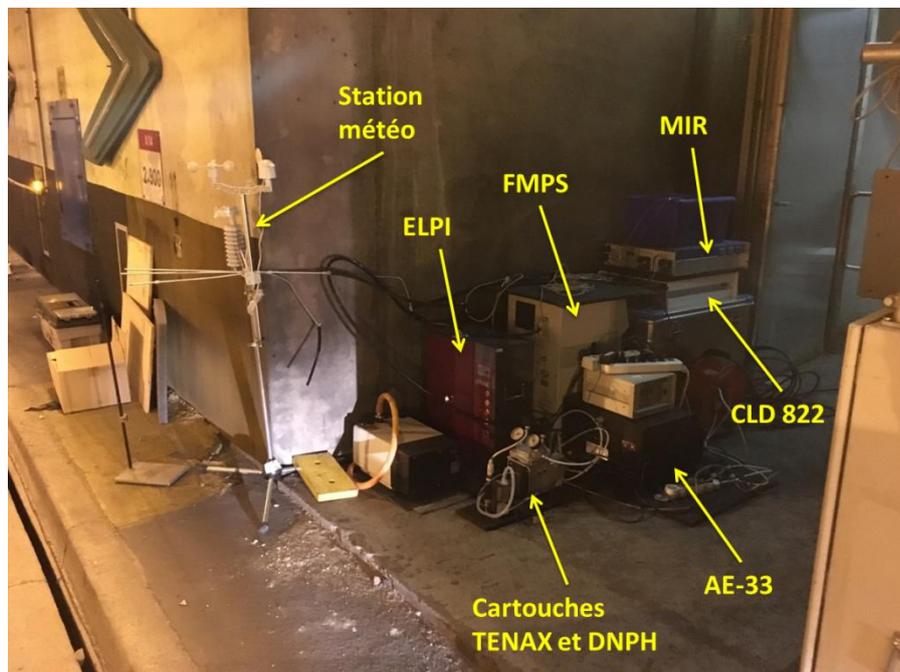


Figure 12. Renforcement de l'issue de secours 140 avec les appareils de mesure.

4. Mesures des concentrations de polluants

Les mesures des concentrations de polluants lors des différentes campagnes de mesure ont été faites avec des analyseurs en ligne et des cartouches de prélèvement qui sont définis dans cette partie.

4.1. Analyseurs en ligne

La concentration de particules a été mesurée avec trois appareils en ligne, un Fast Mobility Particle Sizer (FMPS™ ; TSI), un Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS™ ; TSI) et un Electrical

Low Pressure Impactor (ELPI™ ; DEKATI). Le FMPS donne une concentration en nombre total de particules ainsi qu'une distribution en taille allant de 5,6 à 560 nm pour un nombre de particules allant de 0 à 10^7 particules/cm³. L'appareil utilise la technique de la mobilité électrique avec plusieurs électromètres à faible bruit pour la détection des particules. Ce qui lui permet d'avoir une résolution à la seconde, mais également de visualiser en temps réel la concentration et la distribution en taille. Son débit de prélèvement est de 10 L/min. Le SMPS est équipé d'une colonne DMA (Differential Mobility analyzer), dont le fonctionnement est le même que le FMPS, et d'un compteur de particules qui permettent de donner une concentration en nombre total, pour des valeurs de 2 à 10^8 particules/cm³, et une distribution en taille allant de 13,6 à 736,5 nm. Son débit de prélèvement est de 0,3 L/min. L'ELPI donne également la concentration totale en nombre de particules ainsi que la distribution en taille. Il est équipé d'un « filter stage », qui est un impacteur supplémentaire permettant de mesurer les particules de 7 nm à 4 µm. Sur chaque impacteur est disposée une feuille d'aluminium graissée permettant notamment de limiter les rebonds des particules. Le courant maximal mesurable par les électromètres est fixé à 100 pA dans la plupart des cas, permettant un temps de réponse à la seconde et un bruit limité. Son débit de prélèvement est de 10 L/min.

La mesure de la concentration en ligne de carbone suie s'est faite avec un Aethalometer® (AE-33-7 ; Magee Scientific). L'appareil analyse le carbone élémentaire sur sept longueurs d'onde de l'UV à l'IR (370, 470, 525, 590, 660, 880 and 940 nm). Son principe de mesure repose sur l'atténuation de l'intensité d'un faisceau lumineux à travers des particules déposées sur un filtre. La filtration est effectuée sur une bande filtrante. Sa limite de détection est de 5 ng/m³, avec une plage de concentration allant de 10 à 10^5 ng/m³. Son débit de prélèvement est de 5 L/min.

La concentration de NO_x a été mesurée avec un CLD 822 (ECO PHYSICS) qui utilise la chimiluminescence. Sa gamme de mesure est de 0,005 à 5000 ppm et son débit de prélèvement est de 2 L/min. La concentration de CO₂ a été mesurée avec un analyseur multi-gaz par corrélation infrarouge (MIR-2M ; Environnement SA) en utilisant le principe d'absorption infrarouge. Il fait une acquisition toutes les secondes et a un temps de réponse inférieur à 2 secondes. Sa gamme de mesure est de 100 à 250 000 ppm et son débit de prélèvement est de 3 L/min.

4.2. Cartouches de prélèvement

Les concentrations des composés organiques volatiles et semi-volatiles (COV et COSV) ont été analysées après prélèvement sur deux types de cartouches. Les composés carbonylés ont été prélevés sur des cartouches DNPH à un débit de 1 L/min. Les BTEX et les alcanes ont été prélevés sur des cartouches TENAX à un débit de 0,1 L/min. Suivant les campagnes de mesure, les cartouches ont été analysées par TERA-Environnement, un laboratoire privé disposant de méthodes analytiques standardisées (pour plus de détails sur les méthodes d'analyse, voir ISO-16000-6, ISO 16000-3, NIOSH 2549, NIOSH 5506 et NF X43-025) ou par l'équipe ATARI (Approches thermodynamiques, analytiques et réactionnelles intégrées) du laboratoire IRCELYON (Unité Mixte de Recherche 5256 CNRS-Université de Lyon). Le Tableau 12 donne les différentes techniques

analytiques, en fonction des cartouches à analyser, appliquées par les laboratoires, ainsi que le débit de prélèvement, les limites de quantification et les incertitudes analytiques des différentes cartouches.

La liste complète des composés analysés est présentée ci-dessous.

- BTEX : Benzène, Toluène, Ethylbenzène, m+p-Xylène, o-Xylène
- Alcanes : Hexane, Heptane, Octane, Nonane, Décane, Undécane, Dodécane, Tridécane, Tétradécane, Pentadécane, Hexadécane, Heptadécane, Octadécane, Nonadécane, Eicosaane, Heneicosane, Docosane, Tricosane, Tétracosane, Pentacosane, Hexacosane, Heptacosane, Octacosane, Nonacosane, Triacontane, Cyclohexane, Méthyl, Cyclopropane, Ethyl, Cyclohexane, Ethyl
- Composés carbonylés : Formaldéhyde, Acétaldéhyde, Acétone, Acroléine, Propionaldéhyde, Crotonaldéhyde, Méthacroléine, Butanal, Benzaldéhyde, Pantanal, Hexanal, Butyraldéhyde, 2-Butanol

Tableau 12. Méthodes analytiques des cartouches de prélèvement.

Famille de composés	Type de cartouche	Débit de prélèvement (L/min)	Technique analytique	Normes	Limite de quantification (ng/support)	Incertitude analytique (%)
BTEX	TENAX	0.1	ATD-GC/MS*	ISO 16000-6	1	20
Alcanes	TENAX	0.1	ATD-GC/MS*	ISO 16000-6	1	20
Carbonylés	DNPH	1	HPLC/UV#	ISO 16000-3	30	20

* ATD-GC-MS: Automated Thermal Desorption – Gas Chromatograph – Mass Spectrometer

HPCL/UV: High Performance Liquid Chromatography/Ultra Violet Detector

5. Observation du parc en circulation, du trafic et des conditions de circulation

L'utilisation des différentes méthodes d'estimation in-situ, définies dans l'état de l'art (Partie 3.3.4), nécessite de caractériser précisément la composition du parc roulant circulant sur les différents sites de mesure, ainsi que les conditions de conduite. Ces caractérisations ont été effectuées par la société AlyceSofreco sur les sites de mesure de Nantes et du tunnel de la Défense en employant différents types de matériel.

5.1. Comptage des véhicules et mesure des vitesses moyennes

Deux méthodes peuvent être appliquées pour le comptage du nombre de véhicules et la mesure des vitesses moyennes du trafic. La première méthode est l'utilisation de tubes pneumatiques qui réalisent un comptage avec une fiabilité de 95 %, ce taux minimum est atteint principalement lors

des périodes de congestion du trafic, et donne une vitesse moyenne du trafic sur un pas de temps de 5 minutes. La deuxième méthode est l'utilisation d'une caméra de comptage qui donne également la vitesse moyenne du trafic sur un pas de temps de 5 minutes.

5.2. Enregistrements vidéo des plaques d'immatriculation

Deux types de caméra ont été employés pour l'enregistrement vidéo des plaques d'immatriculation et l'horodatage du passage des véhicules. Le premier type est une caméra infrarouge combinée à un radar permettant d'obtenir l'enregistrement vidéo des plaques minéralogiques de chaque véhicule passant sur une voie avec un taux de lecture de 75 % minimum. Le deuxième est une caméra LAPI (Lecture Automatique de Plaques d'Immatriculation) permettant d'obtenir l'enregistrement vidéo des plaques minéralogiques de chaque véhicule passant sur une voie avec un taux de lecture de 70 % minimum. Pour les deux caméras, le taux minimum de lecture est atteint principalement lors des périodes de congestion du trafic.

5.3. Observation sur les sites ouverts

Pour le site de Nantes, la société AlyceSofreco a utilisé des tubes pneumatiques pour le comptage des véhicules et l'enregistrement de la vitesse du trafic (Partie 5.1). L'enregistrement des plaques d'immatriculations et l'horodatage de chaque passage de véhicule ont été fait avec deux caméras infrarouges (Partie 5.1). Une caméra et un tube pneumatique ont été utilisés pour chaque sens de circulation et ont été placés proches du fourgon (Figure 13).

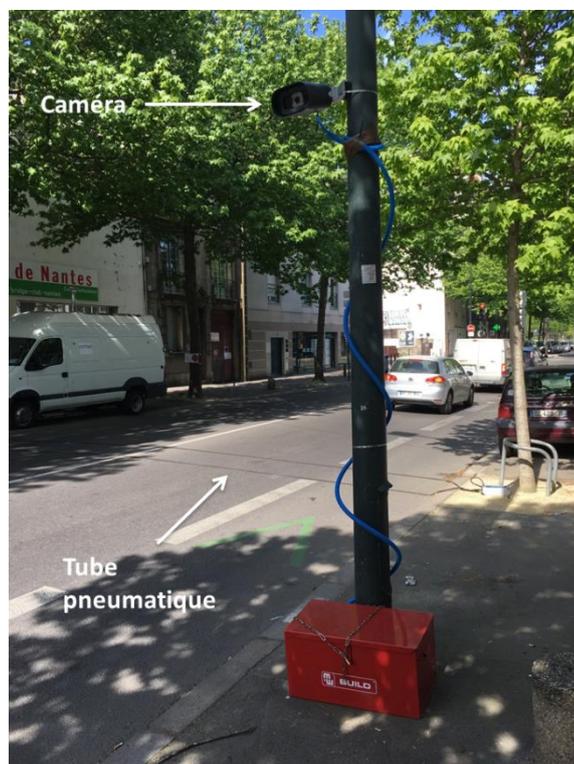


Figure 13. Caméra et tube pneumatique utilisés par la société AlyceSofreco.

Pour la campagne de mesure à Lyon, la composition du trafic a seulement été caractérisée en utilisant une caméra GoPro qui a permis l'enregistrement des plaques d'immatriculation et l'horodatage des véhicules circulant pendant les mesures. La caméra GoPro ne permettant pas la mesure de la vitesse moyenne du trafic, une vitesse moyenne horaire a été attribuée à partir des conditions de circulation observées sur le site de Lyon en comparaison à celles observées à Nantes ; les sites étant similaires avec la présence de feux de circulation en amont du point de prélèvement. Cette vitesse moyenne est de 25 km/h.

5.4. Observation sur le site confiné

Pour la campagne dans le tunnel de La Défense, la société AlyceSofreco a installé quatre caméras (1 caméra de comptage et 3 caméras LAPI) pour compter le trafic, mesurer la vitesse moyenne des véhicules sur un pas de temps de 5 minutes, enregistrer les plaques minéralogiques de chaque véhicule et horodater leur passage (Partie 5.1 et 5.2). Les quatre caméras ont été placées en sortie du tunnel, à 900 mètres du point de prélèvement (Figure 9 et Figure 14).



Figure 14 : Caméras utilisées par la société AlyceSofreco.

5.5. Station météorologique

Pour connaître les conditions météorologiques, telles que la température, la vitesse et la direction du vent et l'humidité relative, lors de la première campagne de mesure, les données de Météo France ont été utilisées. Pour les deux autres campagnes, une station météorologique PCE-FWS 20 (PCE Instruments) a été employée (Figure 12).

6. Méthode de calcul des facteurs d'émission

6.1. Site Ouvert

Pour l'estimation des facteurs d'émission sur les sites ouverts en bord de route à Nantes et à Lyon, la méthode des NO_x, définie dans la partie 3.3.4.1 du chapitre 1, a été appliquée avec la formule suivante (Équation (2)) :

$$FE_P = \Delta P \times \frac{FE_{NOx}}{\Delta NOx} \quad \text{Équation (2)}$$

Les concentrations de CO₂ ont été mesurées lors de la campagne de mesure à Nantes mais les concentrations mesurées varient très peu et ne montrent aucune corrélation avec les émissions du trafic. Ces concentrations mesurées sont influencées par les arbres et la végétation présents sur les deux sites de mesure à Nantes. La méthode d'estimation des facteurs d'émission à partir du CO₂ n'a pas fonctionné à Nantes pour un site ouvert, les concentrations de CO₂ n'ont pas été mesurées sur le site de Lyon.

6.1.1. Nantes

Dans le cas de Nantes, pour l'Équation (2), le ΔNO_x correspond à la différence de concentrations de NO_x mesurées par les stations d'Air Pays de la Loire sur le site de fond urbain et sur le site de trafic. De même pour le ΔP qui correspond à la différence de concentrations des polluants mesurées avec nos différents appareils sur le site « background » et le site de trafic. Le FE_{NOx} correspond au facteur d'émission moyen de NO_x du parc de véhicules caractérisé pour chaque période de mesure. Ce facteur a été calculé à partir du logiciel COPERT (COmputer Programme to calculate Emissions from Road Transport) qui permet de calculer les émissions de polluants pour un parc de véhicules défini (Annexe A).

Pour calculer les facteurs d'émission de NO_x d'un parc à partir de COPERT, il faut renseigner dans le logiciel le nombre de véhicules pour chaque catégorie qui correspond à une famille de véhicules (particulier, utilitaire léger ou poids lourd et bus) définie par une norme Euro (de pré-Euro à Euro 6), un carburant (Diesel ou essence) et une cylindrée du moteur ou un poids du véhicule. Dans COPERT, une distance moyenne parcourue par an est attribuée à chacune des catégories. De plus, il faut renseigner la vitesse moyenne du parc ainsi que les conditions de conduite, qui dans notre cas correspondent à la condition de conduite urbaine. Pour les conditions de conduite urbaines en France, COPERT estime que 4 % des kilomètres parcourus par an sont des émissions de démarrage à froid et 96 % des émissions à chaud. Le Tableau 12 de l'Annexe A montre un exemple des données d'entrées utilisées par le logiciel. À partir de celles-ci, COPERT calcule les émissions massiques globales de NO_x au cours de l'année pour le parc renseigné. Cette masse totale de NO_x est ensuite divisée par le nombre de kilomètres parcourus par le parc au cours de l'année, ce qui donne un FE de NO_x pour la flotte totale en masse/km. Il est appliqué pour calculer les facteurs

d'émission globaux du parc pour chaque polluant. Ensuite, il peut être divisé par le nombre de véhicules du parc, ce qui donne un facteur moyen d'émission de NO_x pour un véhicule en masse/véh/km. Cela permet de calculer le FE moyen d'un véhicule pour chaque polluant.

6.1.2. Lyon

Pour Lyon, le ΔNO_x correspond à la différence de concentrations de NO_x mesurées entre la station de fond urbain de Lyon/Gerland et la station de trafic de Lyon/Jean Jaurès d'Atmo Auvergne-Rhône-Alpes (observatoire de surveillance de la qualité de l'air de la région Auvergne-Rhône-Alpes). Le ΔP correspond à la différence des concentrations de polluants mesurées par nos analyseurs sur le site de trafic et les concentrations de fond mesurées, également par nos analyseurs, sur le site de l'IFSTTAR. Les facteurs d'émission de NO_x (FE_{NO_x}) ont été calculés à l'aide de COPERT avec les compositions du parc caractérisées pour chaque heure de mesure.

6.2. Site confiné

Pour le tunnel, la méthode des NO_x a également été utilisée pour le calcul des facteurs d'émission avec l'Équation (2). Dans ce cas, Le ΔNO_x et le ΔP correspondent à la différence entre les concentrations des NO_x et des différents polluants mesurées lors de la nuit de fermeture du tunnel qui représentent les émissions de fond et les concentrations mesurées pour tous les autres jours et nuits de la semaine. Les facteurs d'émission de NO_x (FE_{NO_x}) ont été calculés à l'aide de COPERT avec les compositions du parc caractérisées pour chaque heure de mesure.

7. Méthode de caractérisation des parcs roulants

La caractérisation des parcs roulants sur les différents sites de mesure se fait à partir des plaques d'immatriculation enregistrées par les caméras. Ces plaques ont été envoyées à la société AAA-Data qui fournit les caractéristiques techniques de chaque véhicule telle que la marque, le modèle, le type de véhicule, le carburant, la motorisation, l'âge, et l'année de mise en circulation. Cette année de mise en circulation des véhicules permet d'obtenir la norme Euro du véhicule, qui n'est pas fournie dans les caractéristiques techniques envoyées par la société et qui est une donnée importante pour la caractérisation d'un parc roulant. Chaque famille de véhicules (particulier, utilitaire léger, poids lourds et bus) est soumise à des normes différentes définies par des réglementations et des années de mise en service différentes (Partie 2.1, Chapitre 1). À partir de la date de mise en circulation d'un véhicule et de la date de la norme correspondante, une norme Euro a été attribuée pour chaque véhicule.

Toutes ces données, qui sont le type de véhicule, sa norme Euro, sa motorisation, son carburant, ont permis d'établir la composition détaillée des parcs roulants sur les trois sites de mesure.

8. Analyse de variance (ANOVA)

Pour étudier l'impact de la composition du parc sur les facteurs d'émission in-situ estimés pour les différents polluants, une analyse de variance (ANOVA) a été effectuée à l'aide du logiciel SPAD (logiciel d'analyse et d'exploration de données).

L'analyse de variance (ANOVA) est une technique statistique permettant d'évaluer les différences entre une ou plusieurs variables dépendantes, qui dans ce cas sont les facteurs d'émission, et une variable nominale à plusieurs catégories, qui sont les différentes compositions du parc. L'ANOVA se base sur la variance (somme des carrés des écarts par rapport à la moyenne) et teste si les différences de variation dans chaque groupe s'écartent de manière statistiquement significative de la valeur 0. Plus précisément, l'hypothèse nulle (H_0) pour l'analyse représente le fait qu'il n'y a pas de différence significative entre les moyennes des groupes car leur variance est proche de 0. Tandis que l'hypothèse alternative (H_1) considère qu'il y a au moins une différence significative entre les moyennes des groupes.

Dans cette analyse, la variabilité est divisée en deux parties : la variabilité dans un groupe autour de la moyenne de chaque groupe, appelée variabilité intra-groupe, et la variabilité entre les moyennes des groupes, appelée variabilité intergroupe. Le rapport F produit par l'ANOVA est le rapport entre la variabilité intergroupe et la variabilité intra-groupe et est associé à une valeur de probabilité (p-value). Si la p-value est inférieure ou égale à 0,05, alors l'hypothèse nulle H_0 est rejetée et l'hypothèse alternative H_1 est retenue (Fanelli et al., 2018) et cela implique que les moyennes de tous les groupes ne sont pas égales et qu'il est possible de déterminer quels groupes sont différents des autres (Wildt et Ahtola, 1978). Pour augmenter la puissance de l'analyse ANOVA, il est possible de considérer qu'un résultat avec une p-value comprise entre 0,05 et 0,1 est significatif mais avec une grande incertitude et cette analyse doit être lue avec une attention particulière.

9. Récapitulatif des méthodes pour chaque site de mesure

Le Tableau 13 donne un récapitulatif des caractéristiques de chaque site de mesure dont la durée des mesures, la caractérisation du parc présent sur chaque site et des conditions de conduite, les différentes méthodes utilisées pour la mesure des concentrations de polluants ainsi que le calcul des facteurs d'émissions.

Tableau 13. Récapitulatif des méthodes pour chaque site de mesure.

Sites de mesure	Nantes	Tunnel de la Défense, Nanterre	Lyon
Type de site	Site ouvert en bord de route	Site confiné dans un tunnel	Site ouvert en bord de route
Caractéristiques des sites	Boulevard urbain limité à 30 km/h, 2x1 voies	Autoroute A14, 3 voies unidirectionnelles limitées à 70 km/h	Boulevard urbain limité à 50 km/h, 2x1 voies
Durée des mesures	11 jours (4 jours « background » et 7 jours site trafic)	7 jours (1 nuit de « background »)	3 jours
Périodes des mesures	2 jours de week-end et 5 jours de semaine	2 jours de week-end, 5 jours de semaine et 3 nuits	3 jours de semaine
	Entre 6h et 22h	Entre 7h et 21h pour les journées et entre 21h et 7h pour les nuits	Entre 8h et 10h
	23 au 31 avril 2017	21 au 27 juin 2018	2 au 4 octobre 2018
Appareils utilisés	FMPS, SMPS, AE-33, MIR, TENAX, DNPH, Filtres	FMPS, ELPI, AE-33, MIR, CLD 822, TENAX, DNPH	FMPS, AE-33, CLD 822, MIR, TENAX
Comptage des véhicules	Tube pneumatique	Caméra de comptage	Caméra GoPro
Calcul des vitesses moyennes	Tube pneumatique	Caméra de comptage	Estimation
Enregistrement des plaques d'immatriculation	Caméra infrarouge	Caméra LAPI	Caméra GoPro
Calcul des FE de NO _x	COPERT 4	COPERT 5	COPERT 5
Calcul des FE des polluants	Méthode des NO _x	Méthode des NO _x	Méthode des NO _x

Chapitre 3 : Caractérisation des parcs roulants et des conditions de conduite sur les différents sites de mesure

1. Introduction

Le parc roulant réel présent ainsi que les conditions de conduite sur les trois sites de mesure ont été caractérisés précisément à l'aide des méthodes données en partie 5 du Chapitre 2. Celles-ci permettent de connaître le nombre total de véhicules (c'est-à-dire le volume de trafic) et les vitesses moyennes du trafic pour chaque période de mesure. Elles permettent aussi de définir des compositions de parc très précises. On distingue ainsi les familles de véhicules : véhicules particuliers (VP), véhicules utilitaires légers (VUL) et véhicules lourds (camions, autocars et autobus (PL/Bus)). Pour chacune de ces familles, une composition détaillée peut être définie en fonction de la motorisation des véhicules (Diesel, essence, électrique, gaz naturel ou autres) et de la réglementation Euro que les véhicules doivent satisfaire quant à leur niveau d'émission de polluants (allant de pré-Euro à Euro 6). La caractérisation de la composition in-situ du parc automobile permettra dans un premier temps d'estimer les facteurs d'émission pour les polluants ciblés. Dans un second temps elle permettra d'analyser la sensibilité des émissions et facteurs d'émission à la composition du parc automobile.

2. Volumes et vitesses moyennes du trafic routier sur les sites de mesure

À Nantes, 140 000 passages de véhicules ont été enregistrés sur le boulevard lors de la semaine de mesure. Le nombre de véhicules (entre 6h et 22h) a varié entre 21 150 et 23 400 du lundi au vendredi. Pour le samedi et le dimanche, respectivement, 18 760 et 9 860 véhicules ont été comptés. La Figure 15 montre les profils du nombre de véhicules enregistrés par heure et des vitesses moyennes horaires du trafic sur la semaine de mesure. Le flux horaire était compris entre 600 et 1 800 véh/h avec une moyenne de 1400 véh/h pour les cinq jours de la semaine et entre 200 et 1 600 véh/h le week-end avec une moyenne de 900 véh/h. La vitesse du trafic a été mesurée par tranche de 5 minutes puis intégrée par heure. La vitesse moyenne horaire se situait entre 16 et 34 km/h pour les cinq jours de semaine et entre 21 et 38 km/h pour le week-end.

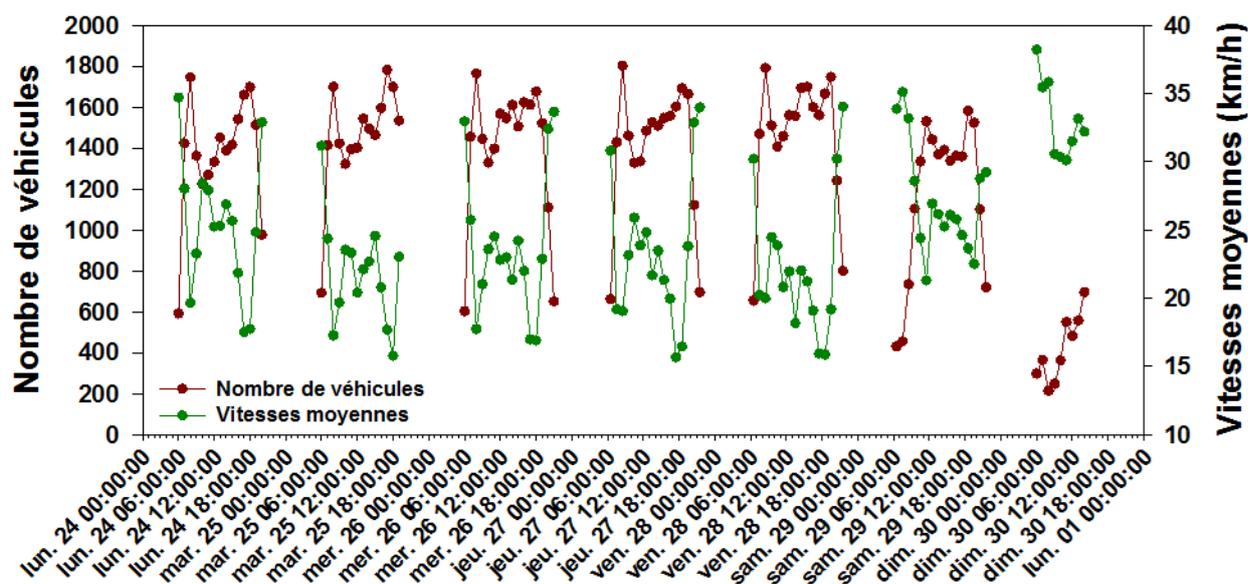


Figure 15. Nombre de véhicules par heure et vitesses moyennes horaires sur la semaine de mesure à Nantes.

Le nombre total de véhicules enregistrés lors de la deuxième campagne de mesure dans le tunnel de la Défense à Nanterre est de 312 000. Pour chaque journée au cours de la période de mesure (entre 7h et 20h) le nombre de véhicules est entre 32 900 et 44 150. Le total le plus bas correspond au dimanche tandis que le plus haut correspond au lundi. La Figure 16 indique les profils du nombre de véhicules enregistrés par heure et des vitesses moyennes horaires du trafic sur la semaine de mesure. Le trafic horaire dans la journée (entre 7h et 20h) est compris entre 1 150 et 4 670 véh/h avec une moyenne de 3 230 véh/h. La circulation pendant les nuits (entre 20h et 7h) est plus faible, on compte entre 80 et 3 900 véh/h avec une moyenne de 1 270 véh/h. Pour la nuit de fermeture du tunnel du 21 juin au 22 juin entre 22h et 4h, le nombre de véhicules enregistré par heure se situe entre 6 et 30. Les vitesses moyennes horaires du trafic pour tous les jours de mesure entre 7h et 20h sont comprises entre 13 et 56 km/h avec une moyenne de 38 km/h. Lors des heures de pointe observées le matin des jours de semaine entre 7h et 10h et le dimanche soir entre 16h et 20h, la vitesse moyenne du trafic est autour de 27 km/h. Tandis que pour les heures où la circulation est fluide, la vitesse moyenne est d'environ 45 km/h. Pour les deux nuits du 24 au 25 juin et du 26 au 27 juin, pour lesquelles la circulation est très fluide (faible trafic horaire), les moyennes horaires vont de 35 à 62 km/h avec une vitesse moyenne de 50 km/h (Figure 16). Les volumes de trafic horaires et les vitesses moyennes du trafic par heure sont inversement corrélés pour les deux semaines de mesure. À Lyon, le nombre total de véhicules enregistrés pendant les six heures (2h/jour) de mesure est de 1 430, avec en moyenne 240 véh/h.

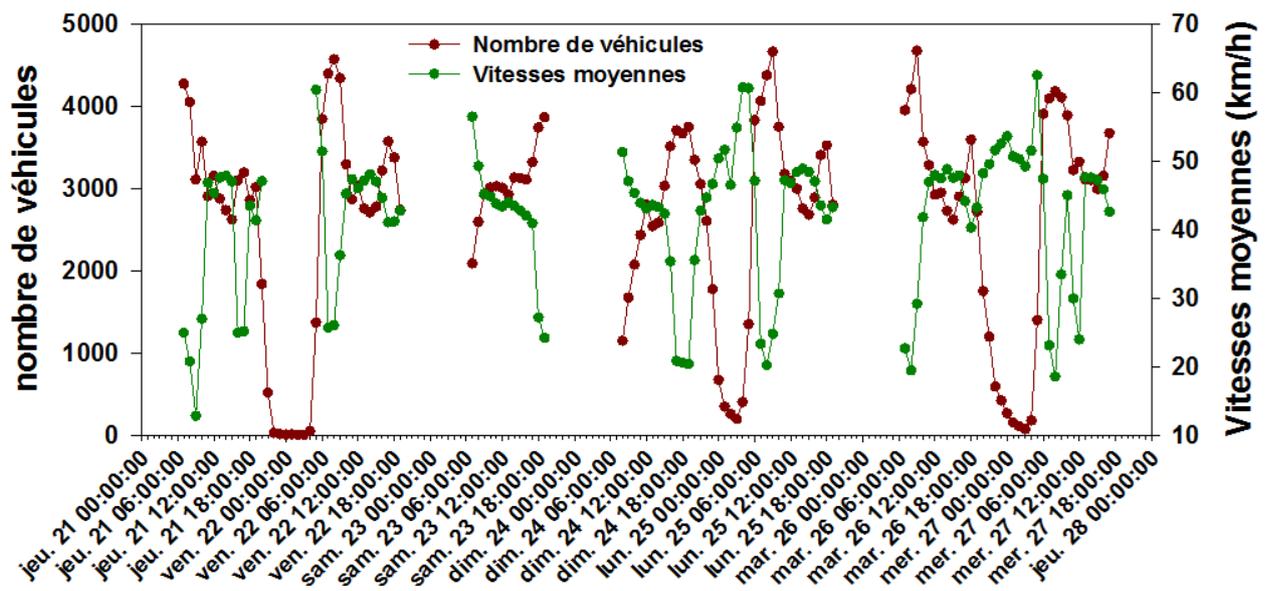


Figure 16. Nombre de véhicules par heure et vitesses moyennes horaires sur la semaine de mesure dans le tunnel.

3. Caractérisation des parcs roulants sur les différents sites de mesure

3.1. Compositions des parcs roulants par famille de véhicules

Dans un premier temps, les compositions des parcs roulants ont été traitées en fonction des familles de véhicules pour les trois sites de mesure (Figure 17). À Nantes, qui est un site en milieu urbain, 90 % des véhicules enregistrés sont des véhicules particuliers (VP), 9 % des véhicules utilitaires légers (VUL) et 1 % des véhicules lourds, comprenant les poids lourds, les bus et les autocars (PL/Bus) (Figure 17a). La composition du parc observée dans le tunnel de la Défense est quasiment identique à celle mesurée à Nantes avec un fort pourcentage de VP (87 %) (Figure 17b). Cependant, la caractérisation du parc en bord de route à Lyon en 2018 montre une différence comparée aux deux autres villes. La composition du parc roulant local à Lyon compte un plus faible pourcentage de VP (75 %) et un plus fort pourcentage de VUL (22 %) (Figure 17c). Cette observation peut s'expliquer par le lieu du site de mesure qui est proche d'une importante zone industrielle.

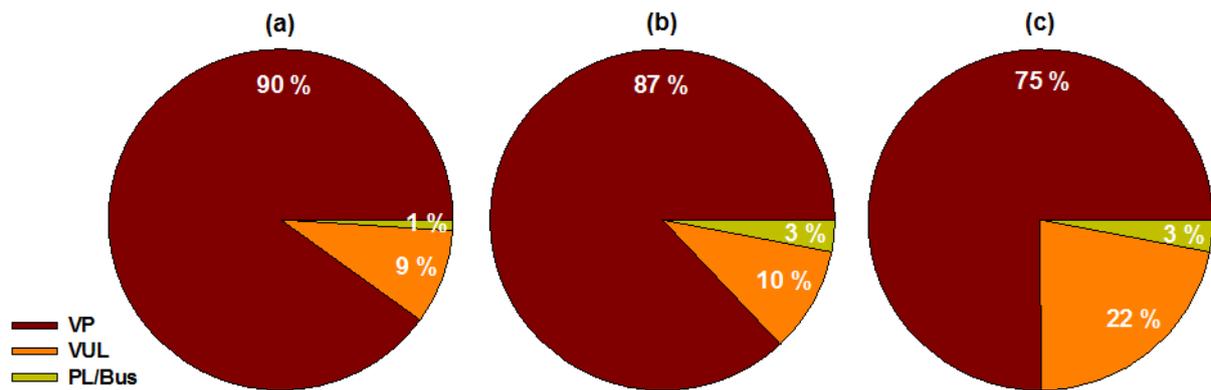


Figure 17. Compositions des parcs roulants par famille de véhicules (a) à Nantes, (b) dans le tunnel de La Défense et (c) à Lyon.

André et al. 2014 a développé une modélisation de la composition du parc national français en circulation à partir des données annuelles d'immatriculation (fournies par la société AAADData pour les années 2017 et 2018), de fonctions de survies et d'utilisation des véhicules, et d'hypothèses prospectives. La composition du parc roulant en zone urbaine pour les années 2017 et 2018 (Figure 18) compte 79 % de VP, 15,5 % de VUL, 4 % de PL et bus et 1,5 % de 2-roues motorisés. Les trois sites de mesure révèlent de légères différences avec plus de VP et moins de VUL à Nantes et dans le tunnel, et inversement à Lyon.

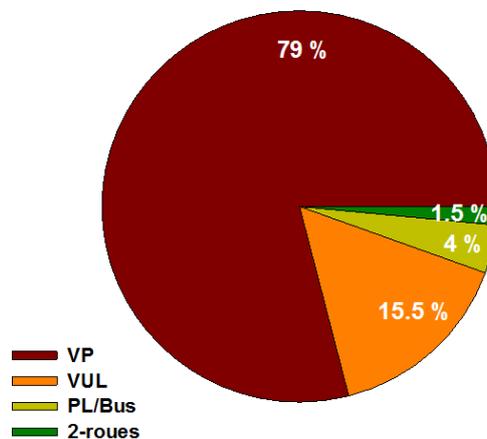


Figure 18. Composition du parc roulant français par famille de véhicules en zone urbaine en 2017 et en 2018 (André et al., 2014).

3.2. Compositions des parcs par motorisations et par normes Euro pour chaque famille de véhicules

Les compositions des parcs pour chaque famille de véhicules (VP, VUL, PL/Bus) sont ensuite analysées selon leurs normes Euro, ainsi que selon leur motorisation, Diesel, essence ou d'autres types telles que électrique, hybride (électrique et thermique), gaz naturel comprimé ou gaz de pétrole liquéfié.

3.2.1. Véhicules particuliers

La répartition des VP selon leurs motorisations est sensiblement la même sur les trois sites de mesure. On observe ainsi 64 à 68 % de véhicules Diesel, 30 à 32 % de véhicules essence et 2 à 5 % des véhicules avec des motorisations électriques ou hybrides (électrique/essence et électrique/Diesel).

Les analyses selon les normes Euro rapportent que les véhicules Euro 4 à Euro 6 (véhicules des années 2006 à aujourd'hui) représentent environ 75 % du parc en circulation à Nantes et à Lyon et 85 % dans le tunnel de La Défense (Figure 19). Ces véhicules plus récents sont beaucoup plus présents sur les trois sites de mesure par rapport aux véhicules plus anciens (de normes pré-Euro à Euro 3). De plus, le site du tunnel montre un pourcentage plus élevé de véhicules récents (67 % de VP Euro 5 et 6, des années 2011 à aujourd'hui) par rapport à Nantes (44 %) et à Lyon (53 %), avec notamment 39 % de VP Euro 6 présent dans le tunnel qui est bien plus important qu'à Nantes (14 %) et à Lyon (27 %). Cette observation induit un renouvellement plus fréquent des véhicules dans cette région et une composition de parc plus récente.

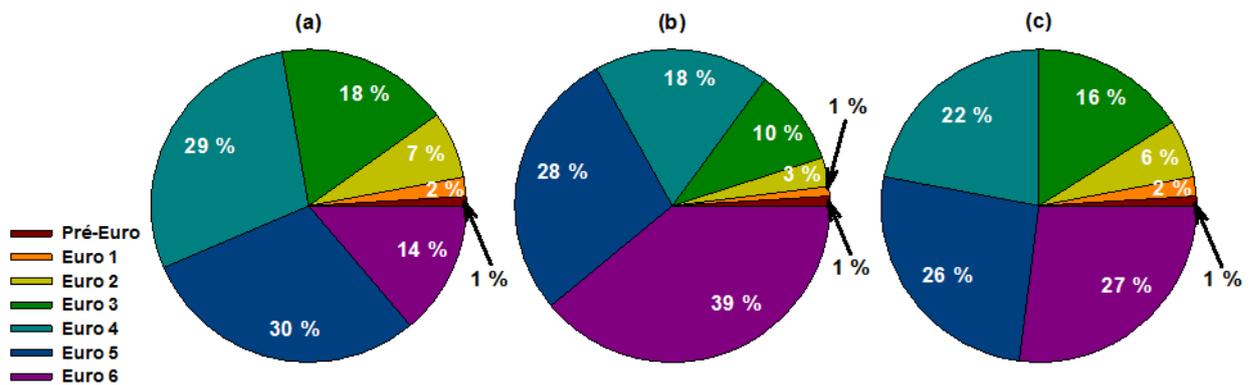


Figure 19. Compositions des parcs roulants de véhicules particuliers selon les normes Euro, (a) à Nantes, (b) dans le tunnel de La Défense et (c) à Lyon.

Pour Nantes et Lyon, on observe moins de véhicules récents (normes Euro 5 et Euro 6) que dans le parc national roulant estimé pour les années 2017 et 2018 (Figure 20). Dans le tunnel, les proportions de VP récents sont identiques à celles du parc roulant national 2018 (Figure 20b) avec cependant une plus forte proportion de VP Euro 6 (respectivement 28 % d'Euro 5 et 39 % et d'Euro 6 dans le tunnel, contre 36 % et 28 % pour le parc national 2018).

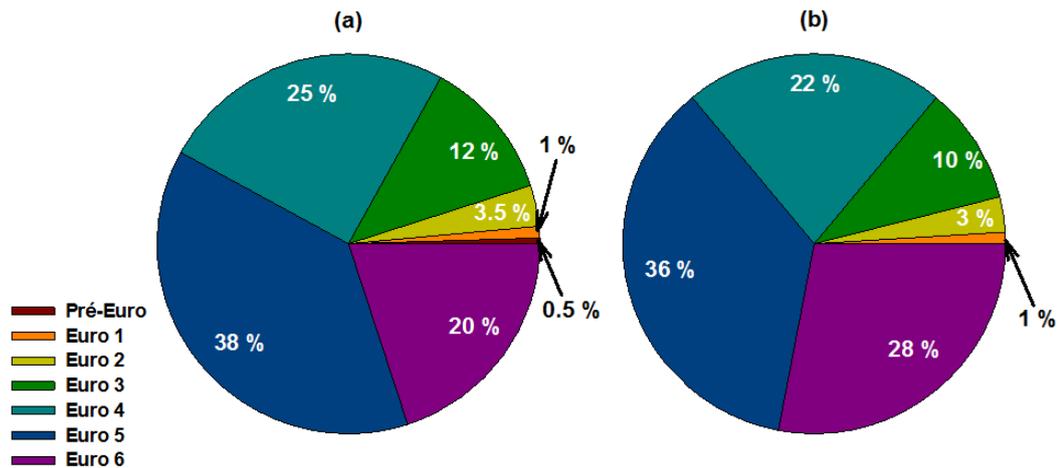


Figure 20. Compositions selon les normes Euro des parcs nationaux roulants de véhicules particuliers en zone urbaine (a) en 2017 et (b) en 2018 (André et al., 2014).

3.2.2. Véhicules utilitaires légers

Pour les motorisations sur les trois sites de mesure, en moyenne 96 % des VUL sont des véhicules Diesel. Les distributions selon les normes Euro indiquent que 90 % du parc en circulation à Lyon et dans le tunnel et 85 % à Nantes sont des véhicules de normes Euro 4 à Euro 6 (des années 2006 à aujourd’hui). Les sites du tunnel et de Lyon comprennent plus de véhicules récents (75 % de VUL Euro 5 et Euro 6, des années 2011 à aujourd’hui) par rapport à Nantes (64 %) (Figure 21).

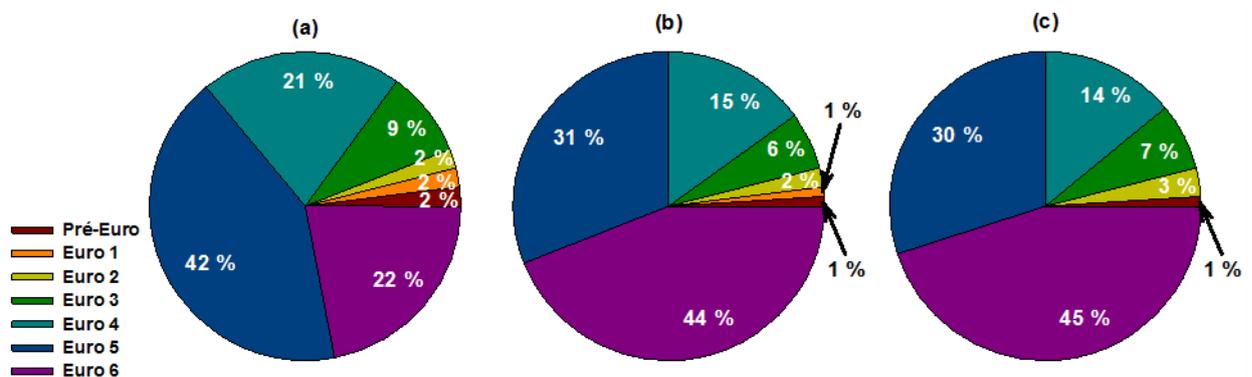


Figure 21. Compositions selon les normes Euro des parcs roulants de véhicules utilitaires légers (a) à Nantes, (b) dans le tunnel et (c) à Lyon.

La distribution des normes Euro obtenue à Nantes est comparable à celle du parc roulant français en zone urbaine de 2017 (Figure 22a). Pour Lyon et le tunnel, les distributions montrent plus de VUL Euro 6 que pour le parc national estimé en 2018 (45 % au lieu de 32 %) (Figure 22b).

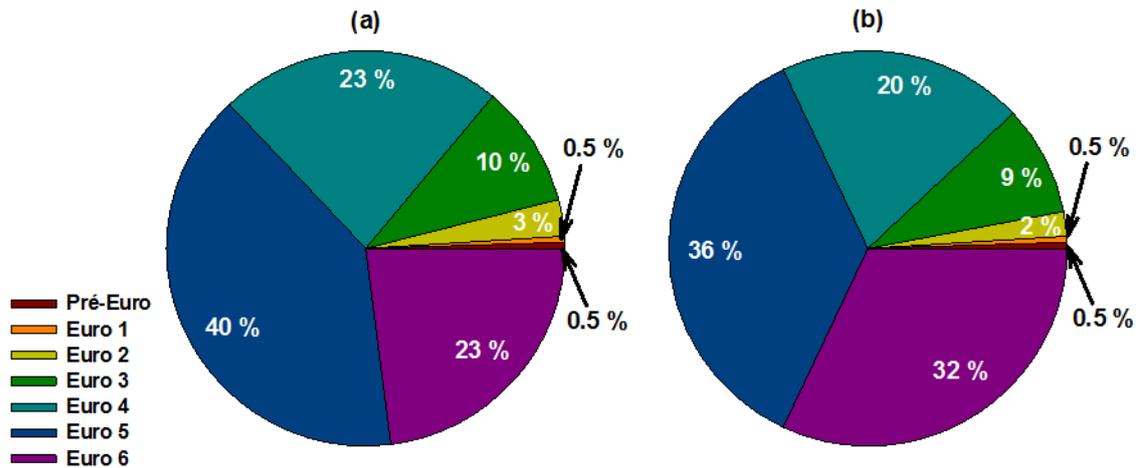


Figure 22. Compositions selon les normes Euro des parcs nationaux roulants de véhicules utilitaires légers en zone urbaine (a) en 2017 et (b) en 2018 (André et al., 2014).

3.2.3. Poids lourds et bus

Pour les motorisations, à Lyon, 100 % des poids lourds et des bus sont des véhicules Diesel. Dans le tunnel, 96 % des PL et des bus sont des véhicules Diesel, 3 % des véhicules au gaz naturel comprimé et 1 % des véhicules hybrides (électrique/Diesel). Contrairement à Nantes, où 100 % des poids lourds sont des véhicules Diesel, mais 50 % des bus ont des motorisations au gaz naturel comprimé ou à d'autres hydrocarbures gazeux comprimés et 50 % des motorisations Diesel.

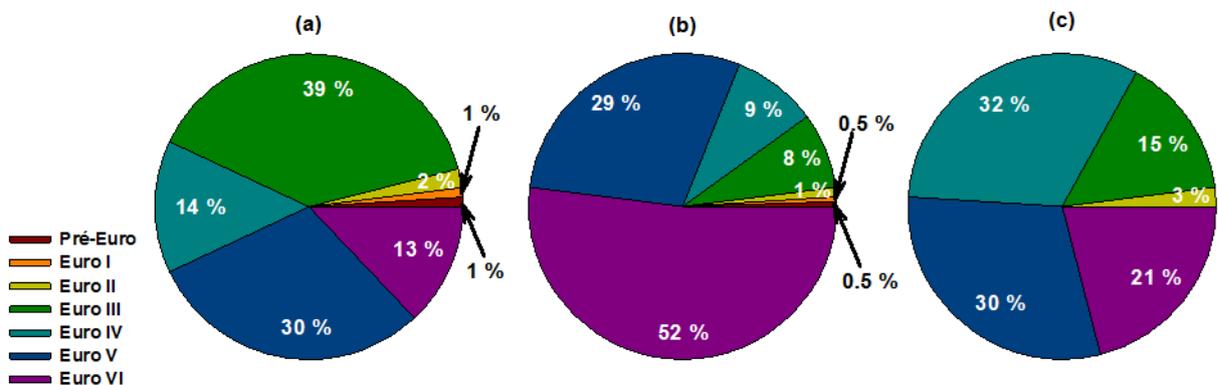


Figure 23. Compositions selon les normes Euro des parcs roulants de poids lourds et de bus (a) à Nantes, (b) dans le tunnel de La Défense et (c) à Lyon.

Les analyses pour les normes Euro montrent que les véhicules Euro IV à Euro VI (véhicules des années 2006 à aujourd'hui) représentent 57 % du parc en circulation à Nantes, 83 % à Lyon et 90 % dans le tunnel. À Nantes, 40 % des PL et bus sont de norme Euro III (véhicules des années 2001 à 2005) et 30 % de norme Euro V (véhicules des années 2009 à 2013), et seulement 13 % sont de norme Euro VI (véhicules des années 2014 à aujourd'hui). Dans le tunnel, les véhicules de norme Euro VI représentent 52 % du parc en circulation et les véhicules de norme Euro V sont présents à 29 %. Enfin, à Lyon, les répartitions sont plus homogènes avec 21 % de véhicules Euro VI, 30 % d'Euro V et 32 % d'Euro IV.

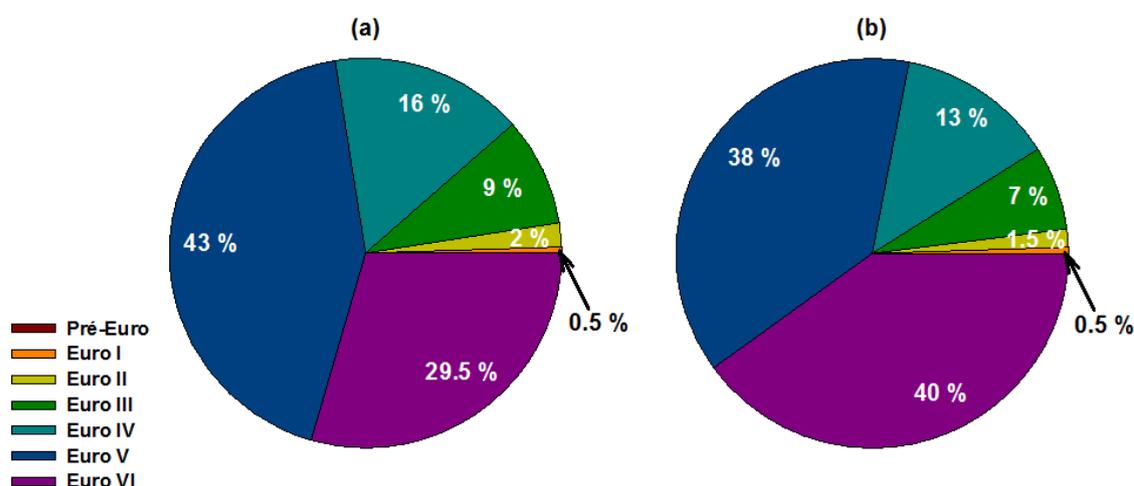


Figure 24. Compositions selon les normes Euro des parcs nationaux roulants de poids lourds et bus en zone urbaine (a) en 2017 et (b) en 2018 (André et al., 2014).

Par rapport aux parcs nationaux roulant (Figure 24), les répartitions des normes Euro pour les PL et les bus sur les trois sites de mesure sont complètement différentes, avec notamment plus de véhicules Euro III à Nantes par rapport au parc national en 2017 (respectivement 39 % et 9 %), plus de véhicules Euro VI dans le tunnel (52 % contre 40 %) et plus d'Euro IV à Lyon (32 % contre 13 %).

3.3. Variations temporelles des compositions des parcs sur les sites de Nantes et du tunnel de La Défense

Dans cette partie, on analyse les variations temporelles des compositions des parcs observés à Nantes et dans le tunnel de La Défense à Nanterre. Des compositions-types pourront ainsi être déterminées, dont l'impact sur les émissions de polluants du trafic pourra être étudié par des analyses de variance (ANOVA).

Dans un premier temps, les compositions du trafic en fonction des familles de véhicules (VP, VUL et PL/Bus) sont analysées selon les sites et les périodes de mesure. Les VP représentent une forte proportion du trafic à Nantes et dans le tunnel (environ 90 %), on analysera ensuite les compositions des parcs de VP selon les motorisations (Diesel et essence), puis en fonction des normes Euro pour chaque motorisation. Pour mettre en évidence des compositions-types qui peuvent avoir un impact sur les émissions de polluants, les VP sont classés dans différentes catégories comprenant des technologies de dépollution ou des motorisations différentes. Pour les VP Diesel, le filtre à particules (FAP) réduit considérablement les émissions de PN et de BC. Ils sont donc classés en fonction de cette technologie. Une catégorie comprend les VP Diesel de normes pré-Euro à Euro 3 qui ne sont pas équipés de FAP ; une seconde comprend les VP Diesel de norme Euro 4 qui sont partiellement équipés de FAP ; et une dernière concerne les VP Diesel de normes Euro 5 et 6 qui sont tous équipés de FAP. Pour les VP essence, la motorisation à injection directe, introduite à partir de la norme Euro 4, influence les émissions de certains polluants (notamment les PN et le BC). Une catégorie de VP essence est composée des normes pré-Euro à Euro 3 et une seconde des normes Euro 4 à Euro 6.

3.3.1. Nantes

3.3.1.1. Parc global

L'analyse de la composition du trafic selon les familles de véhicules (VP, VUL et PL/bus) à Nantes révèle la présence prépondérante des VP (entre 70 et 98 %), suivi des VUL (entre 2 et 27 %). Les PL et bus sont peu présents sur les sites (entre 0 et 6 %) (Figure 25). Les trafics les plus importants de VUL et de PL et bus sont observés les matins entre 6h et 11h pour les jours de semaine et le samedi matin entre 6h et 9h.

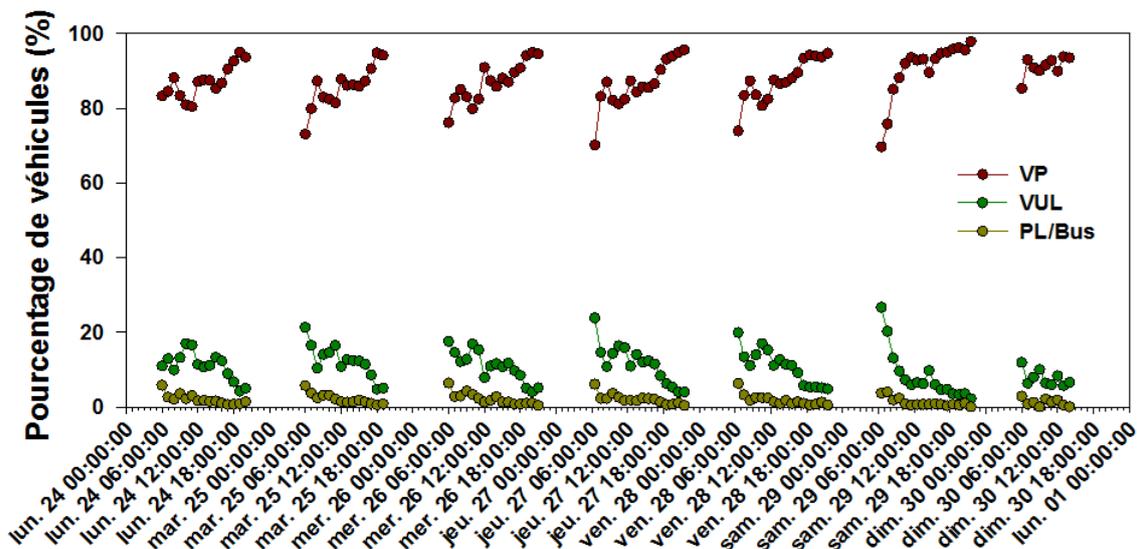


Figure 25. Variations de la composition du trafic selon les familles de véhicules VP, VUL et PL/Bus au cours de la semaine de mesure à Nantes.

3.3.1.2. Véhicules particuliers

Pour les VP, les véhicules Diesel sont plus nombreux que les véhicules essence, avec un rapport Diesel/essence variant de 61 à 77 % au cours de la semaine (Figure 26). En semaine, les VP Diesel Euro 5 et Euro 6 sont les plus nombreux (26 à 37 %), suivis par les VP Diesel Euro 4 (entre 19 et 26 %), puis par les VP Diesel de pré-Euro à Euro 3 (entre 13 à 24 %) et les VP essence de normes Euro 4 à Euro 6 (entre 9 et 23 %). Les VP essence de pré-Euro à Euro 3 sont les moins présents (entre 8 et 16 %, Figure 27). Pour le week-end, les distributions sont différentes avec plus d'homogénéité entre les différents groupes de normes, notamment pour le dimanche.

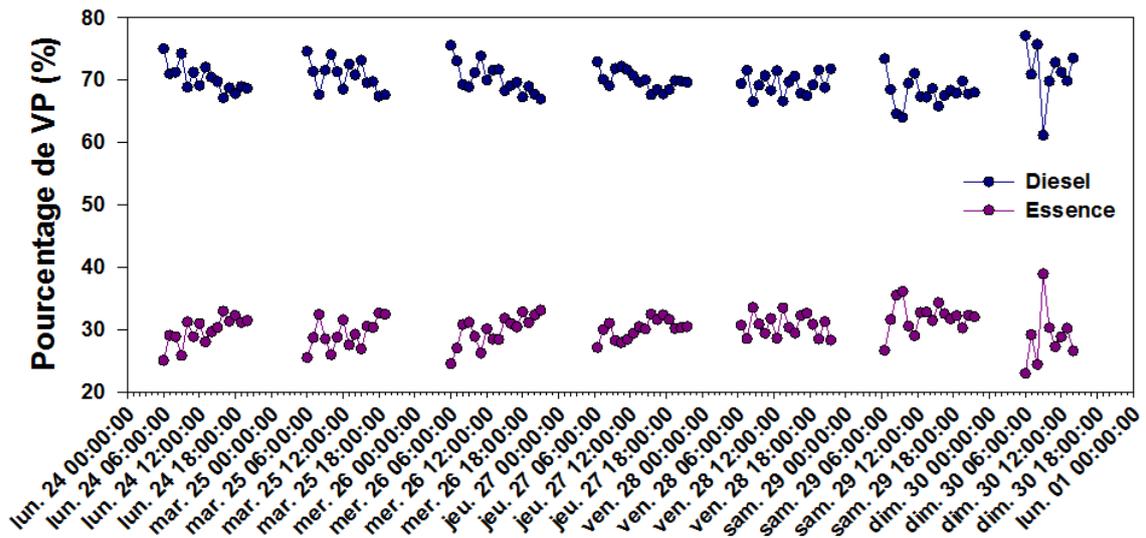


Figure 26. Variation de la répartition entre VP Diesel et essence au cours de la semaine de mesure à Nantes.

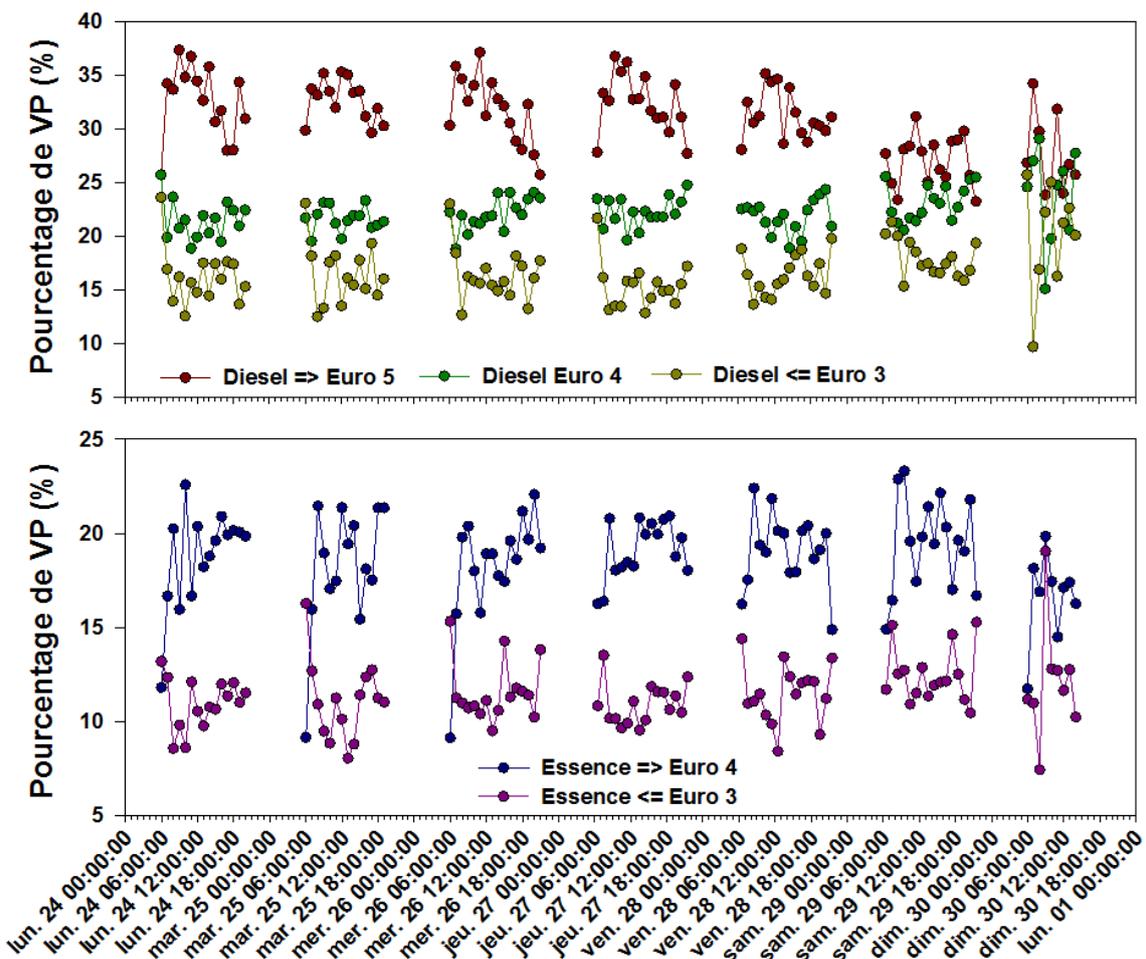


Figure 27. Variations de la composition du trafic des voitures particulières selon les motorisations et normes, semaine de mesure à Nantes.

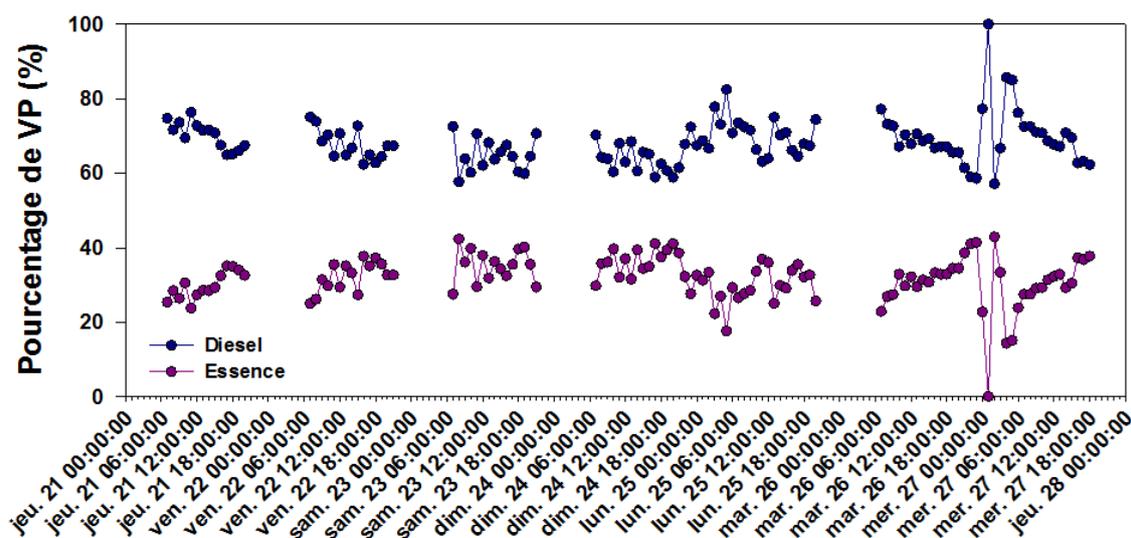


Figure 29. Variations de la composition du trafic des voitures particulières selon les motorisations, semaine de mesure dans le tunnel.

Pour les jours de semaine, les VP Diesel Euro 5 et Euro 6 sont les plus présents (de 35 à 64 % du trafic VP) avec des pourcentages plus élevés que ceux observés à Nantes. On observe ensuite les VP essence de normes Euro 4 à Euro 6 (entre 16 et 30 %), les VP Diesel Euro 4 (de 6 à 22 %), puis les VP Diesel et essence de pré-Euro à Euro 3 (de 3 à 12 % pour les deux groupes) (Figure 30).

Le week-end, comme à Nantes, les distributions sont plus homogènes entre les différents groupes, les Diesel récents demeurant les plus présents suivis des VP essence récents.

Au cours des deux nuits, les compositions varient fortement. Selon les créneaux horaires, on observe ainsi des proportions très élevées de VP Diesel Euro 5 et Euro 6 (jusqu'à 67 %), ou de VP essence de normes Euro 4 à Euro 6, ou encore de VP Diesel Euro 4 (jusqu'à 44 %).

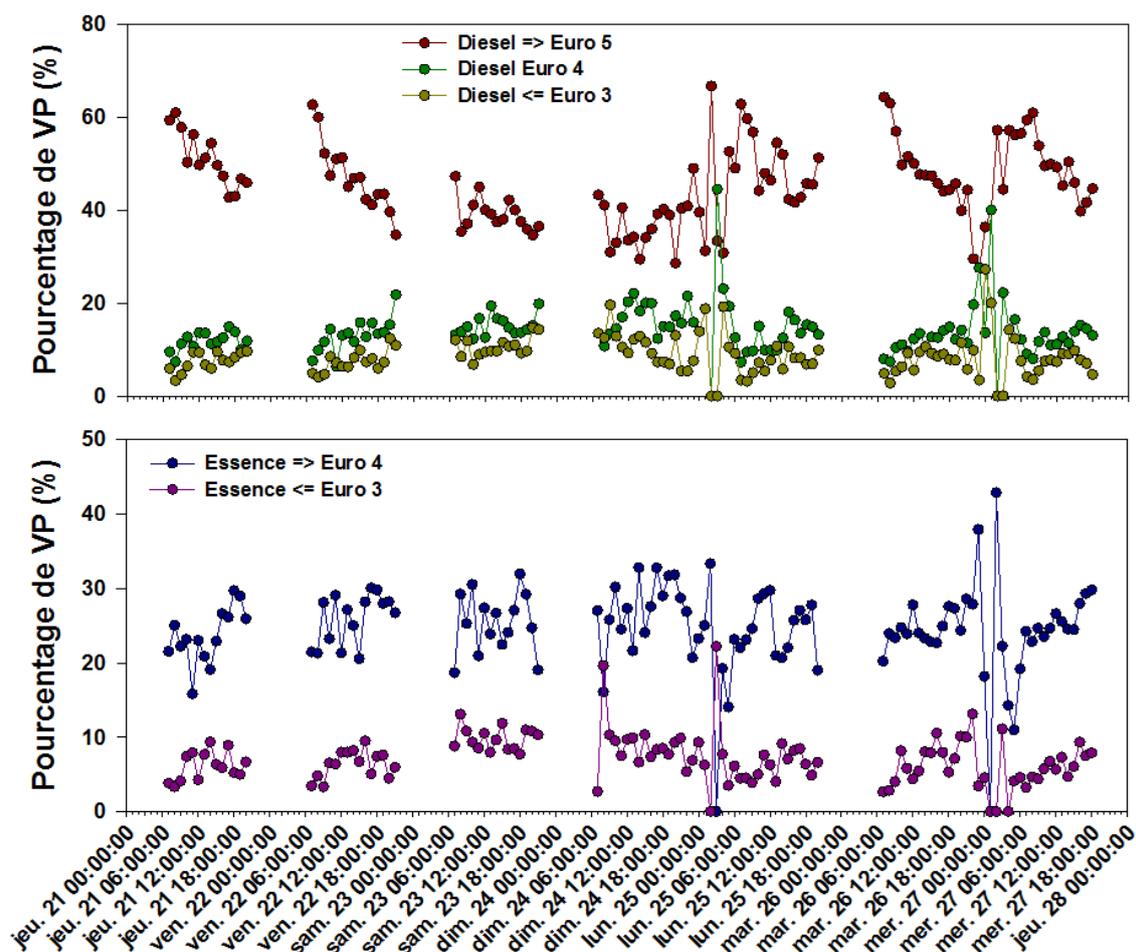


Figure 30. Variations de la composition du trafic des voitures particulières selon les motorisations et normes, semaine de mesure dans le tunnel.

4. Conclusion

Les parcs observés sur les trois sites de mesure montrent des différences de composition. Dans le tunnel de la Défense, les VP et les PL et bus sont plus récents (norme Euro 5 et Euro 6) que sur les sites de Nantes et de Lyon, tandis que les proportions de VUL de normes Euro 5 et Euro 6 sont similaires à celles observées à Lyon.

Comparées à la simulation du parc français en circulation, les compositions sur les sites peuvent être différentes. Ceci peut être dû à la divergence de l'approche (modélisation versus observation), à la moindre capacité de l'approche nationale de rendre compte de spécificités locales, mais aussi à la représentativité des sites, axes routiers et périodes de mesure. Au-delà de ces raisons d'ordre méthodologique, des écarts entre composition nationale et composition observée sur un site peuvent traduire des particularités locales, de comportements d'achat (achat de véhicules Diesel ou non), de renouvellement plus ou moins fréquent des véhicules (qui conduit à une proportion différente de véhicules récents), ou d'équipement local en bus au gaz, etc.

Les conditions de circulation varient aussi entre les sites d'observation du parc, avec plus ou moins de congestion du trafic et des vitesses de circulation allant de 16 à 60 km/h.

Ces différences de composition des parcs et de conditions de circulation permettront d'étudier la sensibilité des émissions des polluants du trafic routier à ces paramètres.

Chapitre 4 : Estimation des facteurs d'émission – Site ouvert en bord de route

1. Introduction

Deux campagnes de mesures ont été effectuées sur des sites ouverts en bord de route dans un environnement urbain avec des parcs roulants réels qui ont été caractérisés précisément dans le chapitre précédent.

- La première campagne a été réalisée à Nantes du 23 au 31 avril 2017 en collaboration avec le LEE (Laboratoire Eau et Environnement) de l'IFSTTAR de Nantes et Air Pays de la Loire.
- La seconde campagne a été effectuée à Lyon du 2 au 4 octobre 2018.

Durant ces deux campagnes, les facteurs d'émission des particules en nombre, de carbone suie, des BTEX, de certains composés alcanes et carbonylés ont été estimés. Sur le site de Nantes, seulement les alcanes volatils (C9, C10, C11) ont été mesurés. Cependant, certaines études montrent que dans les gaz d'échappement des véhicules Diesel et essence, une grande partie des composés organiques émis sont des COVI (composés organiques volatils intermédiaires) et COSV (composés organiques semi-volatils) (Gentner et al., 2012 ; May et al., 2013a ; May et al., 2013b ; Zhao et al., 2015 ; Zhao et al., 2016 ; Lu et al., 2018). Ces composés sont difficiles à quantifier car ils se répartissent dynamiquement entre les phases gazeuse et particulaire. À l'état actuel, seule leur phase particulaire est prise en compte dans les inventaires d'émission. 90 % des COVI en phase gazeuse ne sont pas quantifiés pendant les mesures d'émission (Robinson et al., 2010 ; Lu et al., 2018), et ne sont donc pas répertoriés dans les inventaires d'émission actuels qui servent comme données d'entrée pour les modèles de qualité de l'air (Dunmore et al., 2015 ; Kim et al., 2016). Dans le but d'étudier l'émission des COVI en phase gazeuse en condition de refroidissement ambiante et leur corrélation avec les autres composés, une seconde campagne (de même type) en bord de route a été réalisée à Lyon.

2. Estimation des facteurs d'émission avec la méthode des NO_x

2.1. Nantes

Sur des sites de mesure ouverts en zone urbaine, les sources d'émission de polluants peuvent être diverses et variées, notamment avec une contribution principale du transport routier mais également du résidentiel tertiaire, de la production d'énergie ou de l'industrie. Certaines études montrent que les NO_x pourraient être considérés comme un traceur des émissions du trafic routier et que ces émissions sont corrélées avec celles des autres polluants à l'échappement d'un véhicule (Harrison et al., 1997 ; Pant et al., 2013). Avant d'estimer les facteurs d'émission des polluants sur le site du trafic, nous avons réalisé une analyse en corrélation avec les NO_x afin d'appréhender l'impact

des autres sources présentes sur le site de mesure et de déterminer les valeurs de bruit de fond pour chaque polluant ciblé. Deux méthodes de détermination des valeurs de bruit de fond sont discutées dans cette partie : 1) polluants mesurés sur un site de fond urbain utilisé par Air Pays de la Loire ; 2) polluants mesurés sur le site de trafic avec une très faible circulation.

2.1.1. Bruit de fond des particules et du carbone suie

Les profils de concentrations des particules et du carbone suie sont étudiés en fonction des concentrations de NO_x pour la semaine de mesure sur le site de trafic à Nantes (Figure 31). Les concentrations pour les PN varient entre 5×10^3 et $7,1 \times 10^4 \text{ \#}/\text{cm}^3$, pour le BC entre 600 et $1,5 \times 10^4 \text{ ng}/\text{m}^3$ et pour les NO_x entre 10 et $360 \text{ \mu g}/\text{m}^3$. Ces profils montrent de bonnes corrélations entre les concentrations de NO_x et de PN avec un coefficient de corrélation (R^2) de 0,92 et entre les NO_x et le BC avec un R^2 de 0,75 (Figure 56 de l'Annexe B). Seul le mardi après-midi indique un pic de concentration de PN qui n'est pas corrélé avec les NO_x et le BC. Une discussion détaillée est présentée dans la Partie 2.1.3.2.

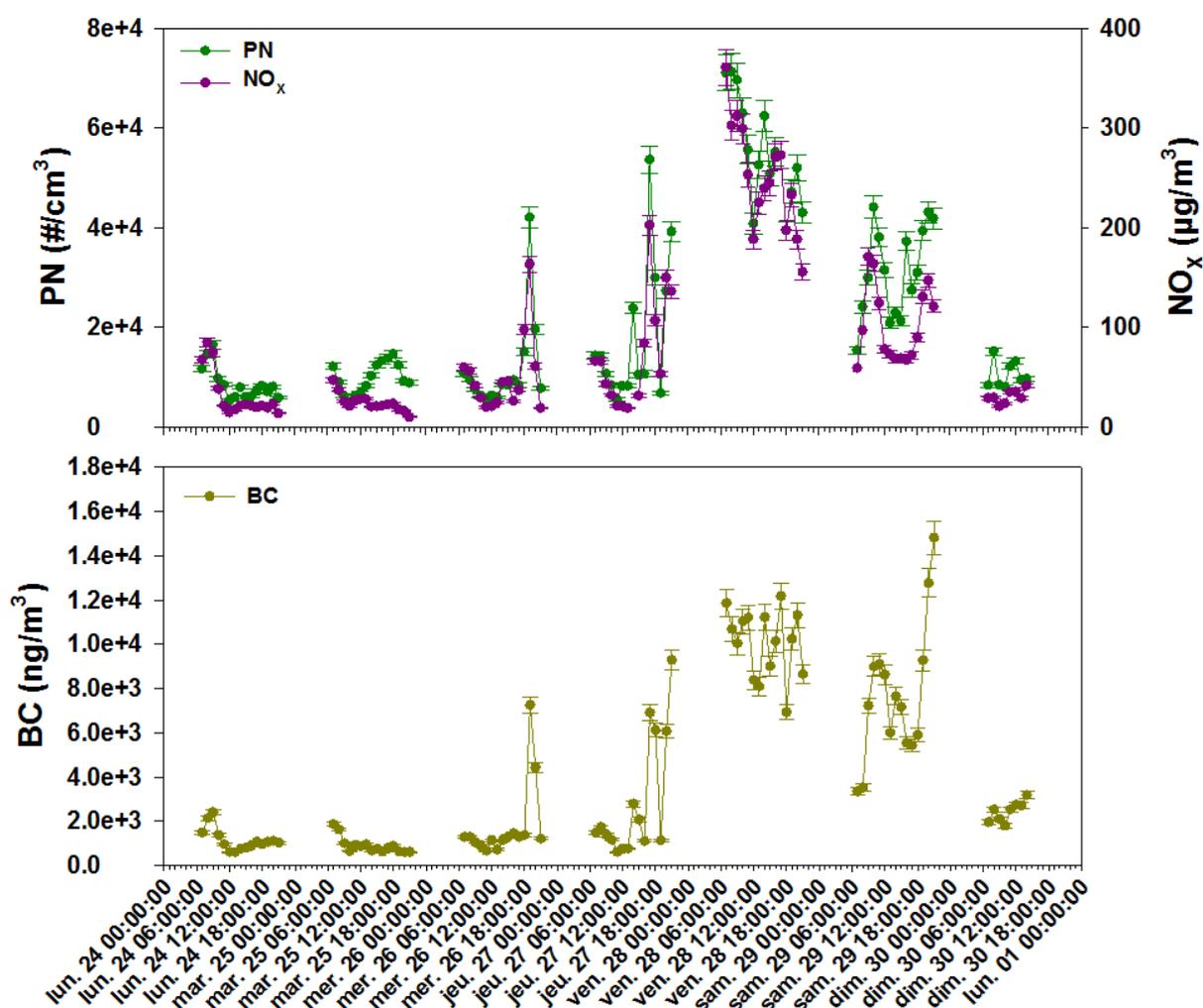


Figure 31. Profils de concentrations des particules en nombre, du carbone suie et des NO_x sur le site de trafic à Nantes.

Pour le site de fond urbain, les concentrations de NO_x, PN et BC varient respectivement entre 5 et 20 µg/m³, entre 3,2×10³ et 5×10³ #/cm³ et entre 350 et 750 ng/m³ (16h de mesure par jour pendant 4 jours). Une valeur moyenne de concentration de fond urbain (NO_x à 10 µg/m³, PN à 4×10³ #/cm³, et BC à 550 ng/m³) a été utilisée pour estimer les facteurs d'émission de PN et BC sur le site du trafic. $\Delta P = [P]_{Trafic} - [P]_{Bruit\ de\ fond}$ (Équation (2)) permet d'enlever un bruit de fond général, mais pas local. Cela pourrait induire un biais potentiel avec une surestimation des FE de PN et de BC si le niveau du bruit de fond local est plus élevé que le niveau général. Le bruit de fond au niveau local sur le site du trafic a été mesuré à 6h du matin avec une circulation très faible. Avec le bruit de fond local, les facteurs d'émission d'un parc global pour les PN et le BC sont estimés entre 2×10¹⁵ et 9,6×10¹⁷ #/km, et 1,2×10⁸ et 2,3×10¹¹ ng/km, respectivement. Ces valeurs sont 10 à 20 fois plus faibles comparées aux FE estimés avec le bruit de fond général pour les deux polluants, mais seulement pour les faibles émissions. Les bruits de fond n'induisent pas d'impact significatif en période d'émission élevée.

2.1.2. Bruit de fond des BTEX, alcanes et composés carbonylés

La Figure 32 rapporte les profils de concentrations de la somme des BTEX, de la somme des alcanes linéaires C9 – C11 (nonane, décane, undécane), de la somme des composés carbonylés (formaldéhyde et hexanal) et des NO_x. Les concentrations mesurées pour les BTEX varient entre 4 et 48 µg/m³, pour les alcanes entre 0,7 et 19 µg/m³ et pour les composés carbonylés entre 4 et 11 µg/m³. Elles ne montrent pas une bonne corrélation avec les concentrations de NO_x, avec des R² à 0,22 pour les BTEX, 0,10 pour les alcanes et 0,36 pour les carbonylés (Figure 57 de l'Annexe B). Ces faibles corrélations indiquent que ces composés sont très sensibles aux environnements, et leurs concentrations mesurées ne sont pas dues uniquement aux émissions du trafic routier mais également à d'autres sources. D'après CITEPA (2019), dans une zone urbaine en France, 10 % des émissions de COV sont dues au trafic routier et, parmi les COV émis, 11 % sont des composés carbonylés, 25 % sont des BTEX et 37 % sont des alcanes. Ces pourcentages sont appliqués aux concentrations mesurées sur le site de trafic pour définir les émissions de BTEX, d'alcanes linéaires et de composés carbonylés issues du trafic routier.

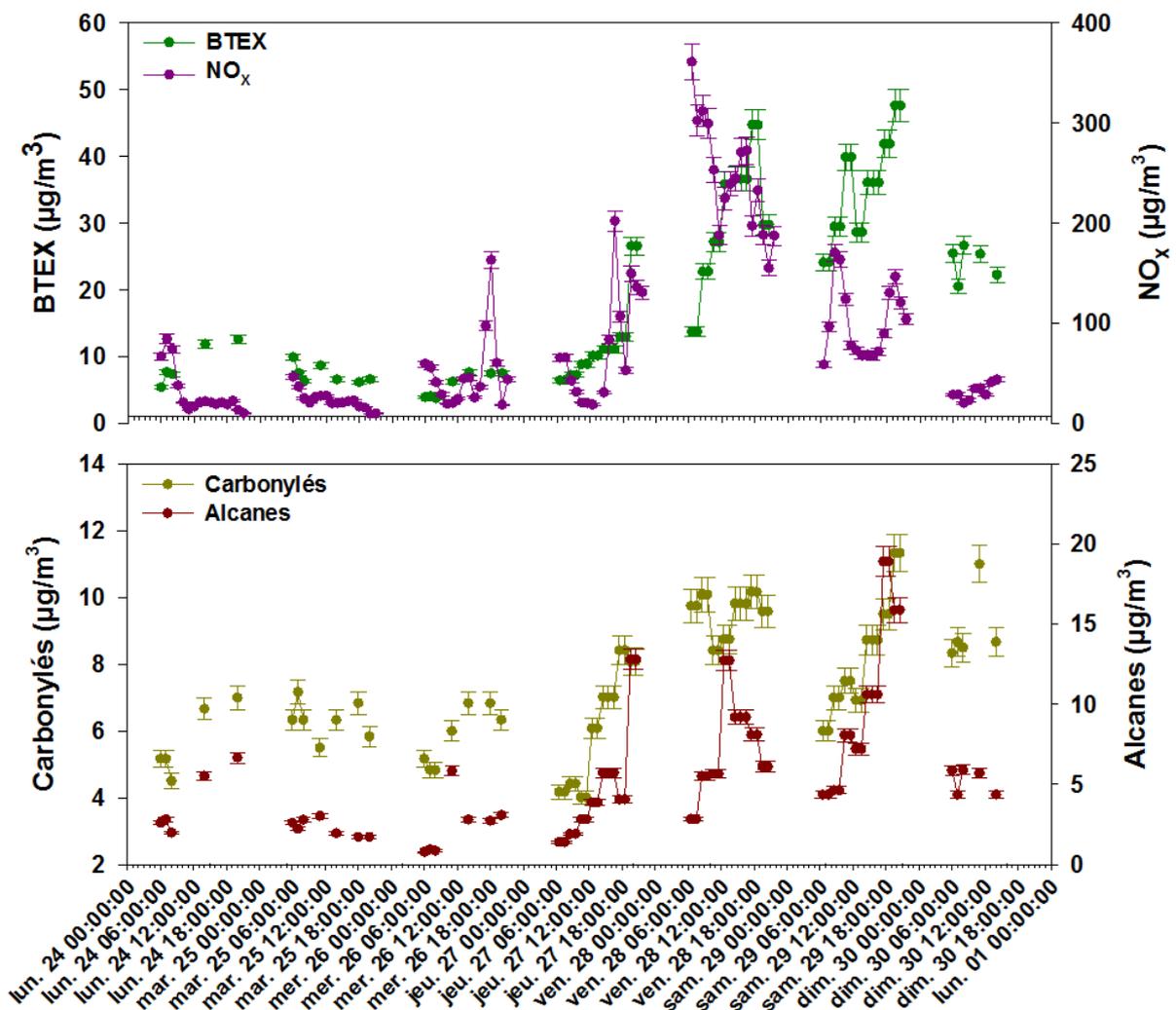


Figure 32. Profils de concentrations des BTEX, des alcanes, des composés carbonylés et des NO_x sur le site de trafic à Nantes.

2.1.3. Facteurs d'émission des polluants étudiés

2.1.3.1. Résumé de l'article

L'objectif de la première campagne de mesure à Nantes est d'estimer les facteurs d'émission des PN, du BC et plusieurs composés aromatiques, aliphatiques et carbonylés pour un site de trafic en zone urbaine. Sur ce site, les conditions de circulation sont caractérisées par le nombre de véhicules et leur vitesse tandis que la composition du parc automobile est déclinée selon leur famille (VP, VUL, PL et bus) ainsi que leurs caractéristiques (marque, modèle, carburant, motorisation, norme Euro). Cette caractérisation a été utilisée pour l'estimation des facteurs d'émission in-situ des différents polluants. Elle a également permis l'étude des impacts de la composition du parc sur les émissions, qui a été réalisée avec des analyses ANOVA. Les résultats montrent que les différentes compositions du parc définies par le nombre de PL et bus, le pourcentage de VP Diesel de normes pré-Euro à Euro 3, de norme Euro 4 et de normes Euro 5 et Euro 6, et le pourcentage de VP

essence de normes pré-Euro à Euro 3 et de normes Euro 4 à Euro 6 ont des impacts significatifs sur les émissions des polluants étudiés. Un pourcentage plus élevé de VP essence Euro 4 à Euro 6 et de VP Diesel Euro 4 induit plus d'émissions de BC. Un pourcentage plus élevé de vieux VP Diesel (\leq Euro 3) induit des émissions plus importantes de toluène, d'éthylbenzène et de xylène. De plus, les facteurs d'émission estimés dans cette étude ont été comparés à ceux calculés dans d'autres études in-situ et révèlent un bon accord entre eux. Pour la comparaison avec des mesures sur banc à rouleau, les facteurs d'émission in-situ des PN et du BC sont dans la même plage que ceux mesurés sur banc pour les véhicules Diesel non équipés de filtre à particules et les véhicules essence avec un système d'injection directe.

2.1.3.2. Article : In-situ Estimation of Non-Regulated Pollutant Emission Factors in an Urban Area with Fleet Composition Characterization.

In-situ estimation of non-regulated pollutant emission factors in an urban area of Nantes, France, with fleet composition characterization

Simon Martinet^a, Yao Liu^{a*}, Liliane Jean-Soro^b, Mathieu Goriaux^b, Michel André^a

^a Univ Lyon, IFSTTAR, AME, LTE, Bron, 69675, France

^b GERS, LEE, IFSTTAR, Bouguenais, 44344, France

* Corresponding author: yao.liu@ifsttar.fr, Phone: +33 472 14 24 75, Fax: +33 472 37 68 37;
Address: 25 avenue François Mitterrand, 69675 Bron, France

Référence :

Martinet, S., Liu, Y., Jean-Soro, L., Goriaux, M., André, M., 2019. In-situ estimation of non-regulated pollutant emission factors in an urban area of Nantes, France, with fleet composition characterization. *Transportation Research Part D: Transport and Environment* 76, 193–210. <https://doi.org/10.1016/j.trd.2019.09.023>



In-situ estimation of non-regulated pollutant emission factors in an urban area of Nantes, France, with fleet composition characterization



Simon Martinet^a, Yao Liu^{a,*}, Liliane Jean-Soro^b, Mathieu Goriaux^b, Michel André^a

^a Univ Lyon, IFSTTAR, AME, LTE, Bron 69675, France

^b GERS, LEE, IFSTTAR, Bouguenais 44344, France

ARTICLE INFO

Keywords:

In-situ emission factors
Unregulated pollutants
Fleet composition

ABSTRACT

The purpose of this study is to estimate the in-situ emission factors of several pollutants (particle number [PN], black carbon [BC] and several volatile and semi-volatile organic compounds [VOCs and SVOCs]) in an urban area of Nantes, France, with real-world traffic conditions and characterization of the fleet composition. The fleet composition and driving conditions are characterized by the number of vehicles, their speeds and their types (passenger cars [PCs], light commercial vehicles [LCVs], heavy-duty vehicles [HDVs]) as well as their characteristics (make, model, fuel, engine, EURO emission standard, etc.). The number of vehicles passing on the boulevard is around 20,000 per day with about 44% of Euro 5 and Euro 6 vehicles. The impacts of fleet composition on emission were analyzed by ANOVA. The results show that the fleet composition has a significant impact on emissions for different pollutants. Higher percentage of gasoline PCs between Euro 4 to Euro 6 and Euro 4 diesel PCs induces more BC emission. Higher percentage of old gasoline and diesel vehicles (\leq Euro 3) induces higher emission of toluene, ethylbenzene and m + p- and o-xylene. Furthermore, emission factors estimated in this work were compared to those calculated in other in-situ studies that show a good agreement. For the chassis bench comparison, the in-situ PN and BC emission factors are in the same range as those measured for diesel vehicles without particle filter and gasoline vehicles with direct injection system. These EFs are also comparable with old heavy duty vehicles without particle filter (5×10^{13} – 2×10^{14} #/km).

1. Introduction

On-road vehicle emissions are the main cause of atmospheric pollution in urban areas. Road transport induces particles, black carbon (BC) and of several VOCs and SVOCs (Volatile and Semi-Volatile Organic Compounds) emissions, such as carbonyl compounds (formaldehyde, hexanal), and BTEX (benzene, toluene, ethylbenzene, xylene) as well as various alkanes and alkenes. These VOCs and SVOCs are non-regulated compounds that could serve as secondary particle precursors and have serious negative impacts on human health (Sydbom et al., 2001; Lewtas et al., 2007) and air quality in cities.

The European Union is imposing emission limits for regulated pollutants in order to reduce road-traffic emissions. Facing on these vehicle emission standards, emission factors are derived from dynamometer bench test (Alves et al., 2015; Yang et al., 2015; Louis et al., 2016; Martinet et al., 2017) or from on-board emissions measurements (O'Driscoll et al., 2016; Ntziachristos et al., 2016).

* Corresponding author at: 25 avenue François Mitterrand, 69675 Bron, France.

E-mail address: yao.liu@ifsttar.fr (Y. Liu).

<https://doi.org/10.1016/j.trd.2019.09.023>

These emission factors constituted an input database with different vehicle categories using by emission models (e.g., COPERT, HBEFA, PHEM and MOVES) for air quality studies. However, for these emission models, the emission factors inventories for recent Euro 5 and Euro 6 vehicles are quite poor (Rexeis et al., 2013). Only eighty Euro 5 vehicles and twenty Euro 6 vehicles (with 13 different vehicle models, and only one Euro 6 gasoline car) were added to HBEFA Version 3.2 for regulated compounds, which may not be representative of the entire fleet composition. The emissions of non-regulated pollutants are rarely measured and integrated in emission models. As consequence, their emission factors for an entire fleet could not be estimated correctly actually due to this deficiency of database, and their impact on air quality and human health could not be investigated accurately.

Emission factors could be estimated in-situ for a part or an entire fleet using various methods. The first is the chasing method, where pollutant concentrations are measured by driving a mobile measurement platform behind either a single vehicle (Karjalainen et al., 2014; Ježek et al., 2015) or part of the fleet present on the road (Yli-Tuomi et al., 2005; Wang et al., 2009; Westerdahl et al., 2009; Kam et al., 2012; Ning et al., 2012; Hudda et al., 2013). In the second method, traffic pollutant concentrations are collected by a fixed measurement platform placed on the roadside. This method makes it possible to measure emissions for an entire fleet driving near the measurement site (Ketzel et al., 2003; Imhof et al., 2005; Rose et al., 2005; Jones et al., 2006; Bukowiecki et al., 2010). For most of these studies, the number of LDVs, HDVs and buses are counted and the traffic speeds are measured in some cases. However, the fleet compositions with vehicle engine, capacity, combustion, age and Euro emission standard were not fully characterized. As consequence, the impacts of fleet composition on non-regulated pollutant emissions are hardly investigated. Furthermore, the on-road emission factors in these cited studies were mainly calculated for particles and BC. Very few on-road emission factors studies were focused on secondary particle precursors (carbonyl compounds, BTEX and alkanes...). Ning et al. (2012) determined on-road emission factors for butane, but only for an HDV/bus fleet.

In this paper, the emission factors of particle number (PN), BC, and several aliphatic, aromatic and carbonyl compounds were estimated using the different concentrations of NO_x and a pollutant between a background measurement site and a traffic measurement site with the fleet composition observed during the measurements campaign. Furthermore, the fleet composition was characterized based on the vehicle type, make, model, fuel, engine, age, Euro emission standard, as well as the traffic conditions, traffic speed, and congestion. ANOVA statistical analyses were performed to characterize the impact of fleet composition on emissions. Furthermore, the emission factors estimated in this study were compared to other emission factors calculated in previous in-situ studies and those measured on a dynamometer bench.

2. Experimental method

2.1. Measurement Sites

The measurements were conducted at two sites in the city of Nantes, France, between April 19 and 30, 2017. The first site was an urban background ($47^{\circ}13'20.3''\text{N}$ $1^{\circ}32'15.2''\text{W}$) site to measure urban background pollutant concentrations over a period of four days. The second site was a traffic site in the city center ($47^{\circ}12'16.0''\text{N}$ $1^{\circ}33'10.9''\text{W}$). It is an urban boulevard with two lanes of traffic in each direction, a speed limit of 30 km/h, and traffic lights (Fig. 1). The number of vehicles passing on the boulevard is around 20,000 per day. Trucks and buses pass on the boulevard but with a low frequency. Measurements were conducted over a period of seven days.

2.2. Traffic characterization

The fleet composition and traffic conditions on the traffic site were characterized by AlyceSofreco (a private company specialized in the field of traffic measurement). These data were recorded in both directions of traffic and over a period of seven days using two video cameras and pneumatic-tube automatic traffic counters. The counters determined the number of vehicles and the driving conditions (speed, traffic congestion, etc.) and the video cameras collected the license plate numbers of each vehicle. Using these license plate numbers, AAAData (a private company) provided the characteristics of each vehicle, including its make, model, vehicle type, fuel, engine, date of entry into circulation and Euro emission standard according to the vehicle type (LDV and HDV).

2.3. Sampling devices

The sampling devices were installed in a truck that been specially fitted with an array of analyzers to sample the ambient air. The truck was placed along the edge of the road on the traffic site and the sampling was carried out around at a height about two meters and at a distance of 0.5 m of the road (Fig. 1). A Fast Mobility Particle Sizer (FMPS™; TSI) was used to measure the distribution and total particle number ranging from 5.6 to 560 nm with 1 scan/s at a flow rate of 8 L/min, with a concentration range from 0 to 10^7 particle/cm³. An Aethalometer® (AE-33-7, Magee Scientific) was used to measure the BC concentration. The data are collected once a second and at a flow rate of 5 L/min. The concentration ranges from 10 to 10^5 ng/m³ with a detection limit of 5 ng/m³ for 1 h. The device measures the light attenuation for seven wavelengths from UV to IR (370, 470, 525, 590, 660, 880 and 940 nm). The 880 nm wavelength corresponding to the maximum amount of BC was used for the quantification in this study.

VOCs and SVOCs were sampled on different cartridges with 1 sample per hour. DNPH and Tenax® cartridges were used to collect respectively carbonyl compounds and BTEX and five majority alkanes with a flow rate of 1 L/min and 0.1 L/min. A private laboratory, TERA Environnement, analyzed the cartridges (78 TENAX and 78 DNPH, including 28 for the background site, 49 for the traffic site and 1 for the transport blank for each type of cartridge) using standardized analytical methods (ISO-16000-6, ISO 16000-3, NIOSH 2549, NIOSH 5506 and NF X 43-025). The complete list of compounds (six BTEX, five alkanes and 11 carbonyl compounds)



Fig. 1. Diagram of the traffic site used for the measurements.

analyzed on the cartridges is given below.

- BTEX: benzene, toluene, ethylbenzene, m-xylene, p-xylene, o-xylene.
- Alkanes: nonane, decane, undecane, cyclopropane, ethyl, cyclohexane, ethyl.
- Carbonyl compounds: formaldehyde, acetaldehyde, acetone, acrolein, propionaldehyde, crotonaldehyde, methacrolein, butanal, benzaldehyde, pentanal, hexanal.

2.4. Emission factors

The variation of NO_x and pollutant concentrations between the background site and the traffic site were used for estimating road-traffic emission factors (Imhof et al., 2005; Jones et al., 2006; Johansson et al., 2009; Krecl et al., 2017). This method is based on the assumption that the dilution of the pollutant between the exhaust outlets of vehicles and the sampler device inlets and the behavior in the atmosphere are comparable for NO_x and the other pollutants (Lohmeyer et al., 2002; Amato et al., 2010; Bukowiecki et al., 2010; Gietl et al., 2010). Using this assumption, it is considered that the dilution of other pollutants may be approximated by the dilution of NO_x . The wind speed (Fig. 2) and directions during the campaign varied between 0 and 7.6 m/s, with principally the north direction and few times the south and west direction. The temperature varied between 0 and 19 °C with relative humidity at about 30–99%. The following equation is used to calculate the emission factor for a given pollutant:

$$EF_P = \Delta P \times \frac{EF_{\text{NO}_x}}{\Delta \text{NO}_x} \quad (1)$$

where EF_P and EF_{NO_x} are the emission factor for pollutant P and NO_x , respectively, given in mass or number of particles per vehicle per kilometer (#/veh/km or $\mu\text{g}/\text{veh}/\text{km}$). ΔP and ΔNO_x are the difference of concentrations between background and traffic sites for pollutant P and NO_x respectively. The emission factors for NO_x used in Eq. (1) were obtained using COPERT 4 (COmputer Programme to calculate Emissions from Road Transport) for each time step (one-hour period) with the corresponding fleet composition characterized at the same time step. For urban driving conditions, COPERT 4 estimates a NO_x emission that takes into account cold and hot emissions.

For all cartridges, the sampling time is one hour to have enough material for chemical analysis. For PN and BC, the data resolution is 1 s. However, in order to be able to analyze the emission factors with the fleet for all measured pollutants, the PN and BC measurement were averaged in one-hour period, corresponding to the cartridge sampling time. In addition, the NO_x concentrations

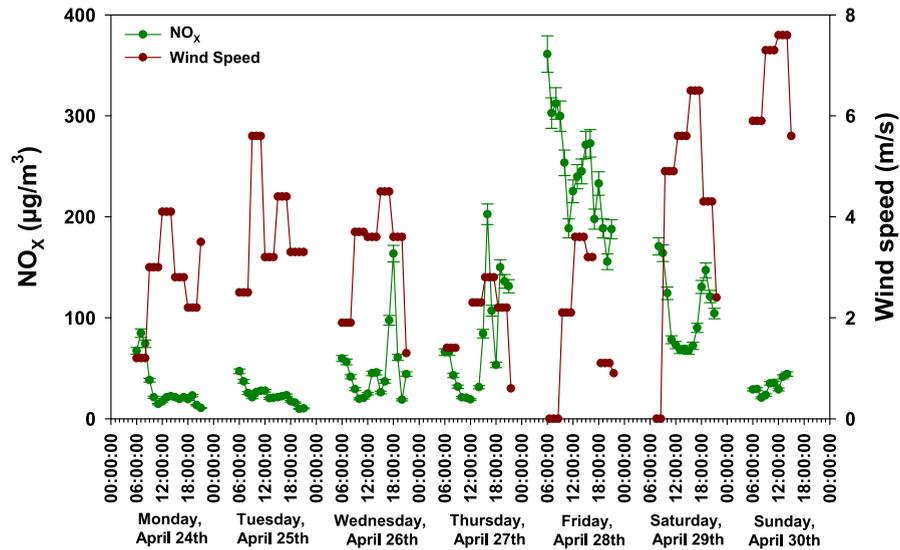


Fig. 2. Time profiles of NO_x concentration and wind speed on the measurement week.

used for ΔNO_x in Eq. (1) are given as a 15-min. average concentration. It is therefore impossible to go below this 15-min. time step for calculating emission factors.

2.5. ANOVA analysis

The analysis of variance (ANOVA) is a statistical technique for assessing the differences between the dependent variables, which are the emissions, of a nominal variable with several categories (composition of the fleet). The null hypothesis (H_0) for the analysis represents the fact that there is no significant difference between the groups. The alternative hypothesis considers that there is at least one significant difference among the groups. For the ANOVA test, the F-ratio and associated probability value (p-value) are calculated. If the p-value associated with the F is smaller than 0.05, then the H_0 is rejected and the alternative hypothesis (H_1) is retained (Fanelli et al., 2018) and this implies that the groups have a significant impact on emissions (Wildt and Ahtola, 1978). It can be concluded that the means of all groups are not equal and we can determine which groups are different from others.

In this work, ANOVA was performed by SPAD (data analysis and data mining software) to determine impact of fleet composition on emission factors. The nominal-level variables used are the number of HDVs, the percentage of diesel vehicles between pre-Euro and Euro 3, the percentage of Euro 4 diesel, the percentage of diesel between Euro 5 and Euro 6, the percentage of gasoline vehicles between pre-Euro and Euro 3 and the percentage of gasoline between Euro 4 and Euro 6.

3. Results and discussion

3.1. Fleet composition

The number of vehicles was characterized during the measurement on the traffic site. A total of 140,076 vehicles drove along the boulevard during the seven-day measurement period. Many vehicles were registered twice or more times during the week. The number of unique vehicles after removing these duplicates is 57,220. The number of vehicles varied between 21,147 and 23,401 from Monday to Friday. On Saturday and Sunday, 18,763 vehicles and 9860 vehicles were counted, respectively. The number of vehicles per hour was between 600 and 1800 with an average number of 1400/h for all five weekdays and between 200 and 1600 on the weekend with an average number of 900/h. The traffic speed was characterized for each 5 min. The average traffic speed for one hour was between 16 and 34 km/h on all five weekdays and 21 and 38 km/h on the weekend.

Furthermore, the fleet composition characterized during the measurement campaign was composed of 87% passenger cars (PCs), 11% light commercial vehicles (LCVs), and 2% heavy-duty vehicles (HDVs) on weekdays. On the weekend, it consisted of 92% PCs, 7% LCVs, and 1% HDVs. The number of LCVs and HDVs decreased over the weekend, particularly on Sundays. According to André et al. (2014), the entire French fleet was composed of 82% PCs, 16% LCVs, and 2% HDVs in 2017 (Fig. 3). The comparison between this study and the French fleet composition shows the slightly higher percentage of PCs and the slightly lower percentage of LCVs. These differences are explained by the fact that the measurements were conducted in an urban environment, where LCV and HDV traffic is generally lower.

The distribution of the various Euro emission standards for PCs during the measurements was 14% Euro 6, 30% Euro 5, 29% Euro 4, 17% Euro 3, 7% Euro 2, 2% Euro 1, and 1% pre-Euro vehicles (Fig. 4a). This distribution is consistent with André et al. (2014), who estimated the PCs French fleet composed 17% Euro 6, 33% Euro 5, 26% Euro 4, 15% Euro 3, 6% Euro 2, 2% Euro 1, and

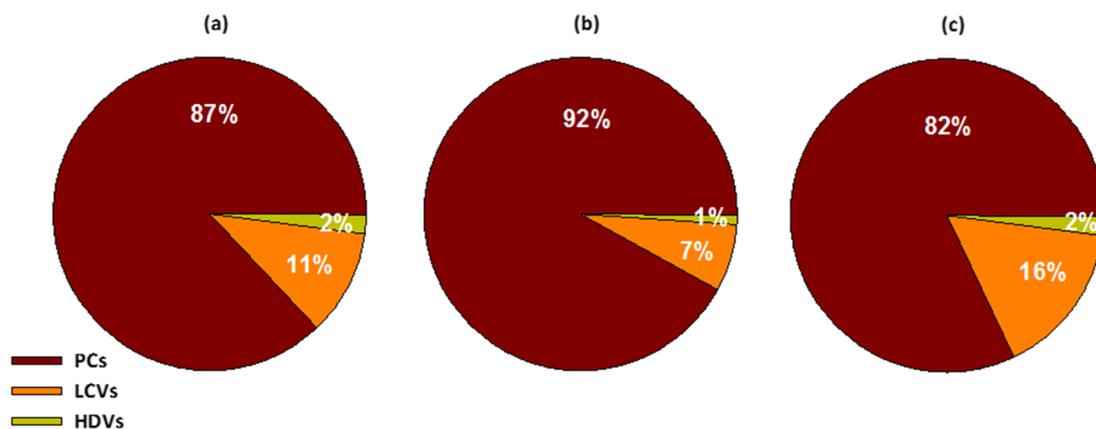


Fig. 3. Weekdays (a) and weekend (b) characterization of the fleet composition during the measurement campaign. 2017 composition of the French fleet (c).

1% pre-Euro in 2017 (Fig. 4b). As regards drive technology systems, the observed PC fleet was composed of 68% diesel vehicles, 30% gasoline vehicles, and 2% other such as gasoline or diesel hybrid vehicles, electric vehicles, gasoline/compressed natural gas and gasoline/liquefied petroleum gas vehicles. The LCV fleet was composed of 97% diesel vehicles. For the HDVs, all the trucks were powered by diesel engines and all the buses were natural gas combustion or other gaseous hydrocarbons.

Estimation of global fleet emission factors

The global fleet emission factors for PN, BC, carbonyl compounds, BTEX, alkanes, NO_x concentrations, number of vehicles, and traffic speeds are presented in Fig. 5 as a function of the measurement time and day on the traffic site. The average emission factor of one vehicle (Eq. (1)) has been multiplying by the vehicle number that gives us the pollutant emission factors for a global fleet, over the one-hour measurement period. This allows us to study the pollutant emissions in relation with the current traffic.

The particle number emission factors varied between 2×10^{16} and 9.6×10^{17} #/km on five weekdays and between 2.3×10^{16} and 4.6×10^{17} #/km on the weekend. The BC emission factors varied between 2.4×10^9 and 2.4×10^{11} ng/km on weekdays and between 6.6×10^9 and 1.2×10^{11} ng/km on the weekend. The emission factors for carbonyl compounds varied between 2×10^4 and 2.4×10^6 $\mu\text{g}/\text{km}$ on weekdays and between 2.7×10^3 and 4.9×10^5 $\mu\text{g}/\text{km}$ on the weekend. The hexanal emission factors ranged between 2.3×10^3 and 4.1×10^5 $\mu\text{g}/\text{km}$ on weekdays and between 1.5×10^4 and 3.2×10^5 $\mu\text{g}/\text{km}$ on the weekend. For the three alkanes, the emission factors were between 1.2×10^4 and 7.1×10^6 $\mu\text{g}/\text{km}$ on weekdays and between 5.3×10^3 and 2×10^6 $\mu\text{g}/\text{km}$ on the weekend. The BTEX emission factors ranged between 5.4×10^3 and 3.3×10^6 $\mu\text{g}/\text{km}$ on weekdays and between 6.3×10^4 and 5.1×10^6 $\mu\text{g}/\text{km}$ on the weekend. The missing points for VOCs are either pollutant quantities sampled on the cartridges below their quantification limit; or negative values by subtracting the background value.

The urban background concentrations for the pollutants used in Eq. (1) were measured on the urban background site used by the air quality association "Air Pays de la Loire". This background site is not affected by road traffic emissions, the measured NO_x , PN and BC concentrations vary little on the different measurement time (16 h/day during 4 days) (between 3200 and 4800 #/cm³ for PN, between 400 and 700 ng/m³ for BC, and between 5 and 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ for NO_x) and provides a general background concentration with all different sources. The subtraction in Eq. (1) allows removing only the general background levels but not the local background levels. This might induce a potential bias with an over estimation of EF for PN and other pollutants if the local background levels are higher than general background levels. The local background levels could also be measured when there is no traffic. However, depending on the weather conditions, especially the wind speeds, the accumulation phenomena under no traffic condition might also induce a

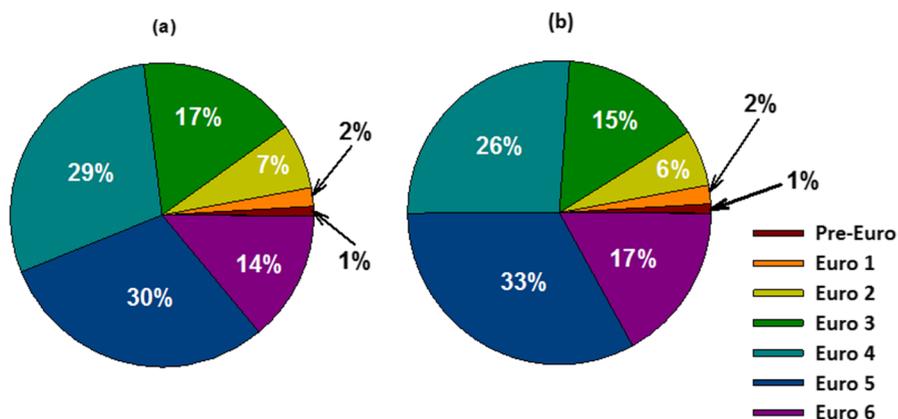


Fig. 4. Distribution of the various Euro emission standards for PCs (a) during the measurement campaign and (b) for the 2017 French fleet.

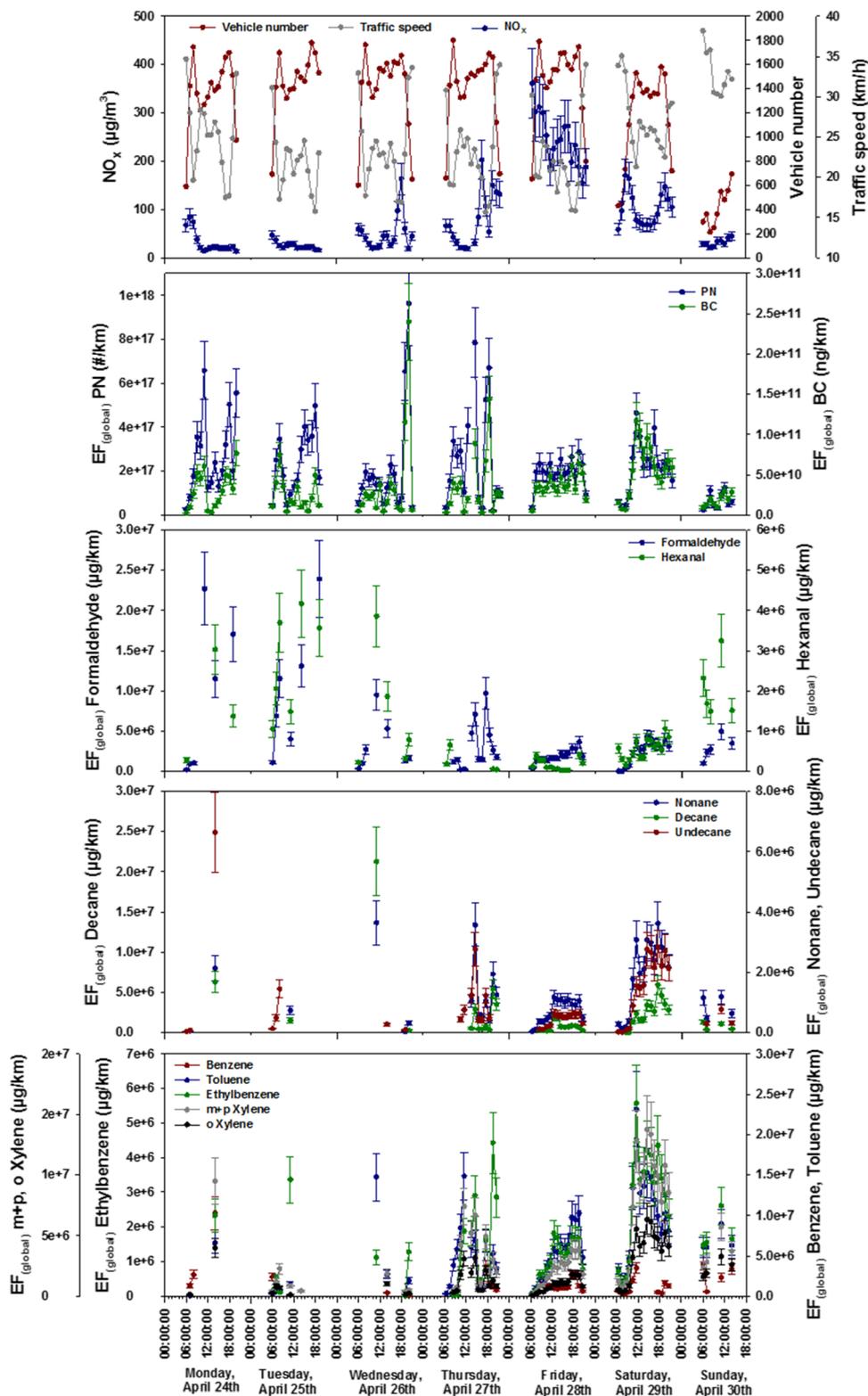


Fig. 5. Global fleet emission factors for PN, BC, carbonyl compounds, BTEX, alkanes, NO_x concentrations, number of vehicles, and traffic speeds as a function of the time and day of measurement on the traffic site.

potential bias on our measurement. The first point in the morning (at around 6:00 a.m.) was taken as the background level at the traffic site. Using this local background levels, the emission factors of PN and BC are respectively between 5×10^{15} and 9×10^{17} #/km and 1.2×10^8 and 2.3×10^{11} ng/km. The local background values induce an underestimation of 4 and 20 times for PN and BC comparing to the ‘Air Pays de la Loire’ background site, but only for low emission period. These background values do not induce a significant difference at high emission period for both PN and BC. Overall, if we use the local background value, it induced an average underestimation around 30% for all period of measurement.

In general, the highest emission factors were measured between 7:00 a.m. and 10:00 a.m. and between 5:00 p.m. and 8:00 p.m. on all five weekdays. For the Saturday, the highest emission factors were measured between 10:00 a.m. and 1:00 p.m. and between 5:00 p.m. and 8:00 p.m. For the Sunday, between 6:00 a.m. and 3:00p.m., high emission factors were measured for carbonyl compounds, BTEX and alkanes. The higher emission factors measured in the morning can be explained by vehicle cold start, which emits large amounts of pollutants such as BC, PN, BTEX, and carbonyl compounds (Westerholm et al., 1996; Jourmard et al., 2000; Sluder et al., 2000; Caplain et al., 2006; Louis et al., 2016; Martinet et al., 2017).

The PN and BC emission factors showed a good correlation, following the same tendency during the week of measurements (Fig. 5). Apart from Tuesday afternoon between 2:00 p.m. and 8:00 p.m., the PN emission factors did not follow the same tendency as the BC emission factors. The emission factor values for BC decreased while those for PN increased sharply. This could imply that the particle number emissions measured during this afternoon were not due to road traffic (See Section below).

3.2. PN concentration and size distribution time profiles

The number of vehicles, BC, NO_x and PN for three size ranges ([0–50] nm, [50–100] nm, and [100–500] nm) concentrations were followed from Monday (April 24th) to Sunday (April 30th), which show the similar results in general for the five weekdays, except for Tuesday afternoon. Fig. 6 shows the time profiles of NO_x, BC, PN concentrations and vehicles number on Monday, Tuesday and Wednesday. Concentration peaks of BC, PN and NO_x was observed over a short period between 7:00 a.m. and 9:00 a.m. on weekdays corresponding to morning rush-hour traffic (See Section 3.2).

Moreover, Fig. 6 shows a large peak for PN with size range [0–50] nm between 2:00 p.m. and 8:00 p.m. on Tuesday that is not correlated with BC, NO_x and PN size ranges [50–100] nm and [100–500] nm. Since NO_x and BC are considered as traffic tracers (Pant et al., 2013), which might indicates that the [0–50] nm PN on Tuesday afternoon is not generated by the road traffic.

3.3. ANOVA analysis of global fleet emission factors

The pollutant emission factors for a global fleet, over the one-hour measurement period, have been analyzed by ANOVA statistical analysis to investigate impact of fleet composition on measured pollutant emissions (Table 1). The emission factors were analyzed with 6

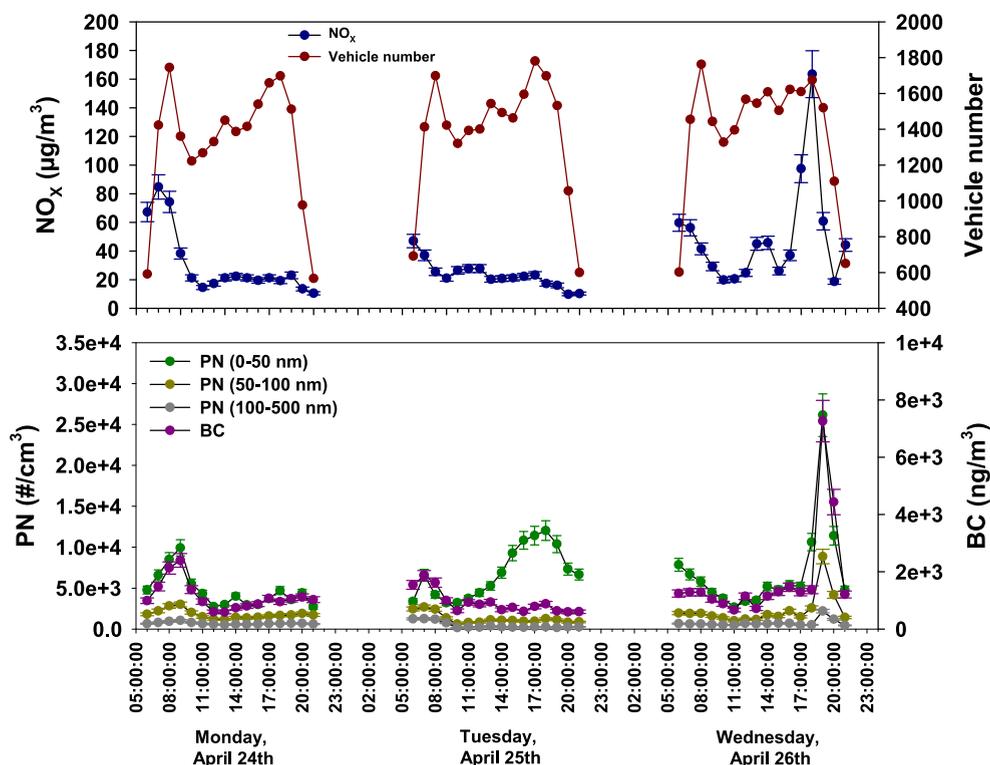


Fig. 6. Time profiles of NO_x concentration and number of vehicles and PN and BC concentrations on Monday, Tuesday and Wednesday.

Table 1

Results of the ANOVA analysis for the effect of the fleet composition on the emission factors.

Fleet composition	Pollutants	Unit	p-value	Groups having a significant impact	
				Negative impact	Positive impact
Number of HDVs	PN	#/km	0.6	–	–
	BC	ng/km	0.2	–	–
	Formaldehyde	µg/km	0.2	–	–
	Hexanal	µg/km	0.6	–	–
	Benzene	µg/km	0.6	–	–
	Toluene	µg/km	0.004*	20–30; 30–40	10–20
	Ethylbenzene	µg/km	0.04*	30–40	0–10; 10–20
	m + p-Xylene	µg/km	0.2	–	–
	o-Xylene	µg/km	0.1	–	–
	Nonane	µg/km	0.5	–	–
	Decane	µg/km	0.4	–	–
	Undecane	µg/km	0.7	–	–
Percentage of diesel PCs between pre-Euro to Euro 3 standard	PN	#/km	0.08**	15–20%	10–15%
	BC	ng/km	0.6	–	–
	Formaldehyde	µg/km	0.3	–	–
	Hexanal	µg/km	0.2	–	–
	Benzene	µg/km	0.6	–	–
	Toluene	µg/km	0.02*	10–15%	15–20%
	Ethylbenzene	µg/km	0.07**	10–15%	15–20%
	m + p-Xylene	µg/km	0.02*	10–15%	15–20%
	o-Xylene	µg/km	0.02*	10–15%	15–20%
	Nonane	µg/km	0.1	–	–
	Decane	µg/km	0.9	–	–
	Undecane	µg/km	0.7	–	–
Percentage of diesel PCs Euro 4 standard	PN	#/km	0.1	–	–
	BC	ng/km	0.001*	10–15%; 15–20%	20–25%; 25–30%
	Formaldehyde	µg/km	0*	20–25%; 25–30%	10–15%; 15–20%
	Hexanal	µg/km	0.7	–	–
	Benzene	µg/km	0.3	–	–
	Toluene	µg/km	0.1	–	–
	Ethylbenzene	µg/km	0.02*	15–20%	20–25%
	m + p-Xylene	µg/km	0.04*	15–20%	20–25%
	o-Xylene	µg/km	0.02*	15–20%	20–25%
	Nonane	µg/km	0.3	–	–
	Decane	µg/km	0.9	–	–
	Undecane	µg/km	0.6	–	–
Percentage of diesel PCs between Euro 5 to Euro 6 standard	PN	#/km	0.006*	30–35%	20–25%
	BC	ng/km	0.2	–	–
	Formaldehyde	µg/km	0.06**	15–20%	30–35%
	Hexanal	µg/km	0.3	–	–
	Benzene	µg/km	0.07**	15–20%	30–35%
	Toluene	µg/km	0.2	–	–
	Ethylbenzene	µg/km	0.2	–	–
	m + p-Xylene	µg/km	0.1	–	–
	o-Xylene	µg/km	0.06**	15–20%	30–35%
	Nonane	µg/km	0.2	–	–
	Decane	µg/km	0.6	–	–
	Undecane	µg/km	0.007*	15–20%	30–35%
Percentage of gasoline PCs between pre-Euro to Euro 3 standard	PN	#/km	0.5	–	–
	BC	ng/km	0.7	–	–
	Formaldehyde	µg/km	0.9	–	–
	Hexanal	µg/km	0.07	–	–
	Benzene	µg/km	0.4	–	–
	Toluene	µg/km	0.07**	5–10%	10–15%
	Ethylbenzene	µg/km	0.004*	5–10%	10–15%
	m + p-Xylene	µg/km	0.007*	5–10%	10–15%
	o-Xylene	µg/km	0.02*	5–10%	10–15%
	Nonane	µg/km	0.2	–	–
	Decane	µg/km	0.9	–	–
	Undecane	µg/km	0.7	–	–

(continued on next page)

Table 1 (continued)

Fleet composition	Pollutants	Unit	p-value	Groups having a significant impact	
				Negative impact	Positive impact
Percentage of gasoline PCs between Euro 4 to Euro 6 standard	PN	#/km	0.004*	5–10%	20–25%
	BC	ng/km	0*	5–10%; 10–15%	20–25%
	Formaldehyde	µg/km	0.5	–	–
	Hexanal	µg/km	0.6	–	–
	Benzene	µg/km	0.4	–	–
	Toluene	µg/km	0.3	–	–
	Ethylbenzene	µg/km	0.1	–	–
	m + p-Xylene	µg/km	0.1	–	–
	o-Xylene	µg/km	0.1	–	–
	Nonane	µg/km	0.3	–	–
	Decane	µg/km	0.5	–	–
	Undecane	µg/km	0.07**	5–10%; 10–15%	20–25%

– No results.

* Significant results.

** Results considered as significant.

categories: number of HDVs (0–43 with groups of every 10 HDVs), percentage of diesel PCs between pre-Euro to Euro 3 (5–25% with 5% interval), percentage of Euro 4 diesel PCs (10–30% with 5% interval), percentage of diesel PCs Euro 5 and Euro 6 (15–35% with 5% interval), percentage of gasoline PCs between pre-Euro and Euro 3 standard (5–15% with 5% interval) and percentage of gasoline PCs between Euro 4 and Euro 6 (5–25% with 5% interval). The groups of variables for passenger cars have been made according to the implementation of new after-treatment or engine technologies. For diesel vehicles, the diesel particle filter (DPF), which significantly reduces PN and BC emissions, is considered as variables. Thus, the first category includes the percentage of pre-Euro to Euro 3 diesel vehicles that are not equipped with DPF; the second category includes the percentage of Euro 4 diesel vehicles that are partially equipped with DPF; and the last category includes the percentage of Euro 5 and Euro 6 diesel vehicles that are all equipped with DPF. For gasoline vehicles, the first category therefore includes the percentage of gasoline vehicles from pre-Euro to Euro 3 standards, all of which have indirect injection engines; and the second category includes the percentage of gasoline vehicles from Euro 4 to Euro 6 standards, as the introduction of direct injection engines has begun on Euro 4 standard vehicles. Moreover, for ANOVA analysis, the fleet composition has been classed by groups (different gaps of vehicle number or percentage) to investigate their impact on emissions. Each group has to contain enough samples to be significant and not too large to have a good sensibility. Tuesday afternoon PN data have not been taken into account because of its strange behavior show in Section 3.3.

For a result of the ANOVA analysis to be significant, the p-value must be ≤ 0.05 , which is called a “significant result” in Table 1. However, to increase the power of the ANOVA analysis, it is possible to consider that a result with a p-value between 0.05 and 0.1 are significant, which is called “result considered as significant” in Table 1, but with a great uncertainty. This analysis should be read with a special attention because they might also indicate that the impacts of the analyzed group on emission could be significant but not clearly significant.

For BC, the groups of “20–25%” and “25–30%” Euro 4 diesel PCs and “20–25%” gasoline PCs between Euro 4 to Euro 6 have a significant positive impact on the emissions. This observation indicates that higher percentage of these two categories present in the fleet induces more BC emission. For the gasoline PCs between Euro 4 to Euro 6, the group “20–25%” has also a significant positive impact on the PN emissions. The positive impact of gasoline PCs between Euro 4 and Euro 6 on the PN and BC emissions can be explained by the introduction of direct injection technology on certain gasoline vehicles, which induces more PN and BC emissions than multipoint injection gasoline vehicles. These emissions could reach the level of some diesel vehicles without a particulate filter (Liang et al., 2013; Martinet et al., 2017).

The percentage of diesel and gasoline PCs between pre-Euro and Euro 3 has a significant positive impact on toluene, ethylbenzene and m + p- and o-xylene emission factors, more particular the groups “15–20%” and “10–15%” respectively. Comparing to the average emission factors (1.4×10^6 µg/km for toluene, 3.4×10^5 µg/km for ethylbenzene, 9×10^5 µg/km for m + p-xylene and 4.2×10^5 µg/km for o-xylene), the group “15–20%” of Pre-Euro to Euro 3 diesel induces 1.5, 1.4, 1.6 and 1.6 times higher emission respectively for toluene, ethylbenzene, m + p-xylene and o-xylene. The group “10–15%” of Pre-Euro to Euro 3 gasoline induces 1.2, 1.4, 1.3 and 1.3 times higher emission respectively for toluene, ethylbenzene, m + p-xylene and o-xylene. Moreover, the group “20–25%” of diesel Euro 4 PCs has also a positive impact on ethylbenzene and m + p- and o-xylene emission factors, 1.4, 1.4 and 1.5 times higher respectively comparing to the average emission factors. For the analyses on the number of HDVs, emission factors estimated in the weekend have not been taken into account because of the HDV driving ban. Table 1 showed that the impact of the number of HDVs on pollutant emission does not show a significant positive impact. This observation might be explained on one side by the small percentage of HDVs in the fleet (0 to 43 HDVs per hour); and on the other side by the low HDVs emission since 80% of these HDVs are recent vehicles (\geq Euro 4).

3.4. Emission factors per vehicle and comparison with other studies

In this section, the average emission factors calculated by Eq. (1) were used (# or mass/veh/km) in order to compare with other

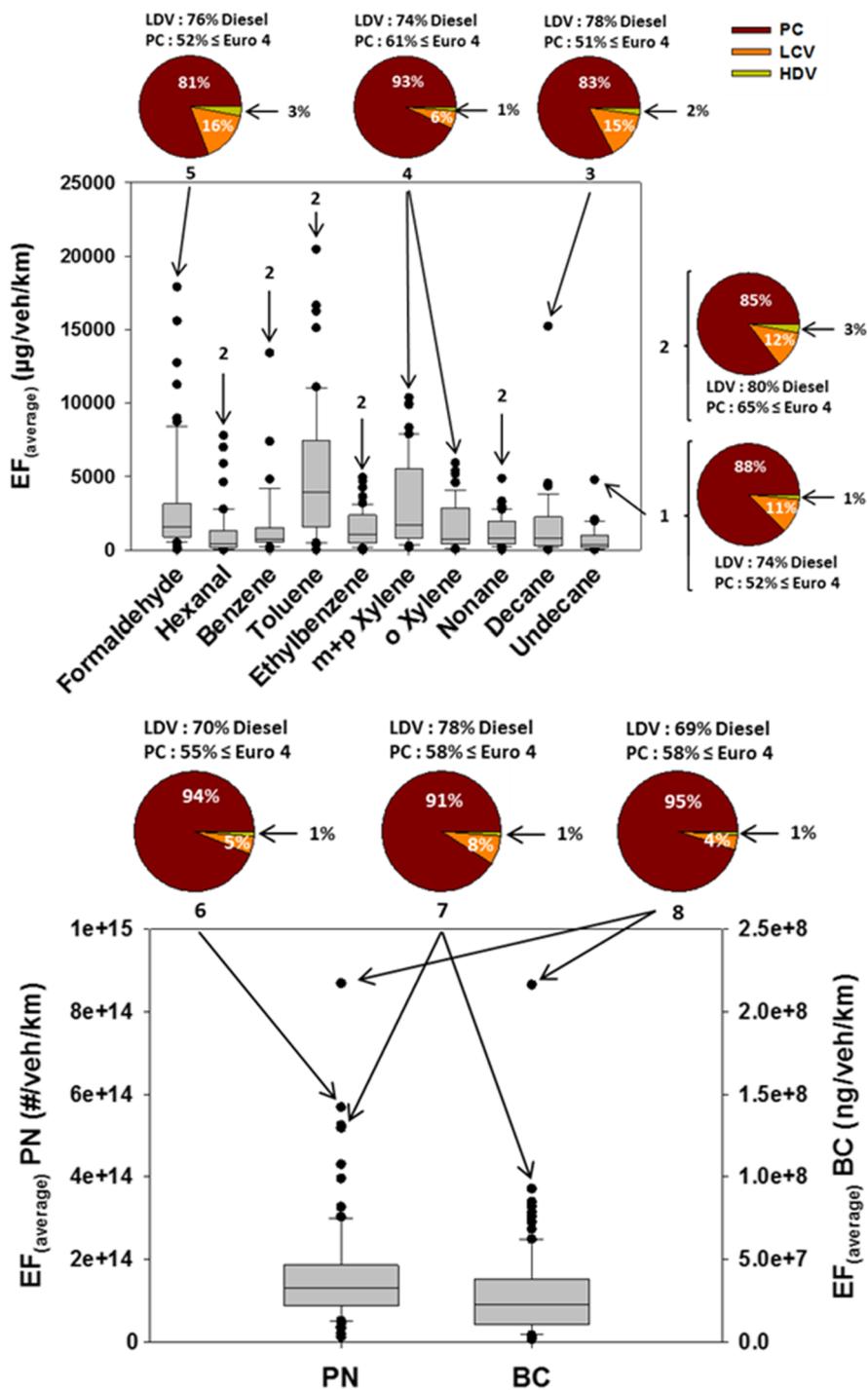


Fig. 7. Box-and-whisker plot of the average vehicle emission factors for PN, BC, carbonyl compounds, BTEX and alkanes. Fleet composition of 1: Monday 2:00–3:00 p.m.; 2: Sunday 6:00–7:00 a.m.; 3: Wednesday 11:00–12:00 a.m.; 4: Sunday 11:00–12:00 a.m.; 5: Monday 11:00–12:00 a.m.; 6: Monday 8:00–9:00 p.m.; 7: Sunday 8:00–9:00 a.m.; 8: Wednesday 8:00–9:00 p.m.

studies. Fig. 7 shows the box-and-whisker plot for these average emission factors per vehicle for carbonyl compounds, BTEX, alkanes, PN, and BC. In these plots, the boxes contain 50% of the emission factors around the median (black line in the box). The upper and lower halves of the boxes represent respectively the 75th and 25th percentiles and the whiskers represent the 90th and 10th percentiles. The emission factors that are above or below the whiskers are considered to be atypical values.

Fig. 7 shows the average emission factors per vehicle for PN and BC, which are between 1.2×10^{13} and 8.7×10^{14} #/km/veh and

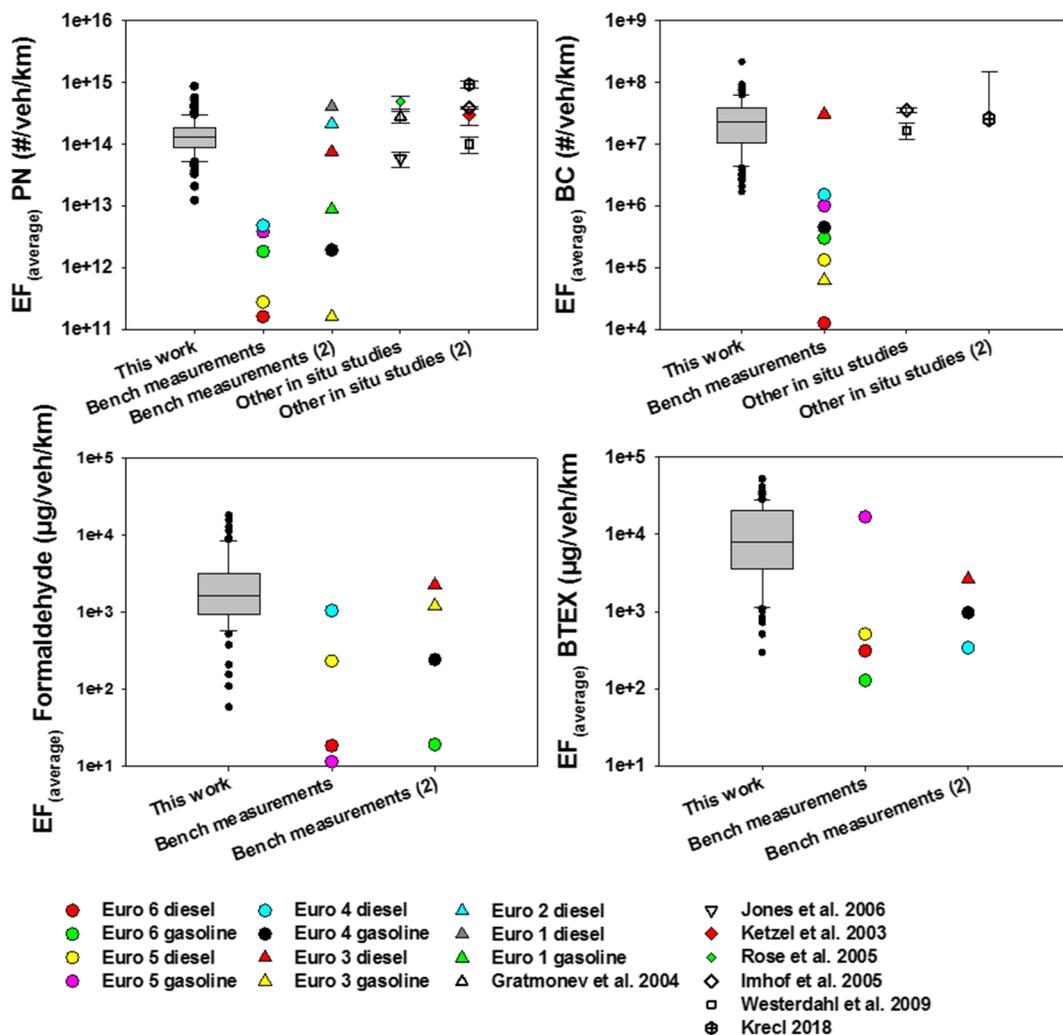


Fig. 8. Comparison of PN, BC, formaldehyde and BTEX emission factors per vehicle in this work with emission factors estimated by bench measurements (Rehn 2013; Louis et al., 2016; Martinet et al., 2017) or by other in-situ studies (Ketznel et al., 2003; Gratomnev et al., 2004; Rose et al., 2005; Imhof et al., 2005; Jones et al., 2006; Westerdahl et al., 2009; Krecl et al., 2018).

between 1.7×10^6 and 2.16×10^8 ng/km/veh, respectively. For both emission factors, the median is in the middle of the box, which indicates a symmetric distribution. Half the emission factors are between 9.1×10^{13} and 1.87×10^{14} #/km/veh for PN and between 1.1×10^7 and 3.8×10^7 ng/km/veh for BC. In addition, the boxes are comparatively short, suggesting that the PN emission factors have a high level of agreement between them, and the BC emission factors have also a high level of agreement between them. Fig. 7 shows also the average emission factors per vehicle for the measured VOCs and SVOCs. For all these compounds, the median is in the lower half of the box, which assumes an asymmetric distribution toward the low values. Their emission factors varied between 14 and 2.1×10^4 µg/veh/km.

For each compound, the atypical values are presented by black dots. Here, only the atypical values above the upper whisker limit are further analyzed with the corresponding fleet composition. The emission factors above the upper whisker for PN and BC are, respectively, 2.3–6.6 times higher and 2.7–9.6 times higher compared to the median. The highest emission factor for both corresponds to the same fleet composition with 69% of LDVs diesel and 58% of PCs \leq Euro 4 (composition 8 in Fig. 7) for the Wednesday between 8:00 p.m. and 9:00 p.m. The second highest emission factor for BC and the third highest for PN (composition 7 in Fig. 7) correspond to the Sunday between 8:00 a.m. and 9:00 a.m.

The emission factors for carbonyl compounds above the upper whisker are 5–11 times higher and 6–17 times higher than the median for formaldehyde and hexanal, respectively. For the three alkanes, the emission factors above the upper whisker are 3–18 times higher compared to their median. The BTEX emission factors above the upper whisker are 1.4–8 times higher compared to their median. The highest emission factor for hexanal, benzene, toluene, ethylbenzene and nonane correspond to the same fleet composition (composition 2 in Fig. 7) for the Sunday between 6:00 a.m. and 7:00 a.m. We remark that, in this time interval, the fleet composition composed relatively high percentage of LDVs diesel (80%), PCs \leq Euro 4 (65%) and HDVs (3%), which have been showed by the ANOVA analysis to have significant impacts on emission of these compounds. For m + p and o xylene compounds, the highest emission factor corresponds to the fleet composition of the Sunday between 11:00 a.m. and 12:00 a.m. (composition 4 in

Fig. 7), with relatively high percentage of PCs \leq Euro 4. For formaldehyde, the highest emission factor corresponds to the Monday between 11:00 a.m. and 12:00 a.m. (composition 5) with 3% of HDVs.

Fig. 8 shows the comparison of PN, BC, formaldehyde and BTEX emission factors estimated in this study and with those estimated during lab bench measurements with Artemis urban driving cycles that is not exactly the same driving condition but might represent the most similar driving condition (average speed from 8.7 to 31.8 km/h from congestion to fluid situations) comparing to our traffic site (hourly average speed between 16 and 34 km/h). The detail of bench measurement of Euro 1 to Euro 6 gasoline and diesel PCs were presented in our previous works (Rehn, 2013; Louis et al., 2016; Martinet et al., 2017). Moreover, the PN and BC emission factors estimated in this study were also compared with other in-situ studies with similar site characteristics (Ketzel et al., 2003; Gratmonev et al., 2004; Rose et al., 2005; Imhof et al., 2005; Jones et al. 2006; Westerdahl et al., 2009; Krecl et al., 2018).

The emission factors estimated by other in-situ studies are between 5.8×10^{13} and 9.3×10^{14} #/veh/km for PN; and between 1.7×10^7 and 3.5×10^7 ng/veh/km for BC, which are in the same range as those estimated in this paper (Fig. 8), even fleet compositions are different in different countries and different years.

The PCs emission factors in this work are also compared to the bench measurement (previous work). The bench emission factors of PN and BC obtained from diesel vehicles without particle filter and gasoline vehicles with direct injection system are in the same range as the box plot. The impact of gasoline with direct injection system and Euro 4 diesel vehicles on PN and BC emission has been observed with ANOVA analysis. However, for the pre-Euro to Euro 3 old diesel vehicles, even they induce a high BC and PN emission with individual vehicle measurement, their impact on BC and PN emission could be considered either as significant but with a great uncertainty or not significant because they are omnipresent in each one-hour period with very closed percentage in the fleet (10–20%). These in-situ emission factors are also comparable with old HDVs without particle filter (PN emission factors between 5×10^{13} and 2×10^{14} #/veh/km) (Giechaskiel et al., 2012), contrary to recent HDVs equipped with DPF that induce lower PN emissions (between 5×10^{10} and 2×10^{12} #/veh/km) (Giechaskiel et al., 2018). For formaldehyde, the emission factors of Euro 3 and Euro 4 diesel and gasoline vehicles are in the same range as the emission factors estimated in this work. More recent Euro 5 and Euro 6 PCs seem to contribute less emission. For BTEX, the Euro 5 gasoline DI vehicle is located above the box that might indicate its high impact on BTEX emission. However, we want to attract special attention here, because only one Euro 5 gasoline DI vehicle data from bench has been provided (Louis et al., 2016). More vehicles for each category should be tested on the chassis bench under similar experimental conditions to confirm this observation.

4. Conclusion

This paper aimed to estimate the emission factors of PN, BC, and several aliphatic, aromatic and carbonyl compounds with a real fleet present on the measurement site. The fleet composition characterized during the measurement campaign was comparable with the 2017 French fleet. A total of 140,076 vehicles were counted for seven days with about 21,000 to 23,000 vehicles in the weekdays and 10,000 to 18,000 in the weekend.

The highest emissions were measured during the morning between 7:00 a.m. and 10:00 a.m. and during the end of afternoon between 5:00 p.m. and 8:00 p.m. for the weekdays, and between 10:00 a.m. and 1:00 p.m. and between 5:00 p.m. and 8:00 p.m. for the Saturday. These periods correspond to traffic peaks. The higher emission measured in the morning can be explained by vehicle cold start, which emits large amounts of pollutants such as BC, PN, BTEX, and carbonyl compounds. PN and BC emission factors show a good correlation, except the Tuesday afternoon between 2:00 p.m. and 8:00 p.m. The emission factor values for BC decreased while those for PN increased sharply. This could imply that the particle number emissions, especially the PN size between [0 and 50] nm, measured during this afternoon were not due to road traffic.

The impacts of the fleet composition on the pollutant emissions were studied by ANOVA analyses. These analyses show the positive impact of the higher percentage of gasoline PCs between Euro 4 and Euro 6 and Euro 4 diesel PCs on the BC emissions and the higher percentage of diesel and gasoline PCs between pre-Euro and Euro 3 on toluene, ethylbenzene, m + p-xylene and o-xylene emissions. The higher percentage of Euro 4 diesel PCs induces higher emission of ethylbenzene, m + p-xylene and o-xylene. And the number of HDVs present in the weekdays does not induce a significant impact on measured pollutant emissions since 80% of HDVs in the fleet is recent HDVs (\geq Euro 4).

The emission factors per vehicle were studied with boxplots and compared to other emission factors calculated in previous in-situ studies and with bench measurement. PN and BC emission factors assume a symmetric distribution contrary to the BTEX, alkanes and carbonyl compounds emission factors. For PN and BC, the highest emission factors correspond to the same fleet composition with high percentage of diesel PCs. The highest emission factors for hexanal, benzene, toluene, ethylbenzene and nonane correspond to a fleet composition with high percentage of diesel PCs (85%) and old PCs (65%), and for m + p and o Xylene, they correspond to high percentage of old PCs (61%). These results have also been observed by the ANOVA analyses for toluene, ethylbenzene, m + p-xylene and o-xylene. The PN and BC emission factors estimated by other in-situ studies are in the same range as the emission factors estimated in this work. For the chassis bench comparison, the PN and BC emission factors estimated in this work are in the same range as those measured for diesels PCs without particle filter, gasoline PCs with direct injection system and old HDVs. For BTEX, bench emission factors are in the same range as in-situ emission factors estimated in this work.

Acknowledgements

This work was supported by the CEGEP (1666C0001) project, which is funded by the French Environment and Energy Management Agency (ADEME).

Appendix A

See Figs. A1, A2 and Table A1–A3.

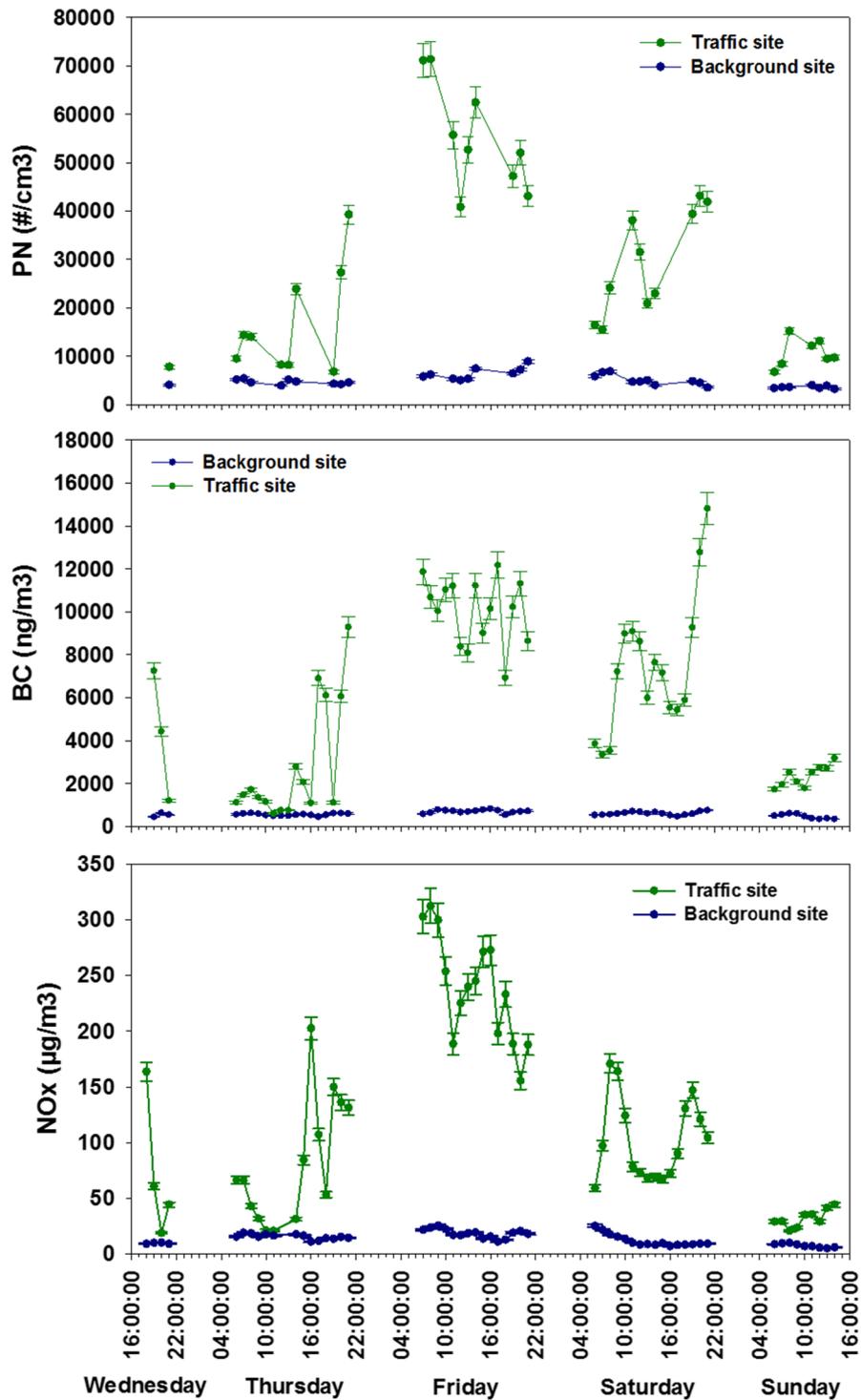


Fig. A1. Time profiles of PN, BC and NO_x concentrations on the traffic site and the background site From Wednesday to Sunday.

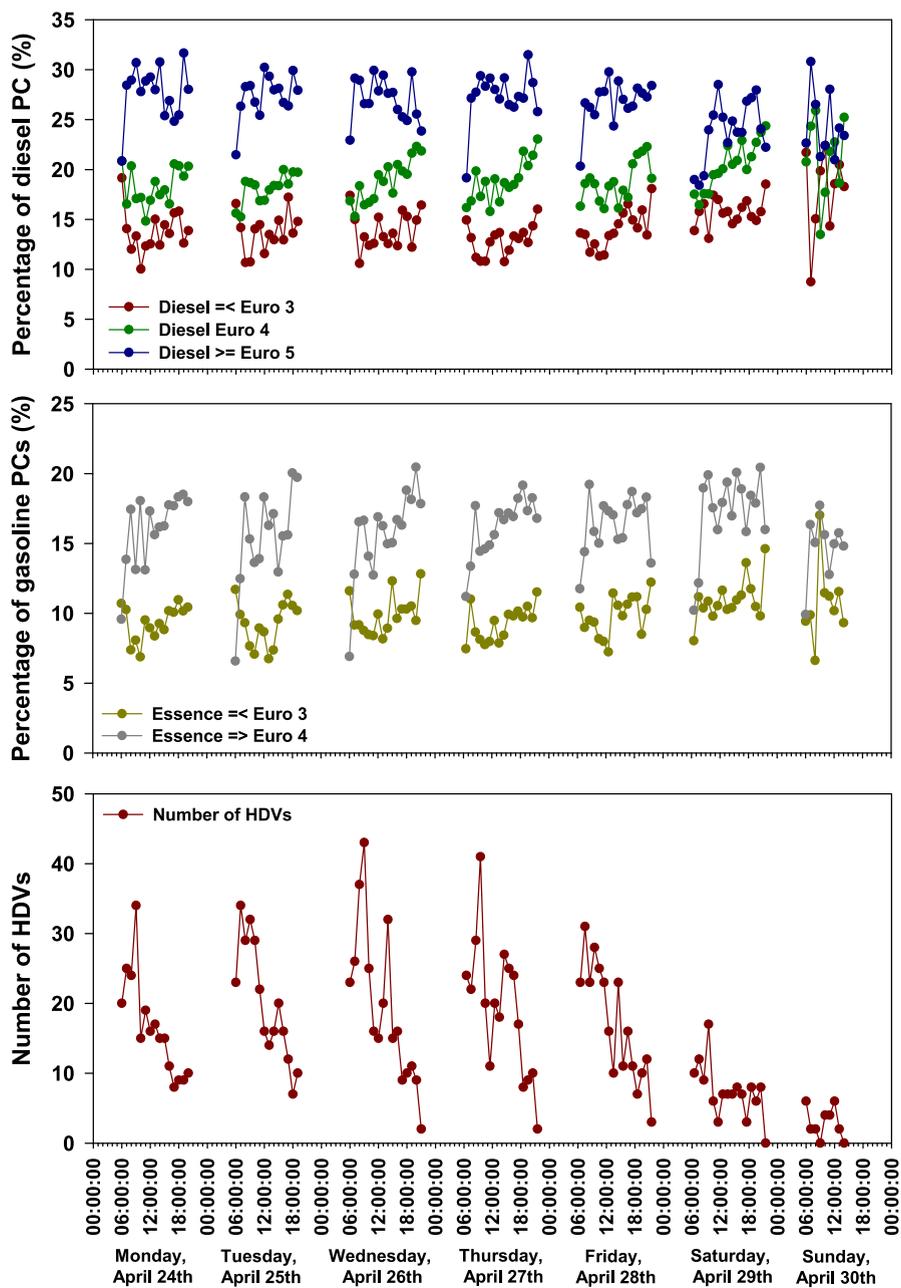


Fig. A2. Time profiles of the percentages of the diesel PCs, the percentages of gasoline PCs and the numbers of HDVs on the measurement week.

Table A1

Analytical methods for BTEX, carbonyl compounds, and PAH samples in the gas and particulate phases with quantification limit and uncertainty.

Compound family	Cartridge type	Analytical technique	Standardized method	Quantification limit	Analytical uncertainty
BTEX					
Benzene	Tenax	ATD-GC/MS*	ISO 16000–6	10 ng/cartridge	20%
Toluene				1 ng/cartridge	
Ethylbenzene					
m-p,Xylene					
o-Xylene					
Alkanes					
Nonane	Tenax	ATD-GC/MS*	ISO 16000–6	1 ng/cartridge	20%
Decane					
Undecane					
Cyclopropane, Ethyl					
Cyclohexane, Ethyl					
Carbonyl					
Formaldehyde	DNPH	HPLC/UV [#]	ISO 16000–3	30 ng/cartridge	20%
Acetaldehyde					
Acetone					
Acrolein					
Propionaldehyde					
Crotonaldehyde					
Methacrolein					
Butanal					
Benzaldehyde					
Pentanal					
Hexanal					

* ATD-GC-MS: Automated Thermal Desorption – Gas Chromatograph – Mass Spectrometer.

[#] HPCL/UV: High Performance Liquid Chromatography/Ultra Violet Detector.**Table A2**

Vehicle emission factors per hour for PN, BC, carbonyl compounds, BTEX and alkanes.

Pollutants		Emission factors (Min-Max)	Mean	Standard deviation
PN (#/veh/km)	Weekdays	1.2×10^{13} – 8.7×10^{14}	2×10^{14}	1.9×10^{14}
	Weekend	6.1×10^{13} – 5.3×10^{14}	1.7×10^{14}	1×10^{14}
BC (ng/veh/km)	Weekdays	1.7×10^6 – 2.2×10^8	2.4×10^7	2.8×10^7
	Weekend	9×10^6 – 9.3×10^7	4.7×10^7	2.1×10^7
Formaldehyde (mg/veh/km)	Weekdays	1.6×10^{-1} –18	3	3.9
	Weekend	6×10^{-2} –13	3.2	3.1
Hexanal (mg/veh/km)	Weekdays	1.4×10^{-2} –2.8	7.1×10^{-1}	8.8×10^{-1}
	Weekend	2.1×10^{-1} –7.8	1.8	1.8
Benzene (mg/veh/km)	Weekdays	9.1×10^{-2} –7.4	1.2	1.5
	Weekend	2.3×10^{-1} –13.4	2.4	3.5
Toluene (mg/veh/km)	Weekdays	3.4×10^{-2} –11	3	2.6
	Weekend	3.3–20.5	9.6	4.7
Ethylbenzene (mg/veh/km)	Weekdays	1.3×10^{-2} –2.6	8.5×10^{-1}	7×10^{-1}
	Weekend	7×10^{-1} –5	2.6	1.2
m + p Xylene (mg/veh/km)	Weekdays	1.8×10^{-1} –6.8	1.6	1.5
	Weekend	1.4–10.4	6.4	2.8
o Xylene (mg/veh/km)	Weekdays	7×10^{-2} –2.9	7.1×10^{-1}	6.4×10^{-1}
	Weekend	6.1×10^{-1} –5.9	3.2	1.6
Nonane (mg/veh/km)	Weekdays	3.5×10^{-2} –3.3	8×10^{-1}	7.5×10^{-1}
	Weekend	3.3×10^{-1} –4.9	2	1.1
Decane (mg/veh/km)	Weekdays	1.5×10^{-1} –15.2	1.5	3.1
	Weekend	4.1×10^{-2} –4.5	1.7	1.3
Undecane (mg/veh/km)	Weekdays	5.5×10^{-2} –4.8	5.3×10^{-1}	8.09×10^{-1}
	Weekend	3.5×10^{-2} –2.1	1.1	7×10^{-1}

Table A3
Example of COPERT input data for calculating NO_x emission factors.

Category	Fuel	Segment	Euro standard	Stock [n]	Mean activity [km/year]	Urban speed [km/h]
Passenger Cars	Gasoline	Small	PRE ECE	0	0	25
Passenger Cars	Gasoline	Small	Euro 1	1	4077	25
Passenger Cars	Gasoline	Small	Euro 2	2	5055	25
Passenger Cars	Gasoline	Small	Euro 3	1	6820	25
Passenger Cars	Gasoline	Small	Euro 4	2	8508	25
Passenger Cars	Gasoline	Small	Euro 5	1	11,007	25
Passenger Cars	Gasoline	Small	Euro 6	5	13,309	25
Passenger Cars	Gasoline	Medium	PRE ECE	0	0	25
Passenger Cars	Gasoline	Medium	Euro 1	2	5398	25
Passenger Cars	Gasoline	Medium	Euro 2	4	6672	25
Passenger Cars	Gasoline	Medium	Euro 3	5	8995	25
Passenger Cars	Gasoline	Medium	Euro 4	0	11,319	25
Passenger Cars	Gasoline	Medium	Euro 5	2	14,555	25
Passenger Cars	Gasoline	Medium	Euro 6	3	17,592	25
Passenger Cars	Gasoline	Large-SUV-Executive	PRE ECE	0	0	25
Passenger Cars	Gasoline	Large-SUV-Executive	Euro 1	0	5610	25
Passenger Cars	Gasoline	Large-SUV-Executive	Euro 2	0	7069	25
Passenger Cars	Gasoline	Large-SUV-Executive	Euro 3	0	9523	25
Passenger Cars	Gasoline	Large-SUV-Executive	Euro 4	1	12,000	25
Passenger Cars	Gasoline	Large-SUV-Executive	Euro 5	0	15,454	25
Passenger Cars	Gasoline	Large-SUV-Executive	Euro 6	3	18,619	25
Passenger Cars	Diesel	Mini	Euro 4	10	15,608	25
Passenger Cars	Diesel	Mini	Euro 5	5	17,572	25
Passenger Cars	Diesel	Mini	Euro 6	5	19	25
Passenger Cars	Diesel	Small	Euro 1	1	10,957	25
Passenger Cars	Diesel	Small	Euro 2	3	12,152	25
Passenger Cars	Diesel	Small	Euro 3	7	13,560	25
Passenger Cars	Diesel	Small	Euro 4	16	15,236	25
Passenger Cars	Diesel	Small	Euro 5	12	17,146	25
Passenger Cars	Diesel	Small	Euro 6	17	18,122	25
Passenger Cars	Diesel	Large-SUV-Executive	Euro 1	0	11,376	25
Passenger Cars	Diesel	Large-SUV-Executive	Euro 2	1	12,489	25
Passenger Cars	Diesel	Large-SUV-Executive	Euro 3	2	14,286	25
Passenger Cars	Diesel	Large-SUV-Executive	Euro 4	2	15,807	25
Passenger Cars	Diesel	Large-SUV-Executive	Euro 5	2	17,770	25
Passenger Cars	Diesel	Large-SUV-Executive	Euro 6	2	18,788	25
Light Commercial Vehicles	Diesel	N1-II	Conventional	0	2313	25
Light Commercial Vehicles	Diesel	N1-II	Euro 1	0	5012	25
Light Commercial Vehicles	Diesel	N1-II	Euro 2	0	7490	25
Light Commercial Vehicles	Diesel	N1-II	Euro 3	2	10,979	25
Light Commercial Vehicles	Diesel	N1-II	Euro 4	9	15,840	25
Light Commercial Vehicles	Diesel	N1-II	Euro 5	13	21,249	25
Light Commercial Vehicles	Diesel	N1-II	Euro 6	23	25,636	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid < = 7,5 t	Euro I	0	846	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid < = 7,5 t	Euro II	0	4475	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid < = 7,5 t	Euro III	0	11,207	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid < = 7,5 t	Euro IV	0	19,789	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid < = 7,5 t	Euro V	0	32,935	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid < = 7,5 t	Euro VI	0	50,409	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 7,5–12 t	Euro I	0	903	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 7,5–12 t	Euro II	0	4404	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 7,5–12 t	Euro III	0	11,191	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 7,5–12 t	Euro IV	1	19,733	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 7,5–12 t	Euro V	1	33,797	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 7,5–12 t	Euro VI	0	53,438	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 14–20 t	Euro I	0	952	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 14–20 t	Euro II	0	4598	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 14–20 t	Euro III	0	11,195	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 14–20 t	Euro IV	0	19,669	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 14–20 t	Euro V	0	33,306	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 14–20 t	Euro VI	1	50,609	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 20–26 t	Euro I	0	983	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 20–26 t	Euro II	0	4800	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 20–26 t	Euro III	0	11,470	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 20–26 t	Euro IV	0	19,795	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 20–26 t	Euro V	0	33,762	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 20–26 t	Euro VI	0	50,832	25

(continued on next page)

Table A3 (continued)

Category	Fuel	Segment	Euro standard	Stock [n]	Mean activity [km/year]	Urban speed [km/h]
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 26–28 t	Conventional	0	0	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 26–28 t	Euro I	0	995	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 26–28 t	Euro II	0	4999	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 26–28 t	Euro III	0	11,940	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 26–28 t	Euro IV	0	19,884	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 26–28 t	Euro V	2	34,084	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 26–28 t	Euro VI	0	50,947	25
Buses	Diesel	Urban Buses Midi < = 15 t	Euro IV	0	27,800	25
Buses	Diesel	Urban Buses Midi < = 15 t	Euro V	0	38,074	25
Buses	Diesel	Urban Buses Midi < = 15 t	Euro VI	0	45,582	25
Buses	Diesel	Urban Buses Articulated > 18 t	Conventional	0	2000	25
Buses	Diesel	Urban Buses Articulated > 18 t	Euro I	0	5823	25
Buses	Diesel	Urban Buses Articulated > 18 t	Euro II	0	11,357	25
Buses	Diesel	Urban Buses Articulated > 18 t	Euro III	0	19,120	25
Buses	Diesel	Urban Buses Articulated > 18 t	Euro IV	1	27,763	25
Buses	Diesel	Urban Buses Articulated > 18 t	Euro V	1	37,992	25
Buses	Diesel	Urban Buses Articulated > 18 t	Euro VI	0	45,633	25

References

- Alves, C.A., Lopes, D.J., Calvo, A.I., Evtugina, M., Rocha, S., Nunes, T., 2015. Emissions from light-duty diesel and gasoline in-use vehicles measured on chassis dynamometer test cycles. *Aerosol. Air. Qual. Res.* 15, 99–116.
- Andre, M., Roche, A.L., Bourcier, L., 2014. Statistiques de parcs et trafic pour le calcul des émissions de polluants des transports routiers en France. Final report (in French), IFSTTAR LTE, available at: < <http://www.ademe.fr/statistiques-parcstrafic-calcul-emissions-polluants-transport-routiers-france> > .
- Amato, F., Nava, S., Lucarelli, F., Querol, X., Alastuey, A., Baldasano, J.M., Pandolfi, M., 2010. A comprehensive assessment of PM emissions from paved roads: real-world emission factors and intense street cleaning trials. *Sci. Total Environ.* 408, 4309–4318.
- Bukowiecki, N., Lienemann, P., Hill, M., Furger, M., Richard, A., Amato, F., Prévôt, A.S.H., Baltensperger, U., Buchmann, B., Gehrig, R., 2010. PM10 emission factors for non-exhaust particles generated by road traffic in an urban street canyon and along a freeway in Switzerland. *Atmos. Environ.* 44, 2330–2340.
- Caplain, I., Cazier, F., Nouali, H., Mercier, A., Déchaux, J.-C., Nollet, V., Joumard, R., André, J.-M., Vidon, R., 2006. Emissions of unregulated pollutants from European gasoline and diesel passenger cars. *Atmos. Environ.* 40, 5954–5966.
- Fanelli, R.M., Di Nocera, A., 2018. Customer perceptions of Japanese foods in Italy. *J. Ethnic Foods.*
- Giechaskiel, B., Mamakos, A., Andersson, J., Dilara, P., Martini, G., Schindler, W., Bergmann, A., 2012. Measurement of automotive nonvolatile particle number emissions within the European legislative framework: a review. *Aerosol. Sci. Technol.* 46, 719–749.
- Giechaskiel, B., 2018. Solid particle number emission factors of euro VI heavy-duty vehicles on the road and in the laboratory. *Int J Environ Res Public Health* 15.
- Gietl, J.K., Lawrence, R., Thorpe, A.J., Harrison, R.M., 2010. Identification of brake wear particles and derivation of a quantitative tracer for brake dust at a major road. *Atmos. Environ.* 44, 141–146.
- Gratmonev, G., Ristovski, Z.D., Brown, R.J., Madl, P., 2004. New methods of determination of average particle emission factors for two groups of vehicles on a busy road. *Atmos. Environ.*
- Hudda, N., Fruin, S., Delfino, R.J., Sioutas, C., 2013. Efficient determination of vehicle emission factors by fuel use category using on-road measurements: downward trends on Los Angeles freight corridor I-710. *Atmos. Chem. Phys.* 13, 347–357.
- Imhof, D., Weingartner, E., Ordóñez, C., Gehrig, R., Hill, M., Buchmann, B., Baltensperger, U., 2005. Real-world emission factors of fine and ultrafine aerosol particles for different traffic situations in Switzerland. *Environ. Sci. Technol.* 39, 8341–8350.
- Ježek, I., Drinovec, L., Ferrero, L., Carriero, M., Močnik, G., 2015. Determination of car on-road black carbon and particle number emission factors and comparison between mobile and stationary measurements. *Atmos. Meas. Tech.* 8, 43–55.
- Johansson, C., Norman, M., Burman, L., 2009. Road traffic emission factors for heavy metals. *Atmosph. Environ. Urban Air Qual.* 43, 4681–4688.
- Jones, A.M., Harrison, R.M., 2006. Estimation of the emission factors of particle number and mass fractions from traffic at a site where mean vehicle speeds vary over short distances. *Atmos. Environ.* 40, 7125–7137.
- Joumard, R., André, M., Vidon, R., Tassel, P., Pruvost, C., 2000. Influence of driving cycles on unit emissions from passenger cars. *Atmos. Environ.* 34, 4621–4628.
- Kam, W., Liacos, J.W., Schauer, J.J., Delfino, R.J., Sioutas, C., 2012. On-road emission factors of PM pollutants for light-duty vehicles (LDVs) based on urban street driving conditions. *Atmos. Environ.* 61, 378–386.
- Karjalainen, P., Pirjola, L., Heikkilä, J., Lähde, T., Tzamkiozis, T., Ntziachristos, L., Keskinen, J., Rönkkö, T., 2014. Exhaust particles of modern gasoline vehicles: a laboratory and an on-road study. *Atmos. Environ.* 97, 262–270.
- Ketzel, M., Wählin, P., Berkowicz, R., Palmgren, F., 2003. Particle and trace gas emission factors under urban driving conditions in Copenhagen based on street and roof-level observations. *Atmos. Environ.* 37, 2735–2749.
- Krecl, P., Johansson, C., Targino, A.C., Ström, J., Burman, L., 2017. Trends in black carbon and size-resolved particle number concentrations and vehicle emission factors under real-world conditions. *Atmos. Environ.* 165, 155–168.
- Krecl, P., Targino, A.C., Landi, T.P., Ketzel, M., 2018. Determination of black carbon, PM 2.5, particle number and NOx emission factors from roadside measurements and their implications for emission inventory development. *Atmos. Environ.*
- Lewtas, J., 2007. Air pollution combustion emissions: characterization of causative agents and mechanisms associated with cancer, reproductive, and cardiovascular effects. *Mutat. Res./Rev. Mutat. Res. Sour. Potent. Hazards Mutagens Complex Environ. Matrices – Part II* 636, 95–133.
- Liang, B., Ge, Y., Tan, J., Han, X., Gao, L., Hao, L., Ye, W., Dai, P., 2013. Comparison of PM emissions from a gasoline direct injected (GDI) vehicle and a port fuel injected (PFI) vehicle measured by electrical low pressure impactor (ELPI) with two fuels: gasoline and M15 methanol gasoline. *J. Aerosol Sci.* 57, 22–31.
- Lohmeyer, A., Lambrecht, U., Peranic, Z., Boesinger, R., 2002. Validation of vehicle road PM10 emission models by the Karlsruhe PM10 validation data set and the results of the regular German state monitoring stations. In: *Proceedings of the Eighth International Conference on Harmonisation within atmospheric Dispersion Modelling for Regulatory Purposes*. Sofia, Bulgaria.
- Louis, C., Liu, Y., Tassel, P., Perret, P., Chaumont, A., André, M., 2016. PAH, BTEX, carbonyl compound, black-carbon, NO2 and ultrafine particle dynamometer bench emissions for Euro 4 and Euro 5 diesel and gasoline passenger cars. *Atmos. Environ.* 141, 80–95.
- Martinet, S., Liu, Y., Louis, C., Tassel, P., Perret, P., Chaumont, A., André, M., 2017. Euro 6 unregulated pollutant characterization and statistical analysis of after-treatment device and driving-condition impact on recent passenger-car emissions. *Environ. Sci. Technol.* 51, 5847–5855.
- Ning, Z., Wubulihairan, M., Yang, F., 2012. PM, NOx and butane emissions from on-road vehicle fleets in Hong Kong and their implications on emission control policy.

- Atmos. Environ. 61, 265–274.
- Ntziachristos, L., Papadimitriou, G., Ligterink, N., Hausberger, S., 2016. Implications of diesel emissions control failures to emission factors and road transport NOx evolution. *Atmos. Environ.* 141, 542–551.
- O'Driscoll, R., ApSimon, H.M., Oxley, T., Molden, N., Stettler, M.E., Thiyagarajah, A., 2016. A portable emissions measurement system (PEMS) study of NOx and primary NO2 emissions from Euro 6 diesel passenger cars and comparison with COPERT emission factors. *Atmos. Environ.* 145, 81–91.
- Pant, P., Harrison, R.M., 2013. Estimation of the contribution of road traffic emissions to particulate matter concentrations from field measurements: a review. *Atmos. Environ.* 77, 78–97.
- Rehn, L.P., 2013. Caractérisation et impacts des émissions de polluants du transport routier : Apports méthodologiques et cas d'études en Rhône Alpes. (phdthesis). Université de Grenoble.
- Rexeis, M., 2013. Update of Emission Factors for EURO 5 and EURO 6 vehicles for the HBEFA Version 3.2. Report No. I-31/2013/ Rex EM-I 2011/20/679 from 06.12.2013.
- Rose, D., Wehner, B., Ketzler, M., Engler, C., Voigtländer, J., Tuch, T., Wiedensohler, A., 2005. Atmospheric number size distributions of soot particles and estimation of emission factors. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* 5, 10125–10154.
- Sluder, C.S., West, B.H., 2000. Catalyzed diesel particulate filter performance in a light-duty vehicle. SAE Technical Paper.
- Sydbom, A., Blomberg, A., Parnia, S., Stenfors, N., Sandström, T., Dahlén, S.-E., 2001. Health effects of diesel exhaust emissions. *Eur. Respir. J.* 17, 733–746.
- Wang, X., Westerdahl, D., Chen, L.C., Wu, Y., Hao, J., Pan, X., Guo, X., Zhang, K.M., 2009. Evaluating the air quality impacts of the 2008 Beijing Olympic Games: on-road emission factors and black carbon profiles. *Atmos. Environ.* 43, 4535–4543.
- Westerdahl, D., Wang, X., Pan, X., Zhang, K.M., 2009. Characterization of on-road vehicle emission factors and microenvironmental air quality in Beijing, China. *Atmos. Environ.* 43, 697–705.
- Westerholm, R., Christensen, A., Rosén, A., 1996. Regulated and unregulated exhaust emissions from two three-way catalyst equipped gasoline fuelled vehicles. *Atmosph. Environ.* 30, 3529–3536.
- Wildt, A.R., Ahtola, O.T., 1978. *Analysis of Covariance*. Sage Publications. View, Newbury Park, CA.
- Yli-Tuomi, T., Aarnio, P., Pirjola, L., Mäkelä, T., Hillamo, R., Jantunen, M., 2005. Emissions of fine particles, NOx, and CO from on-road vehicles in Finland. *Atmos. Environ.* 39, 6696–6706.
- Yang, L., Franco, V., Mock, P., Kolke, R., Zhang, S., Wu, Y., German, J., 2015. Experimental assessment of NOx emissions from 73 Euro 6 diesel passenger cars. *Environ. Sci. Technol.* 49, 14409–14415.

2.1.4. Analyses complémentaires

2.1.4.1. Sources d'émission des BTEX

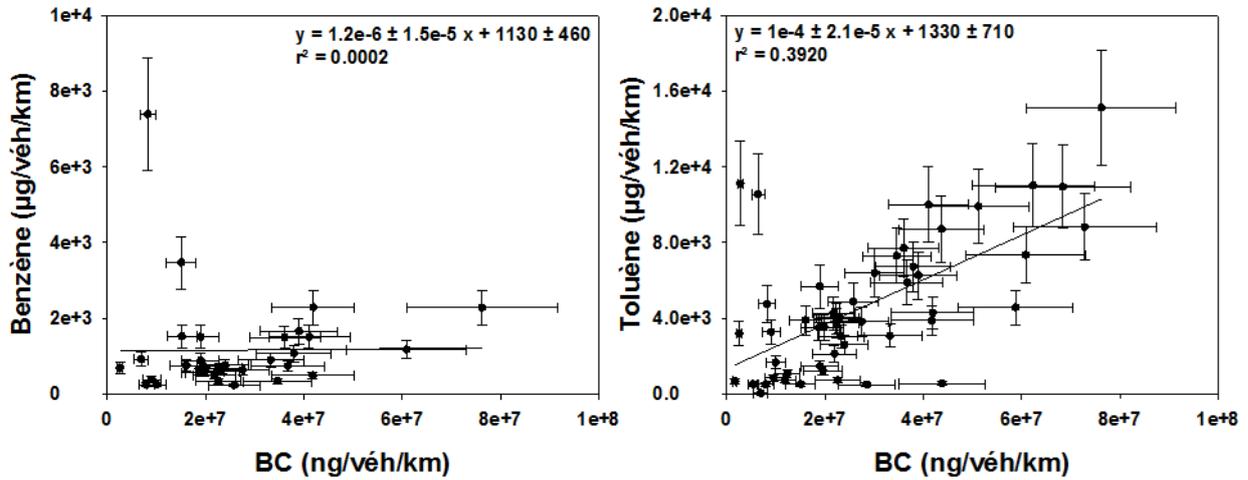


Figure 33. Corrélations entre les facteurs d'émission du BC, du benzène et du toluène estimés sur le site de trafic.

À partir des facteurs d'émission estimés, des corrélations sont étudiées entre différents COV étudiés (le benzène et le toluène) et le BC, qui peut être également considéré comme un traceur des émissions du trafic routier (Reche et al., 2011 ; Pant et al., 2013) (Figure 33). De très faibles corrélations sont observées entre le BC et le benzène ($R^2=0,0002$). Ce qui n'est pas le cas du toluène, où une meilleure corrélation est observée ($R^2=0,39$). De plus, la Figure 34 montre que les facteurs d'émissions du toluène sont très bien corrélés avec la somme des BTEX ($R^2=0,84$), contrairement au benzène qui rapporte une très faible corrélation ($R^2=0,19$). Kerchich and Kerbachi (2012) montrent que si les coefficients de corrélation entre le BTEX total et les différents composés (benzène et toluène) sont élevés alors les composés proviennent de la même source d'émission. Donc, la différence de corrélation observée pour les deux composés indique que le toluène et le benzène ne proviennent pas de la même source d'émission. Les émissions de toluène mesurées proviennent principalement du trafic routier ce qui n'est pas le cas pour le benzène qui est principalement émis par d'autres sources présentes sur le site. Pour l'éthylbenzène, le m+p-xylène et le o-xylène, les coefficients de Pearson obtenus avec la somme des BTEX sont respectivement $R^2=0,70$, $R^2=0,94$ et $R^2=0,92$, ce qui indique que, comme le toluène, leur source principale d'émission est le trafic routier.

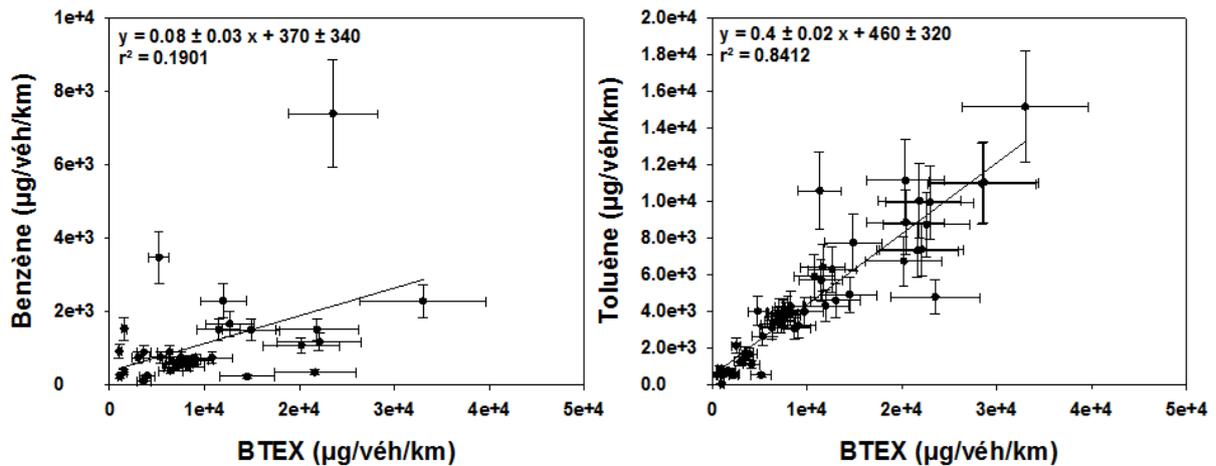


Figure 34. Corrélations entre la somme des facteurs d'émission des BTEX et les facteurs d'émission du benzène et du toluène.

2.1.4.2. Impact des points d'échantillonnage sur les PN

Les distributions en taille des PN sont également étudiées à deux hauteurs différentes de prélèvement (2 mètres et 4 mètres) simultanément avec le FMPS et le SMPS afin de caractériser l'impact des points d'échantillonnage sur les mesures de PN à différentes tailles, et éventuellement leur transformation en très courte distance.

Les PN observées à 2 mètres sont des particules ultrafines avec des diamètres centrés principalement sur 10 et 30 nm (Figure 35). 90 % des particules mesurées sont inférieures à 100 nm. Cette distribution est similaire à celle des PN mesurées directement à l'échappement au laboratoire sur le banc à rouleau (Rehn 2013 ; Pant et al., 2013 ; Louis et al., 2016 ; Martinet et al., 2017). Ceci pourrait indiquer que les PN mesurées à cette hauteur sont principalement dues aux émissions du trafic routier. Les PN mesurées à 4 mètres montrent une distribution différente en taille (Figure 36) par rapport à celles mesurées à 2 mètres. Les PN observées sont centrées principalement sur 30, 50 et 70 nm, avec 25 % des PN supérieures à 100 nm. Cette observation révèle que les hauteurs de prélèvements induisent un impact significatif sur les mesures des PN.

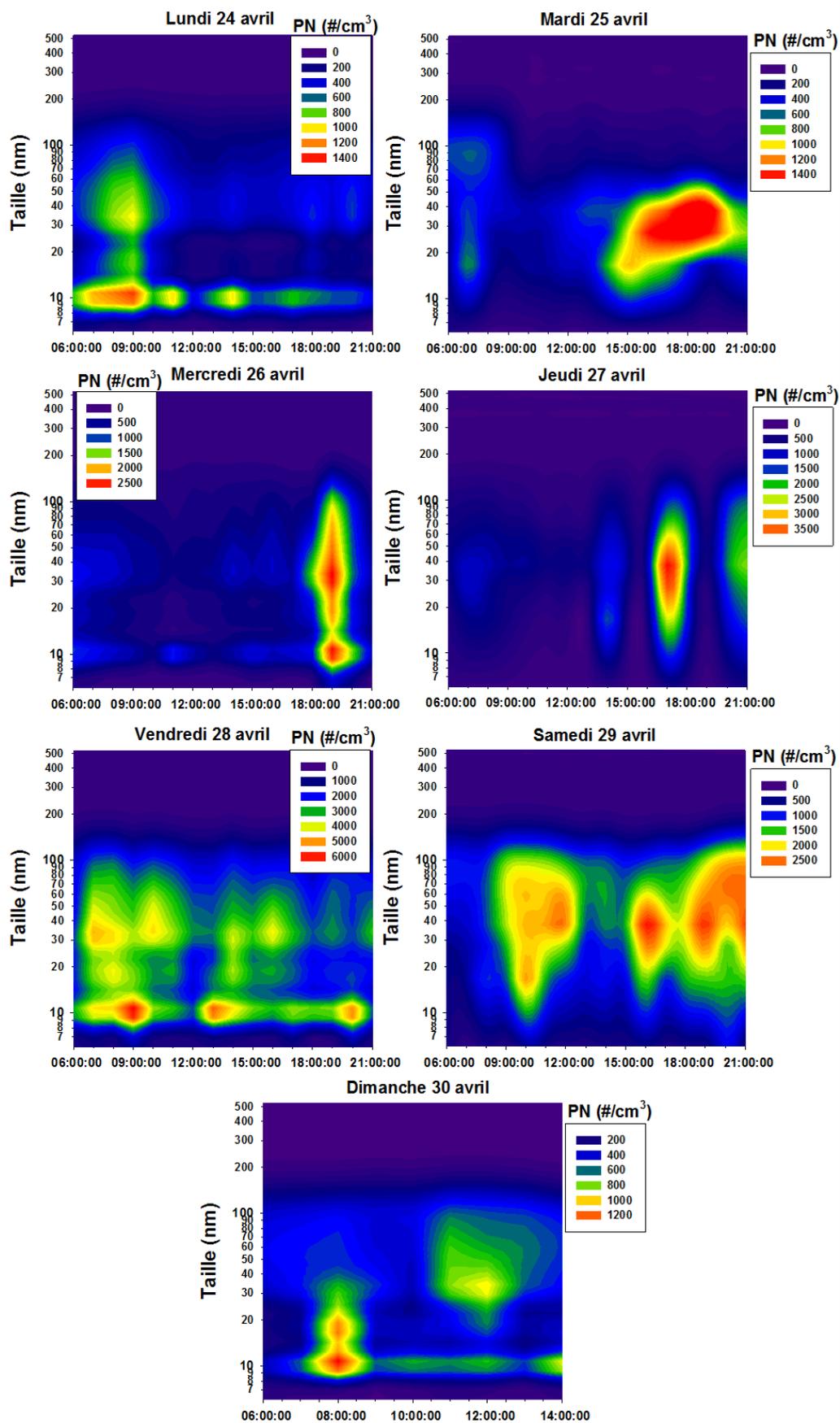


Figure 35. Distribution 3D des concentrations de particules en nombre mesurées à 2 mètres pour les 7 jours de mesure sur le site de trafic à Nantes.

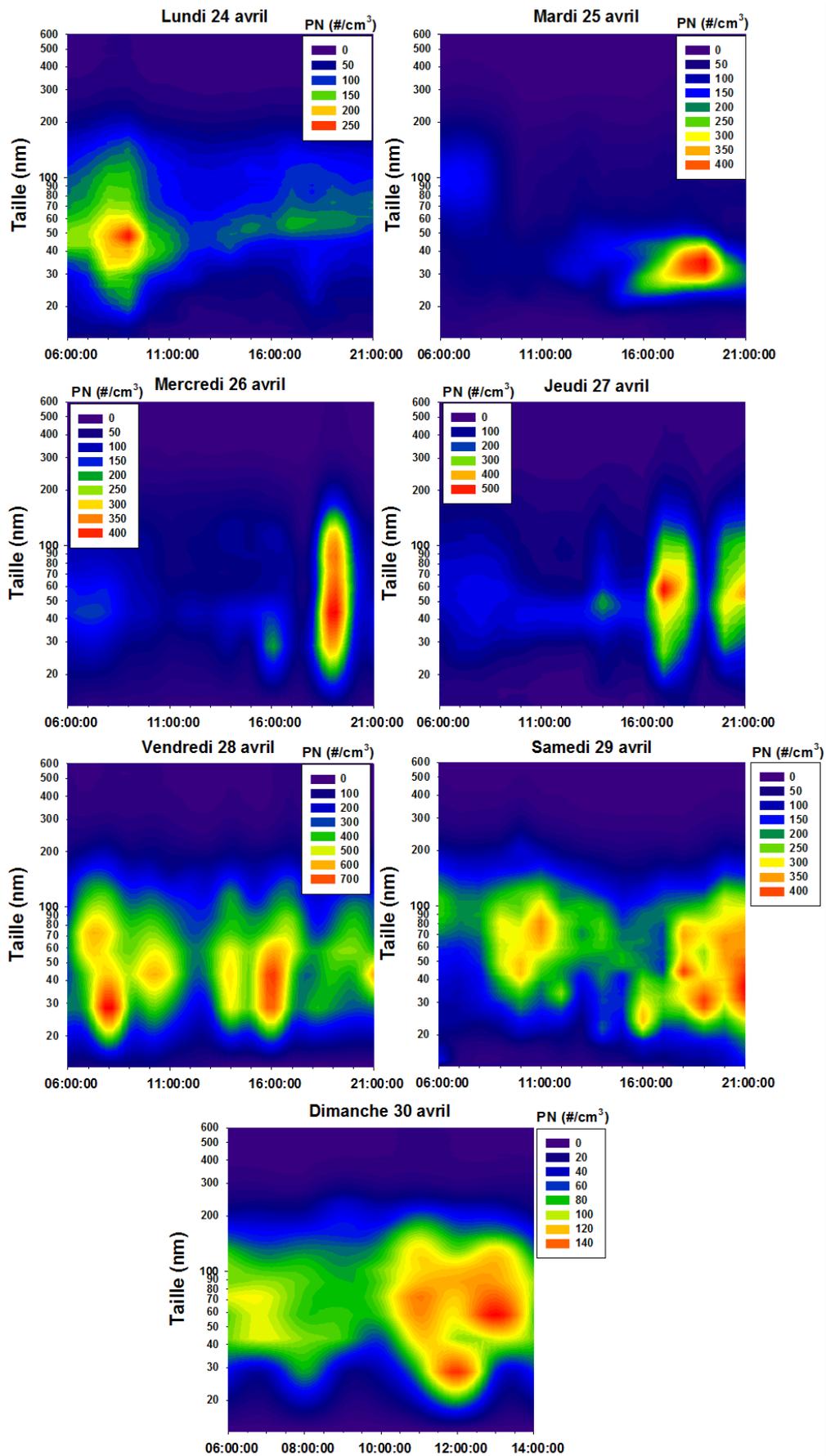


Figure 36. Distribution 3D des concentrations de particules en nombre mesurées à 4 mètres pour les 7 jours de mesure sur le site de trafic à Nantes.

Afin d'étudier en détail l'impact des hauteurs sur la mesure des PN, les diamètres des PN sont classés en 4 groupes : [10-30] nm, [30-50] nm, [50-100] nm, [100-500] nm. La Figure 37 montre une bonne corrélation entre les PN mesurées à 2 et 4 mètres pour le groupe [100-500] nm, avec un coefficient de linéarité égale à $1 \pm 0,03$ (points gris). Cependant, plus les tailles des PN sont petites, plus elles sont observées à proximité de la source d'émission. Les PN de [10-30] nm mesurées à 4 mètres représentent seulement 18 % de celles mesurées à 2 mètres. Ces informations nous indiquent que la distance entre la source des émissions de particules et le point de prélèvement joue un rôle très important même pour une courte distance de 2 m. De ce fait, l'échantillonnage des PN à 2 m est plus adapté pour les mesures des PN dans notre cas d'étude et les PN mesurées à 4 m ne sont pas prises en compte pour l'estimation des facteurs d'émission. La différence des PN de [10-30] nm, [30-50] nm et [50-100] nm mesurées à différentes hauteurs pourrait être expliquée par des phénomènes de coagulation et de condensation des particules. Ces phénomènes sont favorisés par la turbulence atmosphérique et le temps de résidence plus long (jusqu'au point de prélèvement à 4 m). Une étude théorique de ces phénomènes (nombre de Reynolds, coefficient de coagulation...) sera menée dans une future étude afin de supporter cette hypothèse. Le phénomène de condensation pourrait également être favorisé par la présence de COVI qui induit un grossissement des particules. Une seconde campagne a donc été réalisée en bord de route à Lyon afin d'étudier l'émission des COVI.

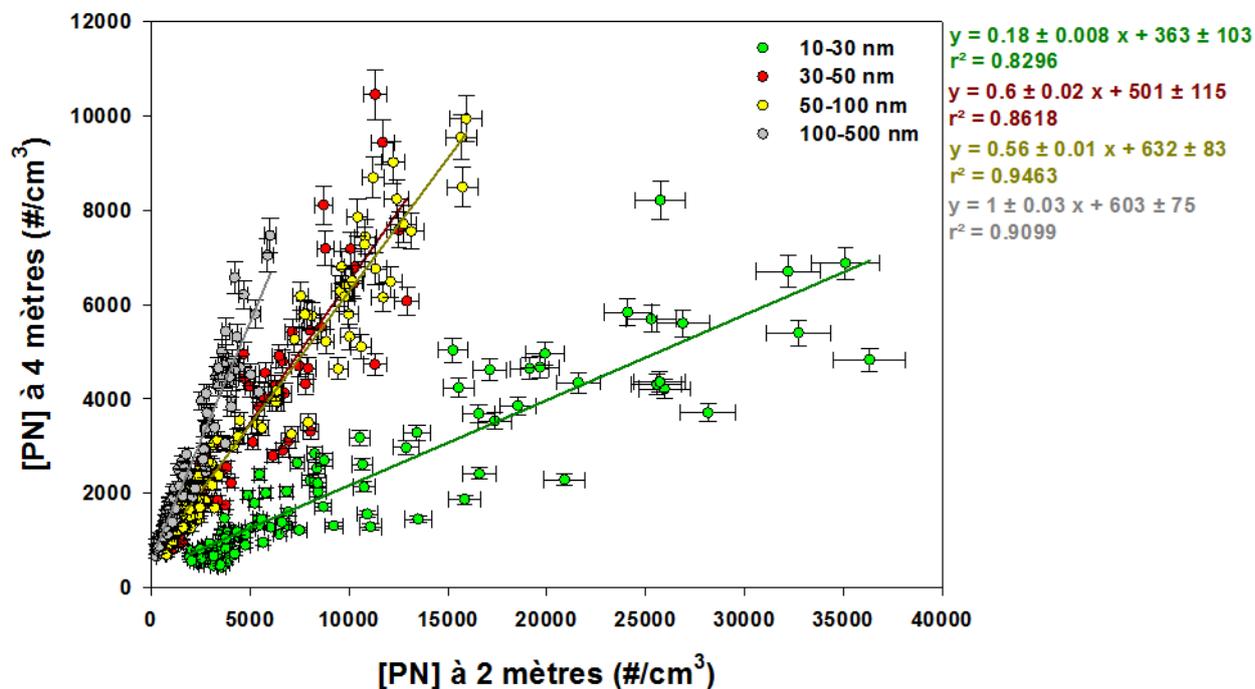


Figure 37. Corrélations entre les concentrations de particules en nombre mesurées à 2 mètres et à 4 mètres pour différentes gammes de taille ([10-30] nm, [30-50] nm, [50-100] nm, [100-500] nm) sur le site de trafic à Nantes.

2.2. Facteurs d'émission des COVI en bord de route à Lyon

Pour cette étude complémentaire sur un second site ouvert en bord de route, une série d'alcane linéaires, de C6 à C11 pour les COV et de C12 à C22 pour les COVI, a été mesurée en plus des polluants étudiés dans la précédente campagne à Nantes.

2.2.1. Facteurs d'émissions des polluants étudiés

La même méthode a été appliquée pour l'estimation des facteurs d'émission des différents polluants mesurés. Cependant, les facteurs d'émission de NO_x par véhicule (utilisés dans l'équation (1)) ont été estimés par heure avec COPERT 5 en fonction du parc et des conditions de conduite (Chapitre 3), et varient entre 9×10^5 et $1,4 \times 10^6$ µg/véh/km. Une comparaison des facteurs d'émission estimés par COPERT 4 et COPERT 5 est présentée dans le chapitre 6. Les facteurs d'émission estimés pour les différents polluants étudiés sont donnés dans le Tableau 14. Pour chaque polluant, les FE sont présentés avec leur intervalle minimum et maximum ainsi que leur valeur moyenne. Ils varient de 2 à 300 fois en fonction de l'heure de mesure et des parcs en circulation présents.

Tableau 14. Facteurs d'émission estimés pour les PN, le BC, les BTEX et les alcanes à Lyon pour chaque heure de mesure.

Polluants	Facteurs d'émission (Min-Max)	Facteur d'émission moyen
Phase particulaire		
PN (#/véh/km)	$(1,9 - 8,5) \times 10^{14}$	$(4,0 \pm 2,5) \times 10^{14}$
BC (ng/véh/km)	$(0,35 - 1,0) \times 10^8$	$(6,8 \pm 2,2) \times 10^7$
BTEX		
Benzène (µg/véh/km)	$(1,6 - 4,8) \times 10^3$	$(2,2 \pm 1,4) \times 10^3$
Toluène (µg/véh/km)	$(0,31 - 7,2) \times 10^3$	$(2,3 \pm 3,3) \times 10^3$
Éthylbenzène (µg/véh/km)	$(0,26 - 2,5) \times 10^3$	$(0,97 \pm 1,0) \times 10^3$
m+p-Xylène (µg/véh/km)	$(0,90 - 7,1) \times 10^3$	$(3 \pm 3,6) \times 10^3$
o-Xylène (µg/véh/km)	460 – 555	522 ± 54

COV Alcanes (de C6 à C11)		
Hexane (µg/véh/km)	(1,2 – 2,0)×10 ³	(1,6 ± 0,57)×10 ³
Heptane (µg/véh/km)	< LQ	--
Octane (µg/véh/km)	< LQ	--
Nonane (µg/véh/km)	3,2×10 ³	--
Décane (µg/véh/km)	5,7×10 ³	--
Undécane (µg/véh/km)	< LQ	--
COVI Alcanes (de C12 à C22)		
Dodécane (µg/véh/km)	(1,1 – 2,3)×10 ³	(1,7 ± 0,85)×10 ³
Tridécane (µg/véh/km)	(0,04 – 6,6)×10 ⁴	(1,8 ± 3,2)×10 ⁴
Tétradécane (µg/véh/km)	(0,005 – 1,5)×10 ⁵	(3,8 ± 6,4)×10 ⁴
Pentadécane (µg/véh/km)	(0,02 – 6,2)×10 ⁴	(2,1 ± 3,0)×10 ⁴
Hexadécane (µg/véh/km)	(0,016 – 2,7)×10 ⁴	(6,5 ± 10)×10 ³
Heptadécane (µg/véh/km)	(0,015 – 1,6)×10 ⁴	(4,0 ± 6,1)×10 ³
Octadécane (µg/véh/km)	(0,12 – 9,2)×10 ³	(2,8 ± 3,4)×10 ³
Nonadécane (µg/véh/km)	(0,49 – 6,9)×10 ³	(3,2 ± 2,6)×10 ³
Eiscosane (µg/véh/km)	(0,04 – 1,0)×10 ⁴	(4,7 ± 4,2)×10 ³
Heneicosane (µg/véh/km)	(0,17 – 3,1)×10 ⁴	(1,1 ± 1,0)×10 ⁴
Docosane (µg/véh/km)	(0,22 – 5,6)×10 ⁴	(2,1 ± 2,0)×10 ⁴

-- : pas de mesure

< LQ : inférieure à la limite de quantification

Pour les alcanes de C6 à C11, une grande partie des prélèvements sont inférieurs à la limite de quantification. Ceci pourrait être la conséquence de notre méthode de prélèvement (durée et débit de prélèvement) - optimisée pour le prélèvement des COVI - qui n'est pas complètement adaptée pour ces composés volatils. Pour les alcanes de C23 à C30, la méthode analytique ne permet pas de les quantifier en raison de manque de standards à hautes masses moléculaires.

Cette campagne a permis d'estimer des facteurs d'émissions pour des COVI (alcanes de C12 à C22) qui n'ont pas pu être étudiés à Nantes et qui sont peu quantifiés à l'état gazeux lors de mesures d'émission (Robinson et al., 2010 ; Lu et al., 2018). Ces facteurs d'émissions pourraient représenter des émissions caractéristiques des véhicules Diesel (Gentner et al., 2012 ; Ots et al., 2016), qui sont présents en plus grand nombre sur le site de mesure, notamment pour les C13, C14 et C15 (Figure 38). La Figure 38 rapporte également des facteurs élevés pour les C21 et C22, qui sont des précurseurs importants pour la formation des aérosols organiques secondaires (AOS) (Gentner et al., 2012).

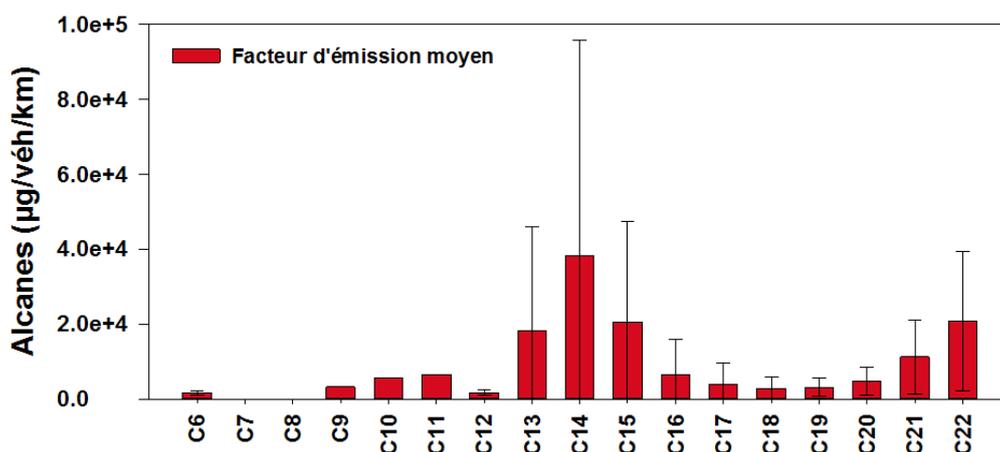


Figure 38. Distribution des facteurs d'émission moyens estimés à Lyon pour les alcanes de C6 à C22.

3. Conclusion

À Nantes, les facteurs d'émission ont été estimés par véhicule et pour un parc global pour les PN, le BC, les BTEX, les alcanes de C9 à C11, le formaldéhyde et l'hexanal pour une grande diversité de conditions de conduite et de compositions de parc.

Pour les facteurs d'émission du parc global, les valeurs les plus élevées ont été mesurées le matin entre 7h et 10h et en fin d'après-midi entre 17h et 20h pour les jours de semaine, et entre 10h et 13h et entre 17h et 20h le samedi. Ces périodes correspondent aux pics de trafic. Les émissions plus élevées mesurées le matin peuvent s'expliquer par le démarrage à froid du véhicule, qui conduit à des surémissions des polluants tels que les PN, le BC, les BTEX et les composés carbonylés. Les mesures sur un site ouvert montrent l'influence des sources d'émission autres que le transport routier notamment pour le benzène et les alcanes de C9 à C11. Le toluène quant à lui apparaît comme un traceur des émissions du trafic routier en zone urbaine. Des comparaisons entre les

facteurs d'émission estimés sur ces deux sites ouverts et sur le site confiné sont discutées dans le Chapitre 6 et également avec des facteurs d'émission mesurés sur banc à rouleau et lors d'autres études in-situ.

Les impacts de la composition du parc sur les émissions polluantes ont été étudiés par les analyses ANOVA. Ces analyses indiquent l'impact positif du pourcentage plus élevé des VP essence de normes Euro 4 à Euro 6 et des VP Diesel Euro 4 sur les émissions de BC et le pourcentage plus élevé des VP Diesel et essence de normes pré-Euro à Euro 3 sur les émissions de toluène, d'éthylbenzène, de m+p-xylène et d'o-xylène. Le pourcentage plus élevé des VP Diesel Euro 4 induit des émissions plus élevées d'éthylbenzène, de m+p-xylène et d'o-xylène. Et, les nombres de PL et de bus présents en semaine n'ont pas d'impact significatif sur les émissions polluantes mesurées puisque 80% des PL et des bus du parc sont des véhicules récents (\geq Euro 4).

L'importance de la distance entre la source des émissions de particules et le point de prélèvement a été montrée avec la comparaison entre deux hauteurs de prélèvement (2 mètres et 4 mètres). L'échantillonnage le plus proche de la source d'émission est le plus adapté pour les mesures de PN car à 4 mètres les particules mesurées ont subies des phénomènes de coagulation et de condensation qui augmentent leur taille et diminuent leur nombre, ce qui entraîne une sous-estimation des PN et par conséquent des mesures moins représentatives des émissions réelles.

Chapitre 5 : Estimation des facteurs d'émission – Site confiné en tunnel

1. Introduction

Une campagne de mesure a été effectuée dans un site confiné qui permet de minimiser l'influence d'autres sources d'émission. Cette campagne a été réalisée dans le tunnel de la Défense à Nanterre avec l'aide du CETU (Centre d'études des tunnels) de Bron, du CEREMA (Centre d'études et d'expertise sur les risques, l'environnement, la mobilité et l'aménagement) d'Île-de-France, du LEE de l'IFSTTAR de Nantes et de la DiRIF (Direction régionale des routes Île-de-France) de Nanterre. Elle a permis d'estimer des facteurs d'émission pour les particules en nombre, le carbone suie, les BTEX, certains composés carbonylés et les alcanes de C6 à C22 pour un parc roulant réel caractérisé dans le Chapitre 3, dans le but de les comparer avec ceux estimés pour ces mêmes polluants sur les deux sites ouverts.

2. Source d'émission dans le tunnel

Dans un site confiné, les principales émissions de polluants sont dues au trafic routier présent. Les variations des concentrations des polluants mesurées sont étudiées en fonction des concentrations de BC et de NO_x afin de confirmer que le transport est bien la principale source d'émission dans le tunnel. Les concentrations mesurées varient entre $2,2 \times 10^3$ et $4,6 \times 10^4$ ng/m³ pour le BC et entre 0 et $4,4 \times 10^3$ µg/m³ pour les NO_x. Elles montrent un profil d'évolution similaire en fonction du temps (Figure 39). Pour les PN, les concentrations de particules en nombre ont été mesurées avec un FMPS et un ELPI. Les concentrations varient entre $1,5 \times 10^4$ et $3,8 \times 10^5$ #/cm³ pour le FMPS et entre $6,5 \times 10^3$ et $1,9 \times 10^5$ #/cm³ pour l'ELPI. Ce dernier permet la mesure de particules pour des tailles supérieures à 1 µm (jusqu'à 10 µm) qui ne sont pas mesurées par le FMPS. Cependant, il est moins sensible pour les petites particules qui ont un diamètre inférieur à 100 nm, et induit une sous quantification des PN puisque les particules inférieures à 100 nm représentent 90 % des PN mesurées (Figure 39). Pour cette raison, seules les données du FMPS sont utilisées pour l'estimation des facteurs d'émission des PN.

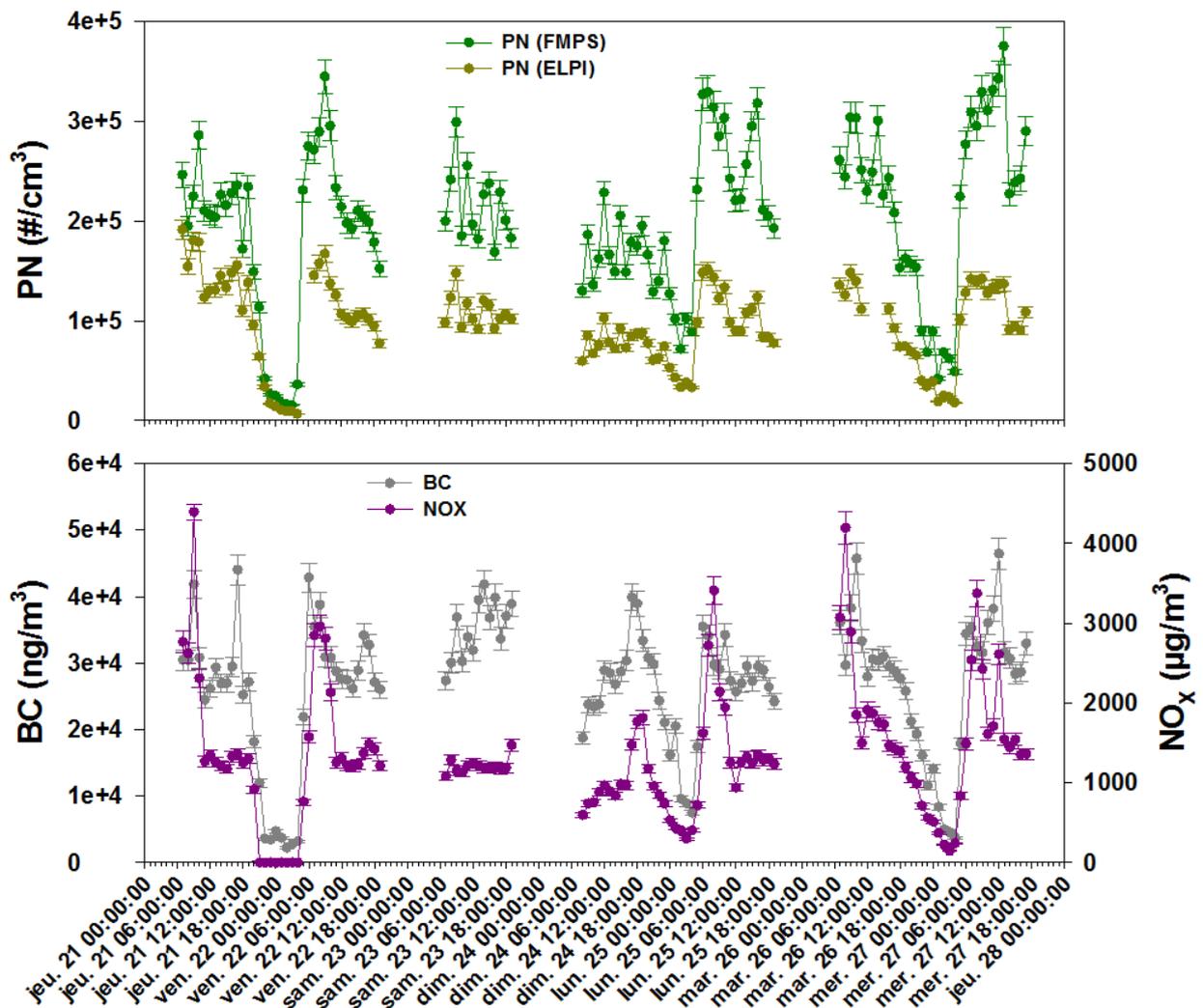


Figure 39. Profils de concentrations des particules en nombre, du carbone suie et des NO_x sur la semaine de mesure dans le tunnel.

Les concentrations mesurées pour la somme des composés carbonylés (formaldéhyde, acétaldéhyde, propionaldéhyde, 2-butanol) varient entre 2,5 et 14,5 µg/m³. Pour la somme des BTEX et des alcanes de C6 à C11, les concentrations sont comprises respectivement entre 5 et 110 µg/m³ et entre 1 et 40 µg/m³. Pour les alcanes de C12 à C22, les concentrations mesurées varient de 3,4 à 41 µg/m³ (Figure 40). Ces composés montrent un profil d'émission similaire entre eux et également par rapport aux NO_x.

Les concentrations mesurées lors de la nuit de fermeture du tunnel, entre le 21 et le 22 juin de 22h à 4h, servent de concentrations de fond (pas de circulation pendant cette période). Elles sont comprises entre $1,6 \times 10^4$ et $3,6 \times 10^4$ #/cm³ pour les PN, $2,2 \times 10^3$ et $4,7 \times 10^3$ ng/m³ pour le BC. Pour les NO_x, elles sont en dessous de la limite de quantification (10 µg/m³). Une valeur moyenne de ces concentrations de fond (PN à $2,3 \times 10^4$ #/cm³, BC à $3,4 \times 10^3$ ng/m³ et NO_x à 10 µg/m³) a été utilisée par la suite pour estimer les facteurs d'émission.

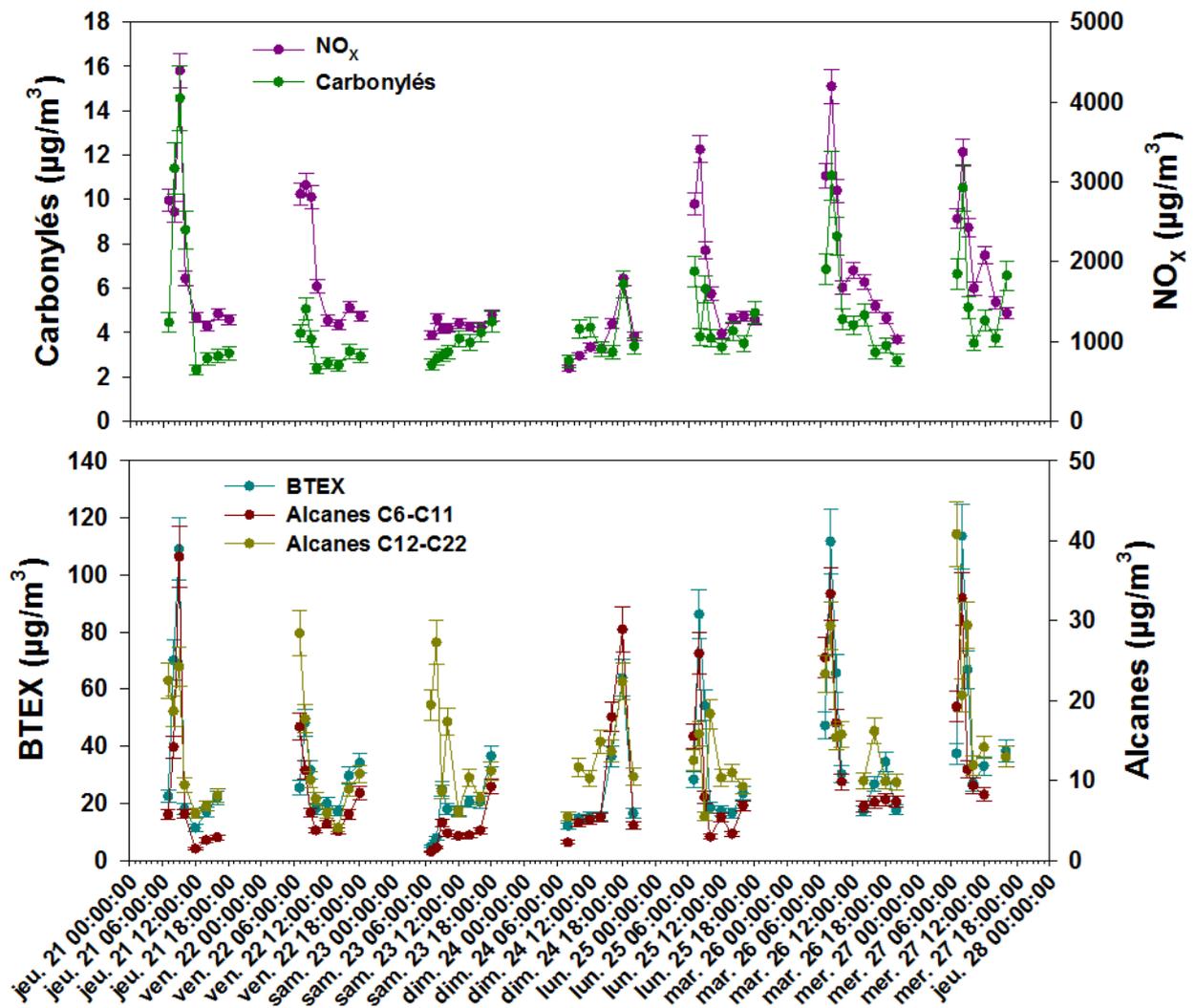


Figure 40. Profils de concentrations des BTEX, des alcanes, des carbonylés et des NO_x en fonction de l'heure et du jour de mesure dans le tunnel.

2.1. Corrélations entre les PN, les PM et le BC

Dans l'atmosphère, les particules subissent des phénomènes de transformation tels que les phénomènes physicochimiques (la condensation, la coagulation et la nucléation) ainsi que la réactivité photochimique. Cependant comme le tunnel est un site confiné, la réactivité photochimique, qui s'effectue en présence de rayons UV solaires, ne peut pas avoir lieu. Afin d'étudier les phénomènes physicochimique, les corrélations entre les concentrations de BC/PM totale et de BC/PN avec différentes gammes de taille mesurées avec le FMPS ([6-30] nm, [30-60] nm, [60-100] nm, [100-200] nm, [200-300] nm) et l'ELPI ([300-600] nm, [600-1000] nm) ont été réalisées.

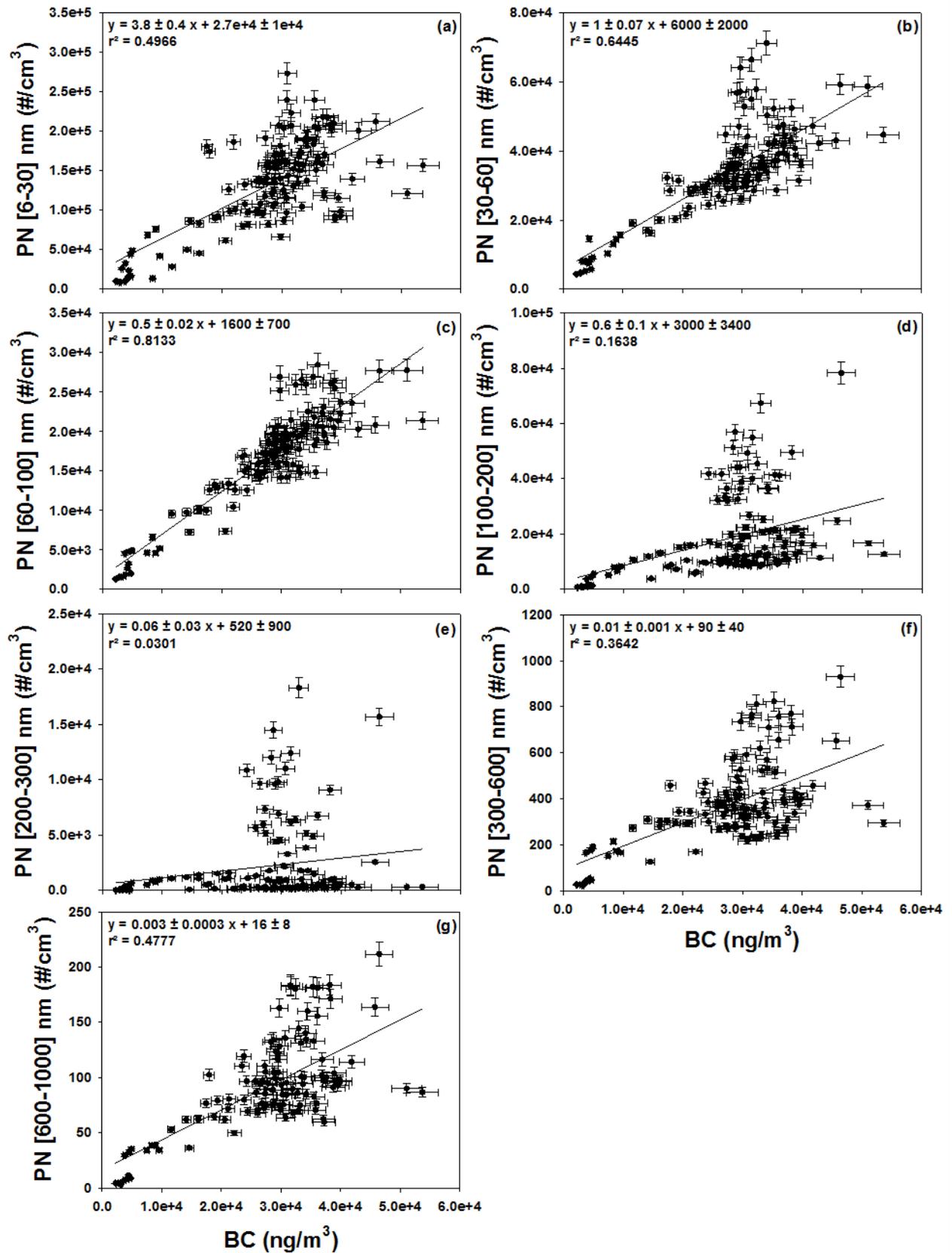


Figure 41. Corrélations entre les concentrations de BC et de PN pour différentes gammes de taille ([6-30] nm, [30-60] nm, [60-100] nm, [100-200] nm, [200-300] nm, [300-600] nm, [600-1000] nm) mesurées dans le tunnel sur la semaine de mesure.

Une forte corrélation linéaire est obtenue entre le BC et les PN pour la gamme [60-100] nm avec un coefficient de Pearson de $R^2=0,81$ (Figure 41c). Pour les particules de plus petites tailles ([6-30] nm, (Figure 41a)) et de plus grandes tailles ([100-1000] nm, (Figure 41d – g)), les corrélations sont moins significatives avec des R^2 entre 0,03 et 0,5. Ces différentes corrélations rapportent que les particules mesurées pour des tailles de 60 à 100 nm sont principalement issues de l'échappement des véhicules routiers car elles sont fortement corrélées avec les concentrations de BC, qui est considéré comme un traceur des émissions du trafic routier (Reche et al., 2011 ; Pant et al., 2013). Pour les particules inférieures à 30 nm, les corrélations observées sont plus faibles, ce qui semble indiquer qu'une partie des particules mesurée ne provient pas directement de l'échappement des véhicules, mais est probablement formée in-situ dans le tunnel par les processus de nucléation, coagulation ou condensation des composés organiques gazeux à volatilité intermédiaire ou semi volatils émis par le trafic routier. Pour les particules supérieures à 100 nm, les corrélations avec les concentrations de BC sont également faibles ce qui semble indiquer la présence de phénomènes de coagulation et de condensation puisque le processus de nucléation induit la formation des particules de petite taille.

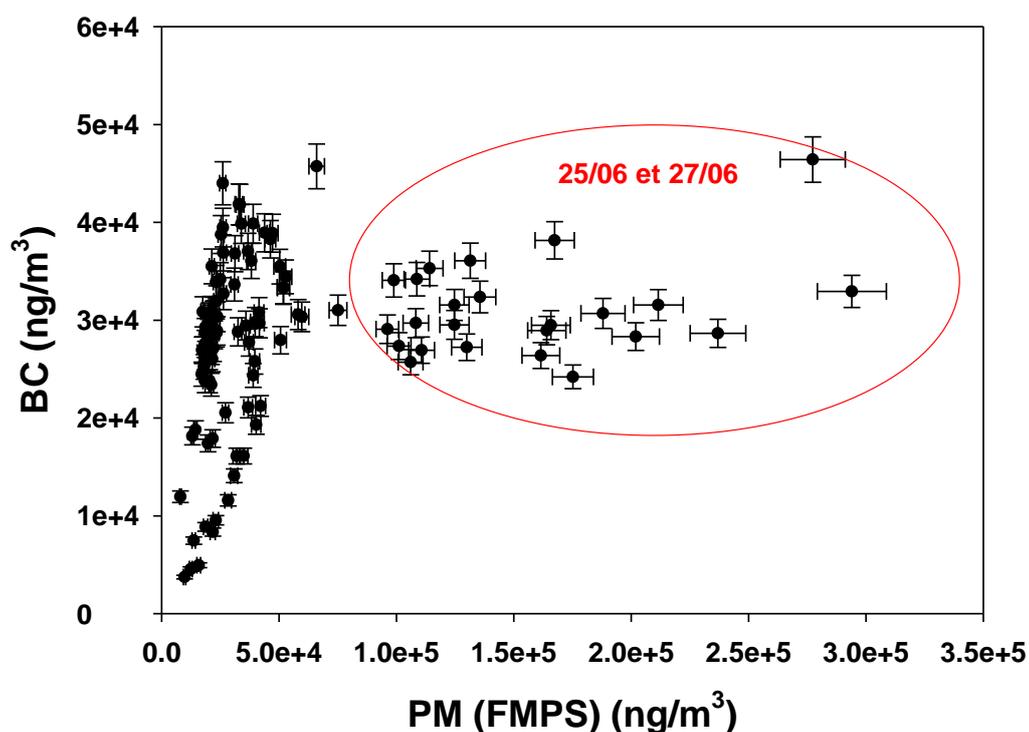


Figure 42. Corrélation entre les concentrations de BC et de PM pour la semaine de mesure dans le tunnel.

Pour les gammes de [100-200] nm et de [200-300] nm, les absences de corrélations linéaires s'expliquent par des concentrations élevées de PN lors des mesures effectuées le lundi et le mercredi (Figure 58 de l'Annexe C) qui favorisent les phénomènes de coagulation et de condensation. De plus, la présence de COVI favorise également les phénomènes de nucléation et de condensation. Le phénomène de condensation est également étudié avec la corrélation de BC/PM totale (Figure 42). À faible concentration de PM ($< 5 \times 10^4$ ng/m³), le BC et les PM montrent une tendance de corrélation linéaire. Quasiment la totalité des PM sont du carbone élémentaire. Au-delà de

$5 \times 10^4 \text{ ng/m}^3$, les PM continuent à augmenter et le BC reste constant. Ces points correspondent aux concentrations élevées des PN observées le lundi et mercredi. Cette observation semble indiquer que ces particules sont principalement des particules organiques qui sont formées par la condensation des COVI à la surface des particules émises.

2.2. Corrélations entre les composés aromatiques, aliphatiques, carbonylés et les NO_x

Les corrélations entre les concentrations des BTEX, des alcanes de C6 à C11 et de C12 à C22, des composés carbonylés et des NO_x mesurées dans le tunnel de La Défense sont étudiées afin de confirmer que le trafic routier est leur principale source d'émission (Figure 43). Les corrélations observées entre les BTEX et les NO_x et entre les C6 à C11 et les NO_x sont bonnes avec des coefficients de Pearson respectivement de $R^2=0,67$ et $R^2=0,65$. Ces résultats indiquent que, contrairement à ce qui a été observé sur le site ouvert à Nantes où d'autres sources d'émission sont présentes, les émissions mesurées pour les différents polluants dans le tunnel sont principalement dues au trafic routier. Pour les alcanes C12 à C22, le coefficient de corrélation est plus faible ($R^2=0,35$). Cette observation pourrait être expliquée par la plus faible volatilité de ces composés par rapport aux alcanes C6 à C11 et des BTEX, ce qui favorise la répartition vers la phase particulaire.

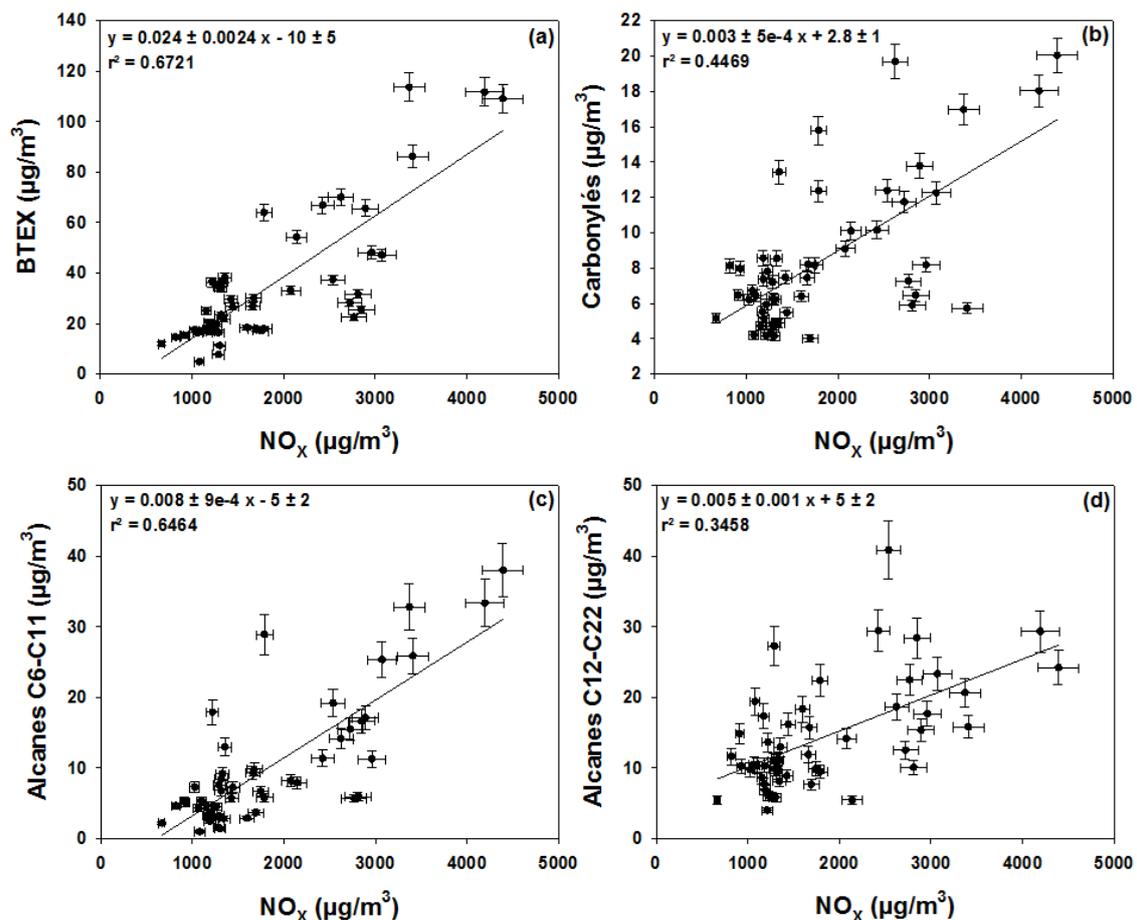


Figure 43. Corrélations entre les concentrations de NO_x et de BTEX, de composés carbonylés, et des alcanes de C6 à C11 et de C12 à C22 mesurées pour la semaine de mesure dans le tunnel.

Les concentrations des COV n'ont pas pu être mesurées pendant la nuit de fermeture du tunnel pour les concentrations de fond. Cependant, comme c'est un milieu confiné, l'impact des autres sources est faible. Les concentrations de NO_x mesurées pendant la fermeture du tunnel sont proches de 0 µg/m³. Donc, pour l'estimation des facteurs d'émission de ces différents polluants, leur limite de quantification est utilisée pour simuler leur concentration de fond.

3. Estimation des facteurs d'émission avec la méthode des NO_x

3.1. Calcul des facteurs d'émission de NO_x à partir de COPERT 5.

COPERT 5 a été employé pour le calcul des facteurs d'émission de NO_x correspondant au parc caractérisé dans le tunnel sur la semaine de mesure. Il a permis de calculer les facteurs d'émission de NO_x pour chaque heure pour un parc global, donnés en µg/km, et par véhicule, donnés en µg/véh/km. Les valeurs calculées pour chaque parc global sont comprises entre $2,8 \times 10^7$ et $3,9 \times 10^9$ µg/km et, pour les facteurs d'émission par véhicule, elles sont comprises entre $3,7 \times 10^5$ et $1,2 \times 10^6$ µg/véh/km.

3.2. Facteurs d'émission par véhicule

Les facteurs d'émission estimés à partir de la méthode des NO_x pour les différents polluants étudiés sont donnés dans le Tableau 15. Pour chaque polluant, les FE sont présentés avec leur intervalle minimum et maximum ainsi que leur valeur moyenne. Les facteurs d'émission varient de 3 à 75 fois en fonction de l'heure de mesure et des parcs en circulation présents.

Tableau 15. Facteurs d'émission estimés pour les PN, le BC, les BTEX, les composés carbonylés et les alcanes avec la méthode des NO_x dans le tunnel de la Défense.

Polluants	Facteurs d'émission (Min – Max)	Facteur d'émission moyen
Phase particulaire		
PN (#/véh/km)	$(0,22 - 2,2) \times 10^{14}$	$(1,0 \pm 0,3) \times 10^{14}$
BC (ng/véh/km)	$(0,02 - 2,7) \times 10^7$	$(1,2 \pm 0,4) \times 10^7$
BTEX		
Benzène (µg/véh/km)	$(0,90 - 4,4) \times 10^3$	$(2 \pm 0,8) \times 10^3$
Toluène (µg /véh/km)	$(0,11 - 1,5) \times 10^4$	$(5,9 \pm 3,0) \times 10^3$
Éthylbenzène (µg /véh/km)	$(0,13 - 2,1) \times 10^3$	850 ± 460

m+p-Xylène (µg /véh/km)	(0,30 – 7,1)×10 ³	(2,9 ± 1,7)×10 ³
o-Xylène (µg /véh/km)	(0,20 – 2,5)×10 ³	960 ± 540
Composés carbonylés		
Formaldéhyde (µg/véh/km)	(0,36 – 1,6)×10 ³	730 ± 250
Acétaldéhyde (µg/véh/km)	(0,37 – 2,3)×10 ³	780 ± 350
Propionaldéhyde (µg/véh/km)	20 – 150	60 ± 32
2-Butanol (µg/véh/km)	110 – 650	310 ± 140
COV Alcanes (de C6 à C11)		
Hexane (µg/véh/km)	(0,53 – 4,3)×10 ³	(1,7 ± 0,9)×10 ³
Heptane (µg/véh/km)	(0,22 – 1,7)×10 ³	650 ± 360
Octane (µg/véh/km)	170 – 700	380 ± 160
Nonane (µg/véh/km)	(0,03 – 2,2)×10 ³	710 ± 480
Décane (µg/véh/km)	(0,07 – 1,7)×10 ³	670 ± 460
Undécane (µg/véh/km)	(0,11 – 1,7)×10 ³	630 ± 340
COVI Alcanes (de C12 à C22)		
Dodécane (µg/véh/km)	(0,13 – 1,4)×10 ³	520 ± 290
Tridécane (µg/véh/km)	75 – 900	380 ± 180
Tétradécane (µg/véh/km)	140 – 950	490 ± 190
Pentadécane (µg/véh/km)	100 – 870	440 ± 150

Hexadécane ($\mu\text{g}/\text{véh}/\text{km}$)	110 – 550	310 ± 100
Heptadécane ($\mu\text{g}/\text{véh}/\text{km}$)	110 – 510	290 ± 90
Octadécane ($\mu\text{g}/\text{véh}/\text{km}$)	130 – 540	300 ± 100
Nonadécane ($\mu\text{g}/\text{véh}/\text{km}$)	220 – 670	400 ± 110
Eiscosane ($\mu\text{g}/\text{véh}/\text{km}$)	$(0,18 - 1,1) \times 10^3$	430 ± 180
Heneicosane ($\mu\text{g}/\text{véh}/\text{km}$)	$(0,21 - 2,6) \times 10^3$	800 ± 580
Docosane ($\mu\text{g}/\text{véh}/\text{km}$)	$(0,15 - 7,5) \times 10^3$	$(1,5 \pm 1,4) \times 10^3$

-- : pas de mesure

< LQ : inférieure à la limite de quantification

Pour les alcanes de C6 à C22, les facteurs d'émission estimés les plus élevés sont obtenus pour l'hexane (C6) (Figure 44), ce qui est caractéristique des émissions des véhicules essence (Gentner et al., 2012). Comme ce qui est observé à Lyon, les C21 et C22, qui sont des précurseurs importants des AOS, montrent des facteurs d'émission les plus élevés pour les COVI.

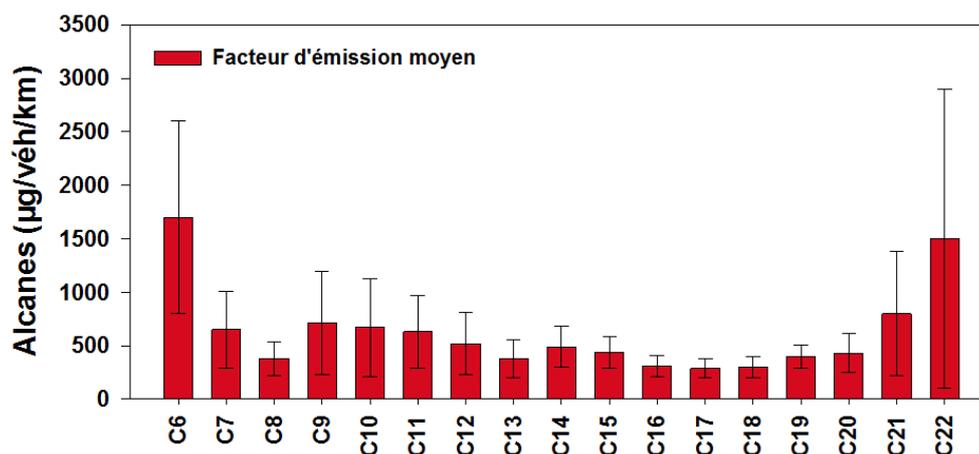


Figure 44. Distribution des facteurs d'émission moyens estimés dans le tunnel pour les alcanes de C6 à C22.

3.3. Corrélations des facteurs d'émission

Comme cela a été montré à Nantes (Partie 2.1.4.1 du chapitre 4), le toluène peut être considéré comme un traceur des émissions du trafic routier. La Figure 45 rapporte que les facteurs d'émission du toluène et du benzène sont très bien corrélés avec la somme des BTEX, avec des coefficients de

Pearson $R^2=0,99$ et $R^2=0,91$ respectivement. Cette observation révèle que le toluène et le benzène proviennent bien de la même source d'émission qui est le trafic, contrairement à ce qui a été observé à Nantes sur un site ouvert. De plus, cette analyse est également confirmée pour l'éthylbenzène, le m+p-xylène et le o-xylène qui ont de très bonnes corrélations avec la somme des facteurs d'émission des BTEX avec des R^2 respectivement de 0,96, 0,97 et 0,95.

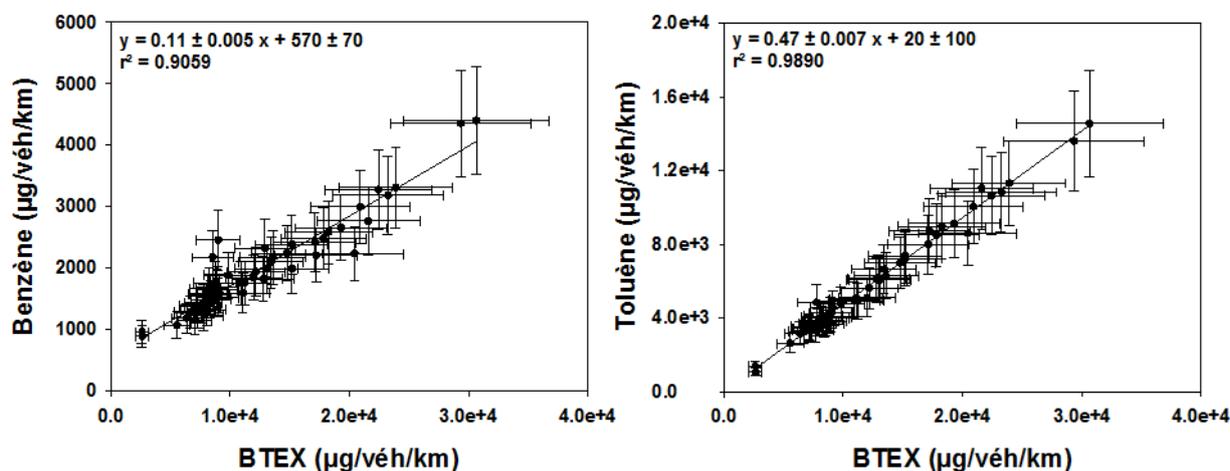


Figure 45. Corrélations entre la somme des facteurs d'émission des BTEX et les facteurs d'émission du benzène et du toluène.

Les corrélations entre le toluène et les deux groupes d'alcane sont étudiés dans la Figure 46. Pour les C6 à C11 qui font partis du groupe des COV comme le toluène, une corrélation linéaire est observée entre leurs facteurs d'émission ($R^2=0,64$) indiquant que ces alcanes proviennent principalement des émissions de l'échappement des véhicules. À l'inverse du groupe des C12 à C22 qui sont des COVI avec une plus forte répartition en phase particulaire, et qui ne montre donc pas de corrélation avec le toluène.

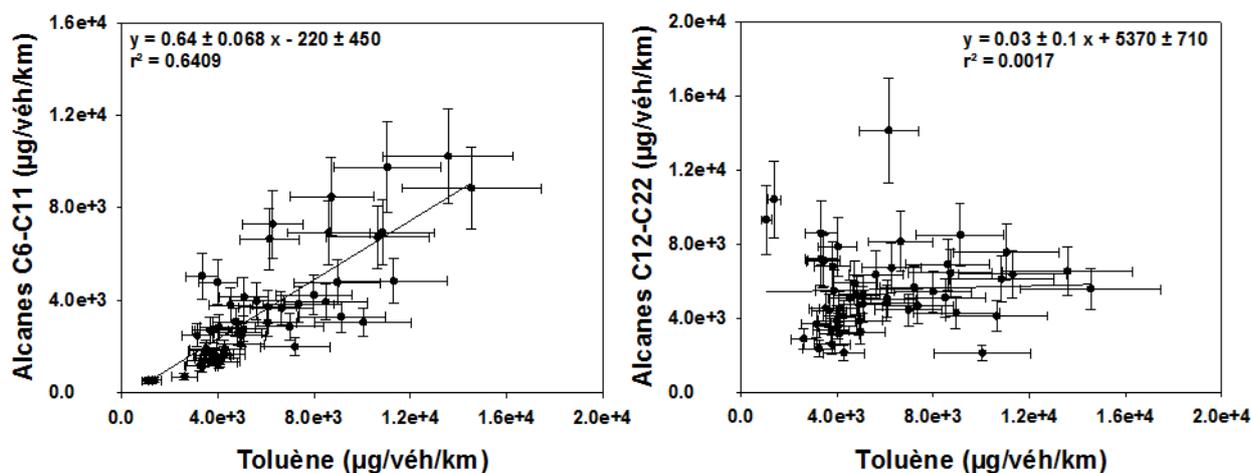


Figure 46. Corrélations entre les facteurs d'émission du toluène et des alcanes de C6 à C11 et de C12 à C22 estimés sur le site de trafic.

3.4. Facteurs d'émission globaux du trafic

Dans cette partie, les facteurs d'émission globaux des différents polluants (#/km ou masse/km) sont étudiés sur la semaine en fonction du trafic réel présent dans le tunnel.

3.4.1. Particules et carbone suie

Pour les particules, les facteurs d'émission calculés par heure pour un parc global vont de $3,3 \times 10^{15}$ à $5,3 \times 10^{17}$ #/km. Pour le carbone suie, les estimations varient de $2,8 \times 10^7$ à $8,7 \times 10^{10}$ ng/km (Figure 47).

Des facteurs d'émission plus élevés sont observés pour des pics de trafic du matin ou du soir. Mais de manière générale, sur une journée, les facteurs varient peu contrairement à ce qui a pu être observé à Nantes (Partie 2.1.3.2) où les facteurs d'émission calculés lors des pics de trafic montraient des valeurs 2 à 4 fois plus importantes comparé au reste de la journée. Pour les PN, la moyenne des facteurs d'émission pour un parc global pour la semaine est de $2,9 \times 10^{17} \pm 7 \times 10^{16}$ #/véh/km, tandis qu'à Nantes, elle est de $2,1 \times 10^{17} \pm 1,5 \times 10^{17}$ #/véh/km. L'écart type relatif est de 24 % pour le tunnel tandis qu'à Nantes il est de 71 %. Cette observation est la même pour le BC avec un écart type relatif de 28 % pour le tunnel alors qu'à Nantes il est de 71 %. Ces différences de variations peuvent s'expliquer en partie par l'absence d'émissions à froid des véhicules dans le tunnel alors qu'elles sont observées à Nantes, où le site se trouve en plein centre-ville urbain, et entraînent des surémissions de particules et de carbone suie. Elles peuvent également être dues à des compositions de parc plus homogènes et la présence de plus de véhicules récents dans le tunnel (Chapitre 3).

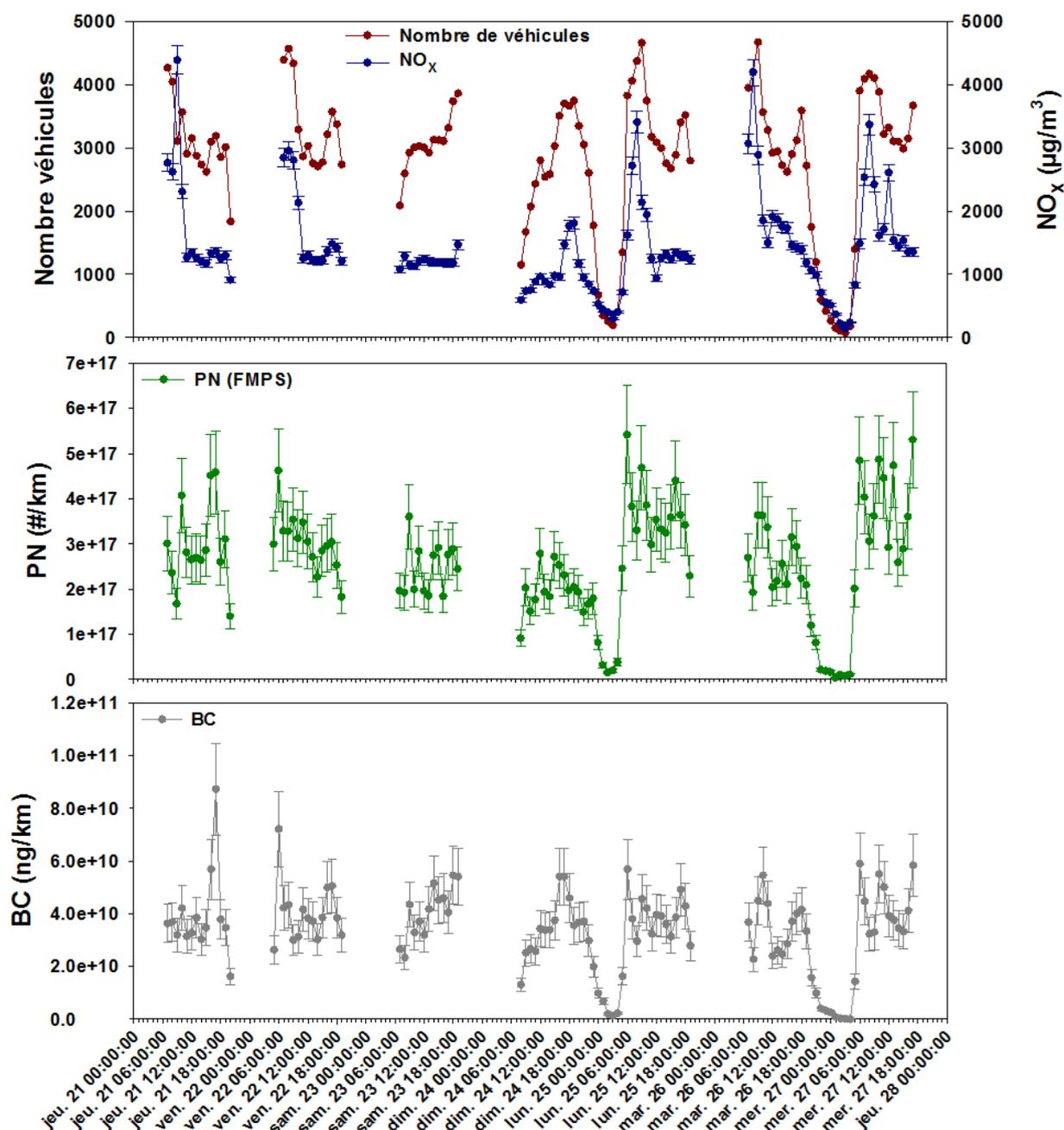


Figure 47. Profils des facteurs d'émission du parc pour les PN et le carbone suie, des concentrations de NO_x et du nombre de véhicules en fonction de l'heure et de la journée de mesure dans le tunnel.

3.4.2. Composés aromatiques, aliphatiques et carbonyles

Les facteurs d'émission de ces polluants ont été calculés pour une période d'une heure entre 7h et 9h du matin et pour une période de deux heures entre 10h et 22h. Ces périodes ont été choisies afin de récolter suffisamment de matière pour leurs quantifications. Les facteurs d'émission horaires estimés pour un parc global sont compris entre $2,5 \times 10^6$ et $2,6 \times 10^7$ µg/km pour la somme des composés carbonyles. Les estimations les plus élevées sont logiquement observées entre 16h et 20h pour tous les jours car ces horaires représentent le trafic le plus important avec une circulation

fluide. Pour les BTEX et les alcanes de C6 à C11, les FE varient respectivement de $5,5 \times 10^6$ à $1,6 \times 10^8 \mu\text{g}/\text{km}$ et de $1,2 \times 10^6$ à $7,2 \times 10^7 \mu\text{g}/\text{km}$. Les facteurs d'émission les plus élevés sont également observés le soir entre 16h et 20h pour les tous les jours de mesures. Pour le groupe d'alcanes de C12 à C22, les FE du parc global vont de $9,8 \times 10^6$ à $5,8 \times 10^7 \mu\text{g}/\text{km}$. Leurs profils d'évolution sont différents des COV ce qui confirme l'observation effectuée sur la Figure 46.

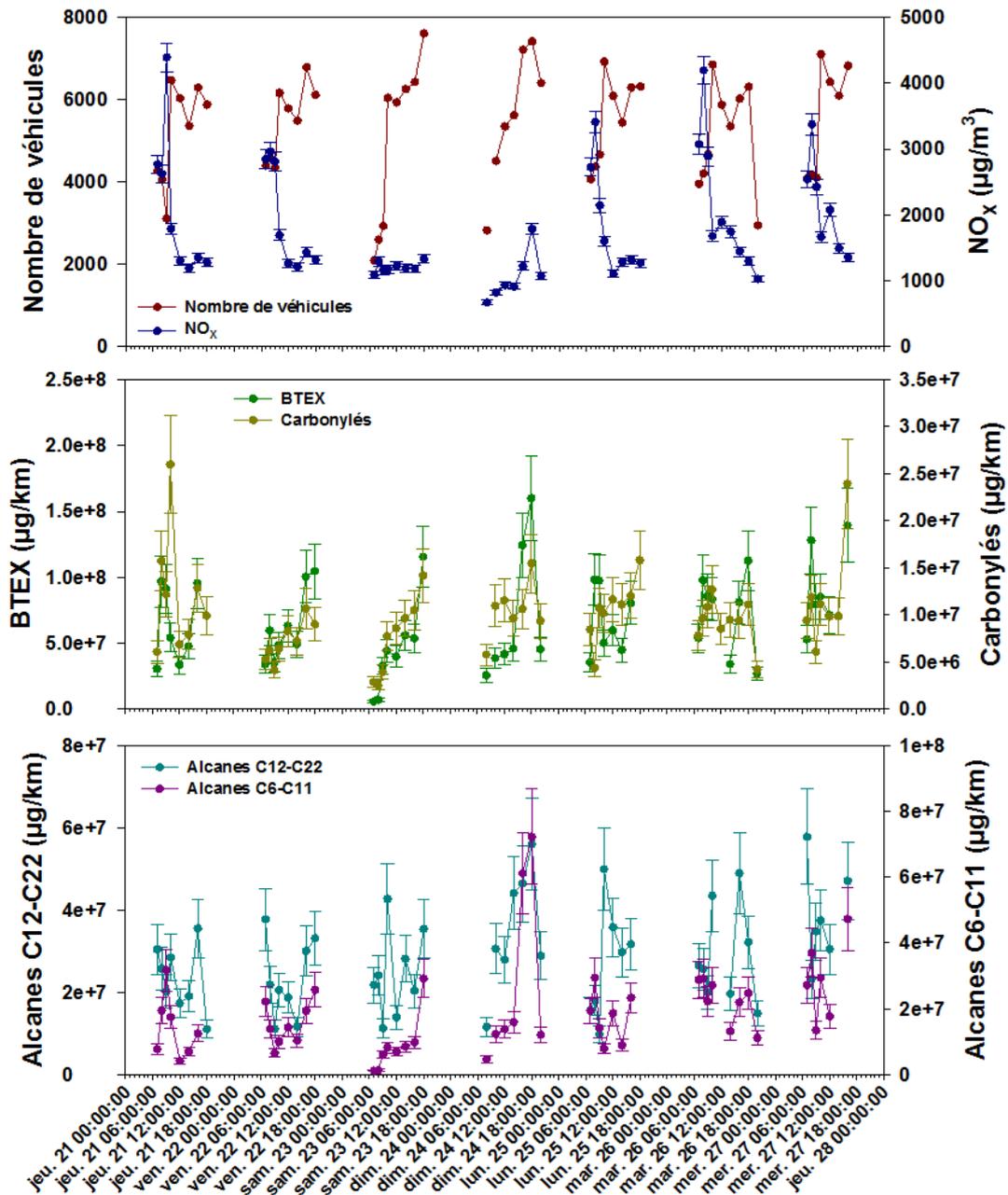


Figure 48. Profils des facteurs d'émission du parc pour les BTEX, les alcanes et les composés carbonylés, des concentrations de NO_x et du nombre de véhicules en fonction de l'heure et de la journée de mesure dans le tunnel.

3.4.3. Impact de la composition du parc sur les facteurs d'émission

Les compositions du trafic caractérisées sur la semaine de mesure dans le tunnel ne sont pas toujours constantes. À l'aide d'analyses statistiques ANOVA, ces différences permettent d'étudier l'impact de la composition d'un parc sur les émissions de polluants (Tableau 16). Les catégories de véhicules utilisées sont les mêmes que celles de l'analyse effectuée dans la partie 2.1.3.2 (Chapitre 4) avec des différences pour les échantillons. Les catégories sont : le nombre de PL et bus (0 à 78 avec des groupes tous les 10), les pourcentages de VP Diesel de normes Euro 5 et Euro 6 (27 à 54 % avec des groupes tous les 10 %), de VP Diesel de norme Euro 4 (6 à 20 % avec des groupes tous les 10 %), de VP Diesel de normes pré-Euro à Euro 3 (2 à 17 % avec des groupes tous les 10 %), de VP essence de normes pré-Euro à Euro 3 (2 à 18 % avec des groupes tous les 10 %), de VP essence de normes Euro 4 à Euro 6 (14 à 29 % avec des groupes tous les 10 %) et de VUL (3 à 19 % avec des groupes tous les 10 %). Ces analyses sont réalisées sur les facteurs d'émission d'un parc global horaire afin d'étudier au mieux l'impact des différentes compositions d'un parc sur les émissions.

Les résultats pour le nombre de PL et bus montrent un impact significatif positif des groupes compris entre 30 et 70 véhicules sur les PN, le BC, le formaldéhyde et l'acétaldéhyde. Ce qui indique que lorsque le nombre de PL et bus est plus important, ces quatre polluants sont émis en plus grande quantité. En comparaison avec le facteur d'émission moyen des PN ($2,58 \times 10^{17}$ #/km), les groupes 30-40 et 40-50 émettent respectivement 1,4 et 1,7 fois plus d'émissions. Pour le BC, dont le facteur moyen est $3,4 \times 10^{10}$ ng/km, le groupe 40-50 induit 1,4 fois plus d'émissions. Pour le formaldéhyde ($3,9 \times 10^6$ µg/km), les groupes 50-60 et 60-70 engendrent respectivement 1,6 et 1,5 fois plus d'émissions, tandis que pour l'acétaldéhyde, le groupe 50-60 entraîne des émissions 1,7 fois plus importantes par rapport au facteur d'émission moyen ($4,1 \times 10^6$ µg/km).

Tableau 16. Résultats de l'analyse ANOVA sur l'impact de la composition du parc sur les facteurs d'émission du tunnel de la Défense.

Composition du parc	Polluants	Unité	p-value	Groupe ayant un impact significatif	
				Impact négatif	Impact positif
Nombre de PL/Bus	PN	#/km	0*	0-10	30-40 ; 40-50
	BC	ng/km	0*	0-10	40-50
	Formaldéhyde	µg/km	0*	0-10 ; 20-30 ; 30-40	50-60 ; 60-70
	Acétaldéhyde	µg/km	0,007*	0-10 ; 30-40	50-60
Pourcentage de VP diesel de normes pré-Euro à Euro 3	PN	#/km	0*	--	0-10 %
	BC	ng/km	0,001*	--	0-10 %

Pourcentage de VP diesel de norme Euro 4	PN	#/km	0*	30-40 %	0-10 % ; 10-20 %
	BC	ng/km	0,002*	30-40 %	0-10 % ; 10-20 %
Pourcentage de VP diesel de normes Euro 5 à Euro 6	PN	#/km	0,001*	20-30 %	--
	BC	ng/km	0,001*	20-30 %	30-40 %
Pourcentage de VP essence de normes pré-Euro à Euro 3	PN	#/km	0,007*	10-20 %	0-10 %
	BC	ng/km	0,02*	10-20 %	0-10 %
	Formaldéhyde	µg/km	0,04*	10-20 %	0-10 %
	Acétaldéhyde	µg/km	0,07**	10-20 %	0-10 %
	Benzène	µg/km	0,04*	10-20 %	0-10 %
Pourcentage de VP essence de normes Euro 4 à Euro 6	PN	#/km	0,01*	0-10 % ; 30-40 %	10-20 %
	BC	ng/km	0,007*	0-10 %	20-30 %
	Toluène	µg/km	0,02*	10-20 %	20-30 %
	Ethylbenzène	µg/km	0,07**	10-20 %	20-30 %
	m+p-Xylène	µg/km	0,04*	10-20 %	20-30 %
Pourcentage de VUL	PN	#/km	0,005*	0-10 %	20-30 %
	Benzène	µg/km	0,07**	10-20 %	0-10 %
	Toluène	µg/km	0,01*	10-20 %	0-10 %
	Ethylbenzène	µg/km	0,02*	10-20 %	0-10 %
	m+p-Xylène	µg/km	0,02*	10-20 %	0-10 %
	o-Xylène	µg/km	0,04*	10-20 %	0-10 %

* Résultats significatifs

** Résultats considérés comme significatifs

-- Pas de résultats

Pour les VP Diesel de normes Euro 5 et Euro 6, les pourcentages plus élevés (30-40 %) révèlent des impacts significatifs positifs sur les émissions de BC. Ce groupe induit des émissions 1,1 fois plus importantes par rapport au facteur d'émission moyen ($3,4 \times 10^{10}$ ng/km). Les pourcentages plus importants de VP Diesel de normes pré-Euro à Euro 3 ne montrent pas d'impacts significatifs positifs sur les émissions de polluants contrairement à ce qui a été observé sur le site de Nantes (Partie 2.1.3.2), ce qui peut être dû à une présence plus faible de cette catégorie de véhicule dans le tunnel de La Défense par rapport à Nantes.

Pour les VP essence de normes pré-Euro à Euro 3, les analyses rapportent un impact significatif positif du groupe 0-10 % sur les émissions de PN, de BC, de formaldéhyde, d'acétaldéhyde et de benzène. Les VP essence de normes Euro 4 à Euro 6 montrent des impacts significatifs positifs sur les émissions de BC, toluène, éthylbenzène et m+p-xylène pour le groupe 20-30 % qui représente un pourcentage élevé de présence pour cette catégorie. Cette observation semble indiquer que les véhicules essence récents induisent plus d'émission de ces polluants que les anciens véhicules essence. Ce groupe engendre des émissions 1,1 fois plus importantes pour le BC par rapport au facteur d'émission moyen ($3,4 \times 10^{10}$ ng/km) et des émissions 1,2, 1,1 et 1,2 fois plus importantes respectivement pour le toluène ($3,4 \times 10^7$ µg/km), l'éthylbenzène ($4,8 \times 10^6$ µg/km) et le m+p-xylène ($1,6 \times 10^7$ µg/km). Pour les VUL, les résultats indiquent un impact significatif positif du groupe 20-30 % sur les facteurs d'émission de PN. La présence d'un plus grand nombre de VUL entraîne des émissions de particules 1,4 fois plus importantes par rapport au facteur d'émission moyen ($2,58 \times 10^{17}$ #/km).

4. Conclusion

Cette campagne de mesure dans le tunnel de La Défense a permis l'estimation de facteurs d'émission in-situ par véhicule et pour un parc global pour les PN, le BC, les BTEX, certains composés carbonylés (formaldéhyde, acétaldéhyde, propionaldéhyde, 2-butanol) et les alcanes de C6 à C11 et de C12 à C22 pour une grande diversité de conditions de conduite et de compositions de parc.

Contrairement à un site ouvert, les émissions mesurées dans le tunnel sont principalement issues du trafic routier et ne sont pas influencées par d'autres sources d'émissions. Les facteurs d'émission des COV rapportent de bonnes corrélations entre eux notamment entre le benzène et la somme des BTEX, dont la corrélation n'était pas observée à Nantes, ainsi qu'entre le toluène et les alcanes de C6 à C11. Pour les COVI, aucune corrélation n'est observée avec le toluène. Cependant, ils montrent des facteurs d'émission élevés pour les C21 et C22, qui sont des alcanes en phase gazeuse qui vont engendrer plus facilement des AOS par nucléation.

Les corrélations entre les concentrations de BC et de PN pour différentes gammes de tailles révèlent que les PN entre 60 et 100 nm sont principalement issus du trafic routier tandis que pour des tailles inférieures à 60 nm et supérieures à 100 nm, elles sont également issues de

transformations physico-chimiques telles que la nucléation de composés gazeux et la condensation et la coagulation de particules présentes dans le tunnel.

Pour les facteurs d'émission pour un parc global, les valeurs les plus élevées ont été mesurées pour les pics de trafic du soir pour les COV et pour les pics du matin et du soir pour les COVI, les PN et le BC. Les facteurs d'émission pour les PN et BC ne montrent pas de fortes variations dans leurs valeurs sur la semaine de mesure par rapport à ce qui a été observé à Nantes. L'explication se trouve dans des compositions de parc plus homogènes ou encore par l'absence d'émissions à froid des véhicules dans le tunnel.

Les analyses ANOVA utilisées pour étudier les impacts de la composition du parc sur les émissions ont montré des impacts positifs pour des nombres plus importants de PL et bus sur les émissions de PN, BC, formaldéhyde et acétaldéhyde et pour des pourcentages plus élevés de VUL sur les émissions de PN. Des impacts positifs sur les émissions de BC, toluène, éthylbenzène et m+p-xylène sont également observées pour des pourcentages plus élevés de VP essence de normes Euro 4 à Euro 6.

Chapitre 6 : Validation et comparaison des facteurs d'émission

1. Introduction

Les comparaisons des facteurs d'émission in-situ pour les polluants étudiés lors des trois campagnes de mesure, ainsi qu'avec ceux mesurés au laboratoire sur le banc à rouleau, sont réalisées et discutées dans ce chapitre. Ces comparaisons permettent d'étudier d'éventuels impacts des différents types de site sur les émissions, surtout pour les composés à volatilité intermédiaire qui peuvent se déposer sur les parois dans un site confiné. Avant de comparer les facteurs d'émission des différents sites de mesure, une comparaison de ces facteurs calculés a été effectuée avec différentes versions de COPERT (4 et 5) afin d'affranchir l'écart induit par les différentes versions de cet outil de calcul.

2. Comparaison des facteurs d'émission calculés avec COPERT 4 et COPERT 5

Les facteurs d'émission de NO_x utilisés dans la méthode des NO_x ont été calculés avec le logiciel COPERT. Pour l'estimation des facteurs d'émission des polluants à Nantes, le calcul a été réalisé à l'aide de COPERT 4. Pour la campagne dans le tunnel, COPERT 4 a été utilisé dans un premier temps pour le calcul des facteurs d'émission de NO_x, puis, une nouvelle version de COPERT est sortie en août 2018 (COPERT 5) avec des mises à jour sur les émissions des véhicules récents (Euro 5 et Euro 6). Cette version a donc été appliquée pour les campagnes de mesure réalisées en 2018 (tunnel et Lyon) afin de déterminer les facteurs d'émission. Avant de comparer les FE des trois sites, une comparaison entre COPERT 4 et 5 a été exécutée. Les facteurs d'émission de NO_x ont été déterminés avec COPERT 4 et COPERT 5 pour les parcs présents toutes les heures dans le tunnel et sur le site de Lyon. Les valeurs obtenues sont présentées dans la Figure 49, qui montre une très bonne corrélation ($R^2=0,89$) avec un coefficient de linéarité égale à 1,27. Ceci indique que COPERT 5 induit une surestimation des émissions de NO_x de 1,27 par rapport à COPERT 4. Ce coefficient est donc appliqué aux facteurs d'émission estimés à Nantes avec COPERT 4 dans le but de les comparer avec ceux estimés pour le tunnel et à Lyon.

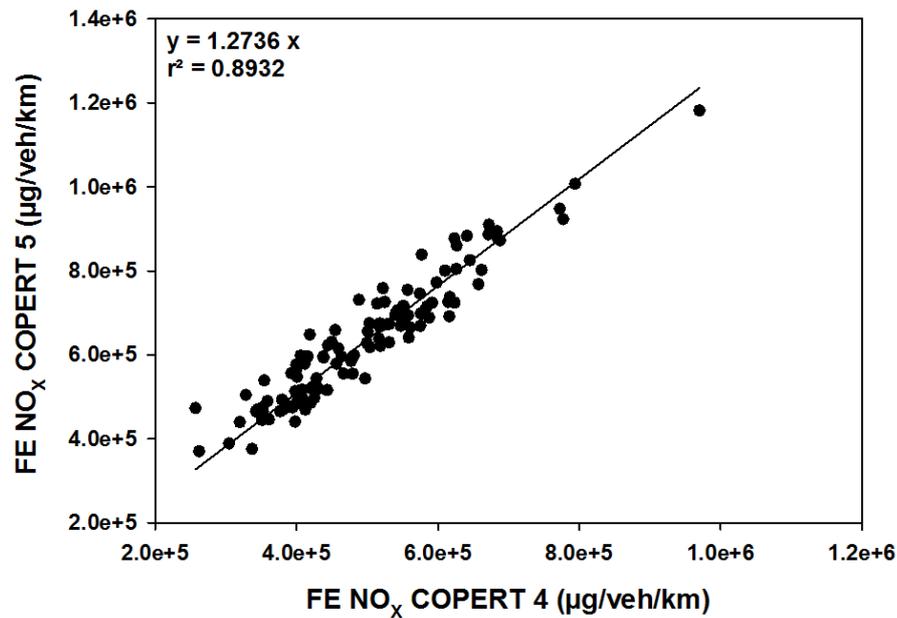


Figure 49. Corrélation entre les facteurs d'émission de NO_x calculés avec COPERT 4 et COPERT 5 pour les parcs présents à Lyon et dans le tunnel.

3. Comparaison des facteurs d'émission

3.1. Comparaison des facteurs d'émission par véhicule estimés entre les différents sites de mesure et avec des facteurs d'émission estimés sur banc à rouleau

Les facteurs d'émission des PN, du BC, des BTEX et des alcanes (C9-C11) ont été analysés avec des boîtes à moustaches pour Nantes et le tunnel, et ensuite comparés avec ceux mesurés à Lyon et au banc à rouleau. Les boîtes à moustaches de tous les polluants mesurés montrent pour le tunnel des boîtes qui sont plus courtes par rapport à celles de Nantes, ce qui indique des facteurs plus regroupés autour de la médiane. Cette observation pourrait être expliquée par le milieu confiné, où l'impact d'autres sources d'émission que le trafic routier est limité, et donc les facteurs d'émission des polluants sont moins dispersés.

Pour les PN et le BC, la médiane de la boîte du tunnel ($8,9 \times 10^{13}$ #/véh/km pour les PN et $1,1 \times 10^7$ ng/véh/km pour le BC) est environ 2 fois plus basse par rapport à celle de Nantes ($1,6 \times 10^{14}$ #/véh/km pour les PN et $2,8 \times 10^7$ ng/véh/km pour le BC) ce qui indique des facteurs d'émission par véhicule moins élevés dans le tunnel pour la plupart des mesures. Les compositions du parc dans le tunnel qui de manière générale comprennent plus de véhicules récents (véhicules équipés de filtre à particules), que ce soit pour les VP, les VUL ou les PL et bus, peuvent illustrer cette observation. Les facteurs d'émission estimés à Lyon sont quant à eux dans la même plage que les 50 % supérieurs de la boîte de Nantes. Cela pourrait être expliqué en partie par l'heure de prélèvement. À Lyon, les prélèvements ont été réalisés seulement le matin quand l'impact du démarrage à froid est plus important induisant des émissions plus élevées.

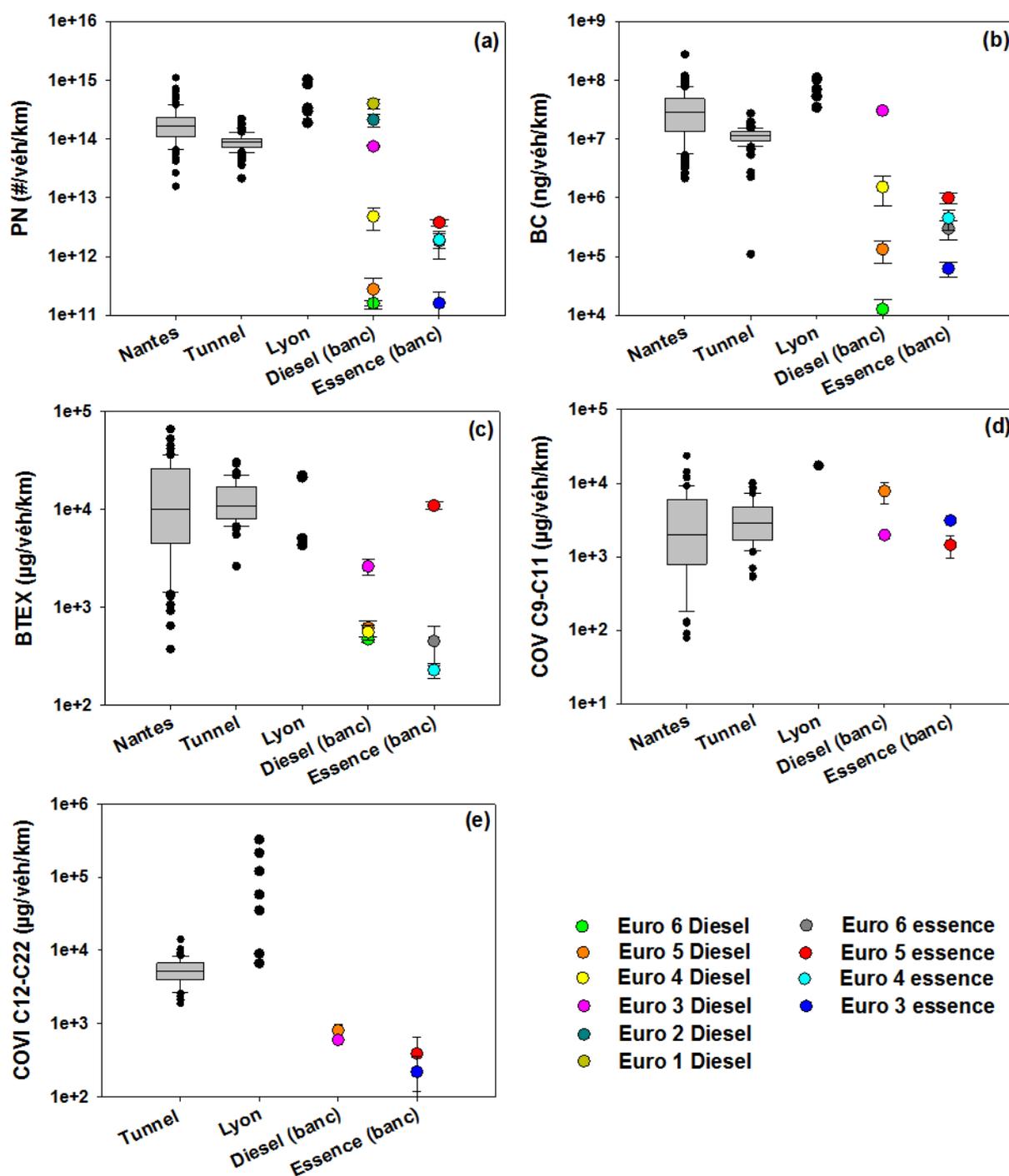


Figure 50. Comparaisons des facteurs d'émission estimés in-situ par véhicule (Nantes, Tunnel et Lyon) pour les PN, le carbone suie, le formaldéhyde, les BTEX et les alcanes de C9 à C11 et de C12 à C22 avec des facteurs d'émission estimés par des mesures sur banc à rouleau pour des VP Diesel et essence de normes Euro 1 à Euro 6 (Louis et al., 2016 ; Martinet et al., 2017).

Le groupe des COVI (C12 à C22) a été quantifié dans le tunnel et à Lyon. La Figure 50e rapporte une distribution regroupée de la boîte à moustaches pour les facteurs d'émission du tunnel avec la médiane qui se situe au milieu de la boîte et une faible dispersion des facteurs autour de celle-ci. Pour les facteurs d'émission estimés à Lyon, la plupart sont au-dessus de la médiane du tunnel

comme pour les PN et le BC. Ceci semble indiquer l'impact du démarrage à froid sur les émissions de COVI.

Pour les comparaisons avec les mesures effectuées sur banc à rouleau, des facteurs d'émission obtenus pour les PN, le BC, les BTEX et les alcanes de C9 à C11 et de C12 à C22 pour 2 VP Euro 6 (1 Diesel et 1 essence), 9 VP Euro 5 (5 Diesel et 4 essence), 5 VP Euro 4 (3 Diesel et 2 essence) et 3 VP Euro 3 (2 Diesel et 1 essence) ont été employés (Louis et al., 2016 ; Martinet et al., 2017). Pour les PN, les facteurs d'émission de véhicules Diesel de normes Euro 1 et Euro 2 ont également été utilisés (EMEP/EEA 2016). Les mesures sur le banc ont été exécutées avec les cycles de conduite ARTÉMIS urbain avec démarrage à chaud et à froid. Pour les véhicules Euro 3 à Euro 6, les analyseurs en ligne et les cartouches de prélèvement sont les mêmes que ceux utilisés lors des mesures réalisées sur nos trois sites et les analyses des cartouches sont également effectuées par les mêmes laboratoires. Pour chaque catégorie de véhicule, un facteur d'émission moyen a été calculé en prenant des facteurs de pondération différents pour les cycles à chaud et à froid, 25 % pour les démarrages à froid et 75 % pour les démarrages à chaud. Ces pourcentages ont été définis à partir des mesures faites à Nantes, où environ 25 % des cartouches sur la semaine de mesure ont été prélevées le matin entre 6h et 9h.

Les boîtes à moustaches des facteurs d'émission des PN et du BC se situent au même niveau que ceux des VP Diesel de normes Euro 1 à Euro 3 et sont supérieures aux facteurs d'émission des VP Diesel Euro 4 et des VP essence Euro 4 à Euro 6, avec des valeurs environ 10 fois plus élevées, et à ceux des VP Diesel Euro 5 et Euro 6 et des VP essence Euro 3, avec des valeurs 100 à 1000 fois plus élevées (Figure 50a et b). Le nombre restreint de véhicules pour chaque catégorie testés sur le banc ne permet pas de donner une conclusion définitive mais la tendance confirme qu'un parc présentant plus de véhicules Diesel anciens (Pré-Euro à Euro 3) induit des émissions plus importantes de PN et de BC.

Pour les BTEX, des facteurs d'émission ont été mesurés sur banc à rouleau pour les véhicules Diesel et essence Euro 4 à 6. Un seul véhicule Diesel Euro 3 a été testé. L'émission la plus élevée sur le banc à rouleau est déterminée pour les Euro 5 essence à injection directe, et se situe dans les mêmes ordres de grandeur que la médiane des boîtes à moustaches de Nantes et du tunnel. Pour les autres véhicules Euro 4 à 6 Diesel et essence mesurés au banc, les facteurs d'émission se situent dans la partie de faible émission en comparaison avec les trois campagnes de mesure in-situ (Figure 50c). Cette observation semble indiquer que les principales sources d'émission de BTEX sont des véhicules plus anciens.

Pour les alcanes de C9 à C11, des facteurs d'émission ont été mesurés sur banc à rouleau pour quatre véhicules, deux Euro 5 et deux Euro 3 Diesel et essence. Ces facteurs sont dans les ordres de grandeur autour de la médiane de ceux estimés à Nantes et dans le tunnel (Figure 50d). Des facteurs d'émission ont également été évalués sur le banc pour ces quatre véhicules pour les alcanes de C12 à C22. Ils sont tous en dessous des facteurs estimés dans le tunnel et à Lyon avec des valeurs de 2 à 17 fois plus faibles par rapport au tunnel et de 8 à 400 fois plus faibles par rapport à Lyon (Figure 50e).

Cette différence entre les mesures in-situ et celles sur banc pourrait être en partie justifiée par les faibles émissions de ces composés par les quatre véhicules testés. Mais, elle pourrait également être expliquée par la différence des conditions d'échantillonnage : la température de prélèvement et la dilution. Les C12-C22 ont été prélevés à 120 °C avec un ratio de dilution de 3 durant les mesures sur le banc contrairement aux prélèvements in-situ où les C12-C22 ont été prélevés à température ambiante (15 à 20 °C) avec une forte dilution de 1 000 à 4 000. Une forte température favorise la présence de ces composés à volatilité intermédiaire en phase gazeuse. Cependant, une faible dilution favorise les phénomènes de nucléation ou de condensation des COVI selon la concentration des PN du milieu. La concentration des particules mesurée à l'échappement au banc est plus concentrée par rapport à celle mesurée in-situ, qui apportent une surface de dépôt plus grande pour les C12-C22 que les conditions ambiantes. Ces conditions d'échantillonnage modifient les équilibres de partage entre la phase gazeuse et particulaire et provoquent des impacts sur la mesure de ces composés à volatilité intermédiaire. Ces impacts sont actuellement en cours d'étude dans d'autres travaux.

3.2. Comparaison avec des facteurs d'émission d'autres études in-situ

Les facteurs d'émission estimés in-situ à Nantes, dans le tunnel et à Lyon pour les PN, le BC et les BTEX ont été comparés à d'autres facteurs d'émission obtenus dans de précédentes études in-situ réalisées sur des sites ouverts en bord de route ou dans des sites confinés avec des caractéristiques se rapprochant de celles de nos trois sites de mesure (Figure 51).

Pour les PN, neuf études in-situ ont été utilisées pour la comparaison dont huit qui ont été effectuées sur des sites ouverts en bord de route (Ketznel et al., 2003 ; Gratmonev et al., 2004 ; Rose et al., 2005 ; Imhof et al., 2005 ; Jones et al., 2006 ; Westerdahl et al., 2009 ; Wang et al., 2010 ; Krecl et al., 2018) et une dans un tunnel (Brimblecombe et al., 2015) (Figure 51a). Pour le BC, six études ont été employées pour la comparaison avec trois études réalisées sur des sites ouverts en bord de route (Imhof et al., 2005 ; Westerdahl et al., 2009 ; Krecl et al., 2018) et trois dans des tunnels (Handler et al., 2008 ; Dai et al., 2015 ; Zhang et al., 2015) (Figure 51b). Les facteurs d'émission obtenus pour les PN et BC dans ces différentes études sont compris respectivement entre $5,8 \times 10^{13}$ #/véh/km et $9,3 \times 10^{14}$ #/véh/km et entre $1,3 \times 10^7$ à $3,5 \times 10^7$ ng/véh/km. Ils se trouvent dans les mêmes ordres de grandeur que ceux estimés à Nantes, dans le tunnel de La Défense et à Lyon. Pour les BTEX, sur les six études utilisées pour la comparaison (Figure 51c), seulement une seule a été exécutée sur un site ouvert en bord de route (Kawashima et al., 2006). Les cinq autres ont été effectuées dans des tunnels (Stemmler et al., 2005 ; Hung-Lung et al., 2007 ; Ho et al., 2009 ; Ait-Helal et al., 2015 ; Zhang et al., 2018). Les facteurs d'émission moyens pour les différentes études ont des valeurs comprises entre $1,5 \times 10^4$ et $5,5 \times 10^4$ µg/véh/km, qui sont également dans les mêmes ordres de grandeur que ceux estimés à Nantes, dans le tunnel de La Défense et à Lyon.

Des différences sont présentes entre nos sites de mesure et ceux de ces études que ce soit au niveau des caractéristiques, des compositions des parcs ou des méthodes d'estimation des facteurs d'émission. Pour les sites ouverts, la plupart ont des caractéristiques similaires à celles de nos deux sites - sites urbains en centre-ville ou rues urbaines, avec pour certains la présence de feux de

circulation (Imhof et al., 2005 ; Rose et al., 2005 ; Krecl et al., 2018) -, seuls Gratmonev et al. (2004) et Kawashima et al (2006) montrent des sites différents avec des mesures réalisées respectivement au bord d'une autoroute et d'une route nationale. Pour les sites confinés, hormis Hung-Lung et al. (2007) qui a réalisé des mesures dans un tunnel autoroutier avec une vitesse moyenne de 110 km/h, leurs caractéristiques sont similaires à celles de notre site de mesure (routiers urbains ou proches d'une zone urbaine avec des limitations de vitesses comprises entre 50 et 80 km/h). Le facteur d'émission calculé par Hung-Lung et al. (2007) pour les BTEX est le plus élevé des six études et correspond aux valeurs les plus élevées mesurées à Nantes (Figure 51c). Cette valeur peut s'expliquer par des conditions de circulation différentes ou par un parc composé de plus de PL et de véhicules essence (Tableau 11).

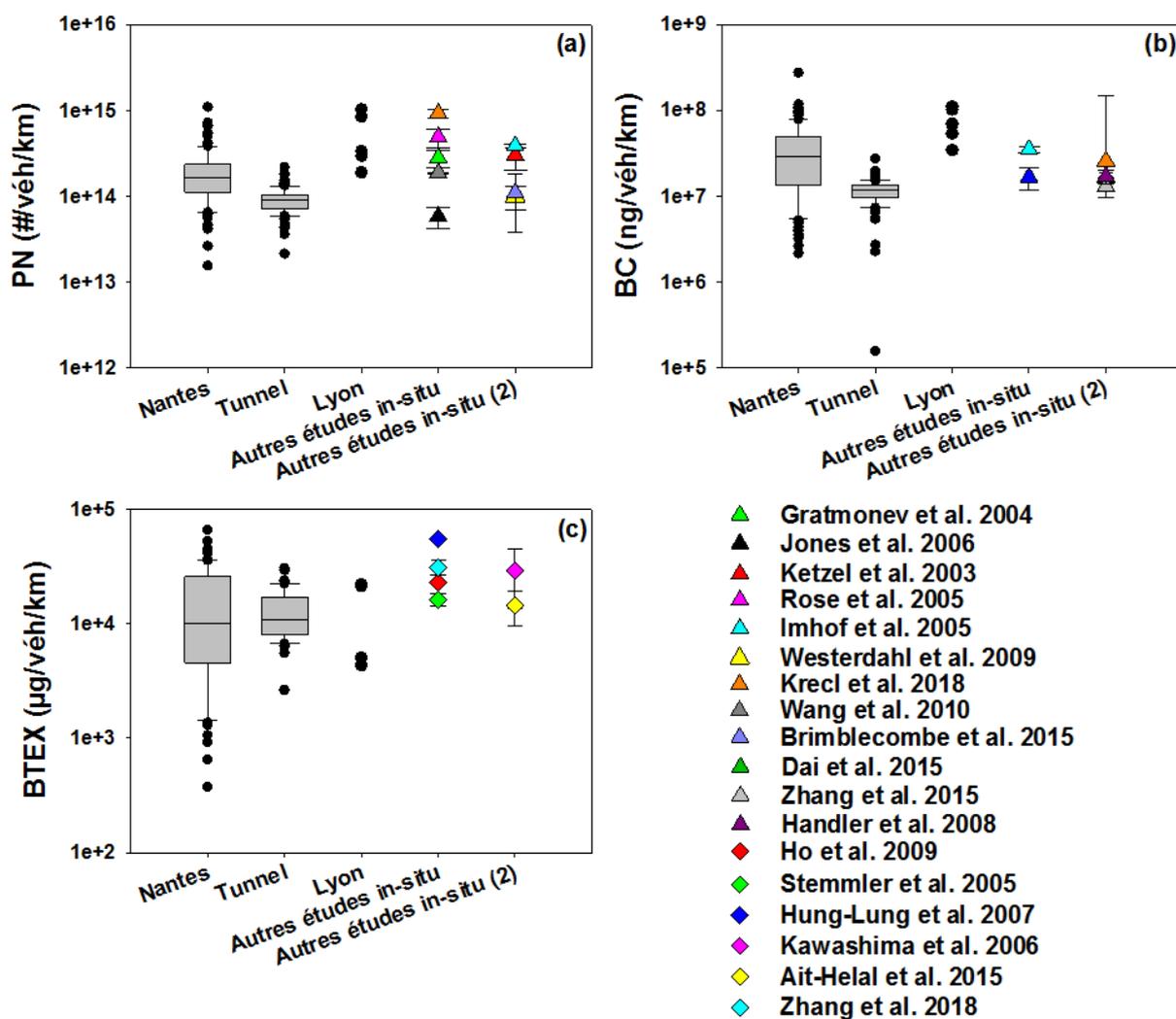


Figure 51. Comparisons des facteurs d'émission des PN, du BC et des BTEX estimés in-situ (Nantes, Tunnel et Lyon) avec des facteurs d'émission estimés par d'autres études (Ketzel et al., 2003 ; Gratmonev et al., 2004 ; Rose et al., 2005 ; Imhof et al., 2005 ; Stemmler et al., 2005 ; Jones et al., 2006 ; Kawashima et al., 2006 ; Hung-Lung et al., 2007 ; Handler et al., 2008 ; Ho et al., 2009 ; Westerdahl et al., 2009 ; Wang et al., 2010 ; Ait-Helal et al., 2015 ; Brimblecombe et al., 2015 ; Dai et al., 2015 ; Zhang et al., 2015 ; Krecl et al., 2018 ; Zhang et al., 2018).

Pour les études réalisées en tunnel, différentes méthodes ont été utilisées pour l'estimation des facteurs d'émission. Dans certains cas, c'est la méthode du CO₂ (Partie 3.3.4.3, Chapitre 1) qui a été

appliquée (Ait-Helal et al., 2015 ; Brimblecombe et al., 2015). Pour les autres études, la méthode en tunnel (Partie 3.3.2 du Chapitre 1) a été appliquée, et dans notre cas, c'est la méthode des NO_x qui a permis le calcul des facteurs d'émission. Ces différentes méthodes d'estimation ne se basent pas sur le même principe, avec notamment la méthode tunnel qui s'appuie sur une différence de concentration entre la sortie et l'entrée du tunnel avec une estimation de la dilution par la vitesse du vent en fonction de la section du tunnel ; et les méthodes CO₂ et NO_x qui se réfèrent à des émissions de polluants qui sont considérés comme des traceurs des émissions du trafic routier pour estimer la dilution entre les émissions à l'échappement et le prélèvement des analyseurs dans l'ambient. Malgré ces différences de méthodes, les facteurs d'émission estimés entre les études se montrent cohérents et les légères différences de valeurs peuvent s'expliquer par la disparité des conditions de circulation ou des compositions de parc.

3.3. Comparaison de la proportion des BTEX

Les proportions des facteurs d'émission des BTEX estimés dans le tunnel et à Nantes sont étudiées en fonction des horaires et des jours de mesure. Pour le tunnel, hormis les facteurs d'émission estimés le samedi 23 juin de 7h à 8h, - période au cours de laquelle aucune concentration d'éthylbenzène et d'o-xylène n'a été mesurée et pour laquelle le trafic est le plus faible -, les proportions des BTEX sont similaires pour toutes les mesures faites sur la semaine (Figure 52). Le toluène est le composé présent en plus grande proportion (entre 40 et 62 %), suivi par le benzène (entre 11 et 34 %), le m+p-xylène (entre 9 et 30 %), l'o-xylène (entre 5 et 10 %) et l'éthylbenzène (entre 0 et 8 %). Ces proportions sont similaires à celles observées dans d'autres études en tunnel (Stemmler et al., 2005 ; Hung-Lung et al., 2007 ; Ho et al., 2009 ; Ait-Helal et al., 2015 ; Zhang et al., 2018), qui ont également réalisé des mesures de facteurs d'émission de BTEX, avec des proportions plus grande pour le toluène (entre 35 et 53 %), suivi par le m+p-xylène (entre 15 et 29 %) et le benzène (entre 11 et 19 %) (Figure 59 dans l'Annexe F).

Pour Nantes, les proportions des facteurs d'émission sur la semaine de mesure varient selon les jours de la semaine ou les horaires. Du lundi au mercredi, hormis quelques périodes (le lundi de 18h30 à 19h30, et le mercredi de 11h à 12h et de 20h30 à 21h30), les proportions de toluène sont plus faibles (entre 16 et 47 %) que celles du benzène (entre 21 et 52 %). Alors que du jeudi au dimanche, c'est le toluène qui est présent en plus grande proportion (entre 29 et 47 %), suivi du benzène (entre 5 et 32 %) et du m+p-xylène (entre 17 et 33 %) (Figure 53). Ces proportions sur un site ouvert sont plus variables qu'en tunnel car les facteurs d'émission mesurés à Nantes sont plus dépendants des autres sources d'émission notamment pour le benzène. Les plus fortes proportions de benzène mesurées en début de semaine peuvent s'expliquer par des émissions plus importantes venant des autres sources, donc les pourcentages appliqués aux concentrations des BTEX mesurées sur le site de trafic à Nantes, afin d'éliminer les concentrations de fond urbain (Partie 2.1.2 du Chapitre 4), ne doivent pas toujours correspondre à la réalité en fonction des conditions environnementales.

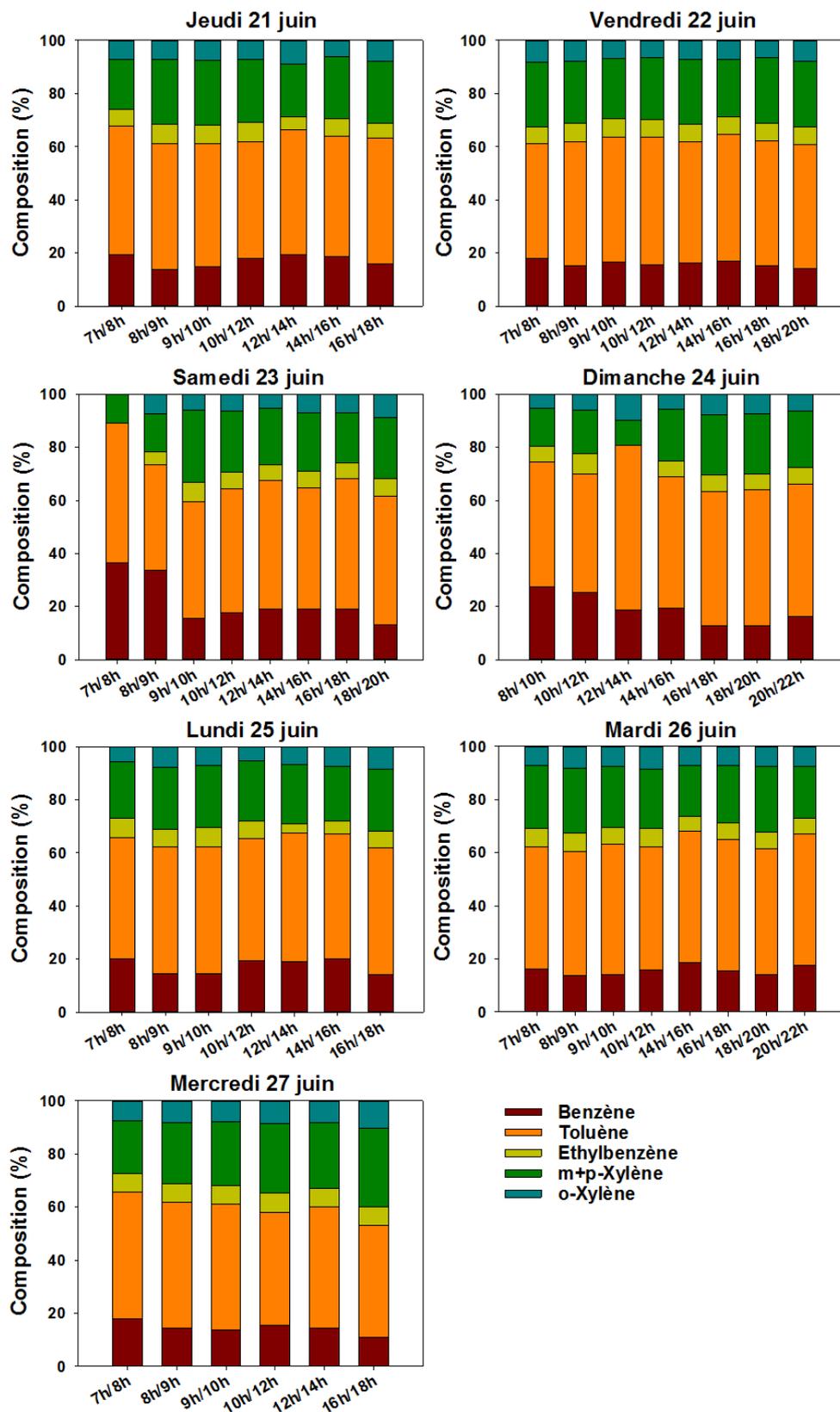


Figure 52. Proportions des facteurs d'émission des BTEX pour les différents jours de mesure dans le tunnel de La Défense.

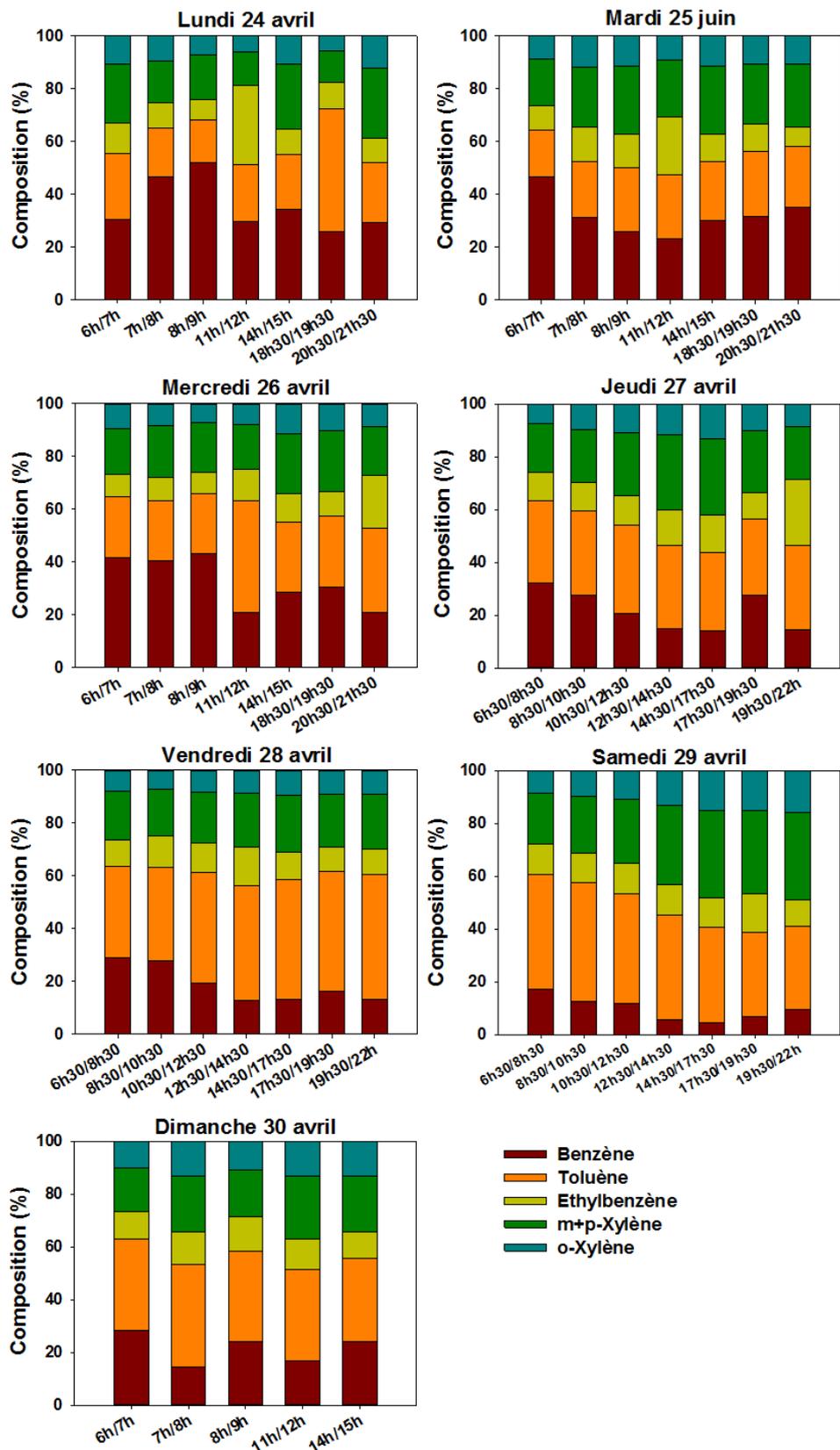


Figure 53. Proportion des facteurs d'émission des BTEX pour les différents jours de mesure à Nantes.

4. Linéarité des facteurs d'émission

4.1. Linéarité entre BTEX et C9-C11

L'impact d'autres sources d'émission sur le site ouvert de Nantes se confirme avec les corrélations étudiées entre les facteurs d'émission des BTEX et des alcanes COV (de C9 à C11) estimés à Nantes (points verts) et dans le tunnel de La Défense (points rouges) avec une corrélation plus significative qui est observée dans le milieu confiné (tunnel), avec un $R^2=0,64$, par rapport au milieu ouvert (Nantes), dont le coefficient de corrélation est $R^2=0,56$ (Figure 54).

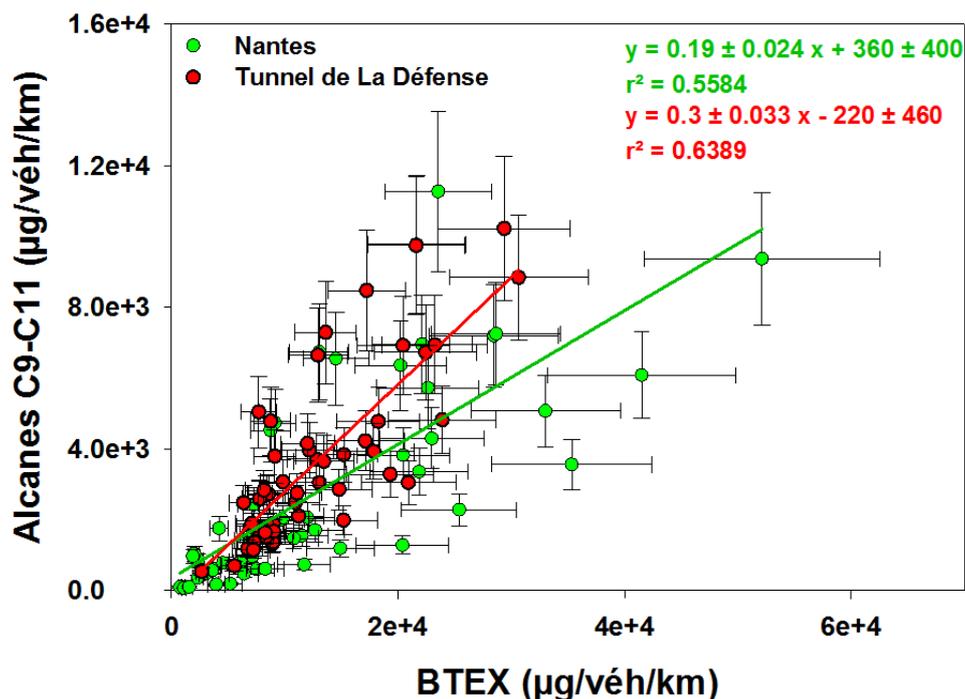


Figure 54. Corrélations entre les facteurs d'émission des BTEX et des COV alcanes pour Nantes et le tunnel de La Défense.

4.2. Linéarité entre BC et PN

Contrairement aux COV, les PN et les BC montrent une bonne corrélation entre les deux polluants pour les trois sites de mesure ($R^2=0,73$) (Figure 55). Et comme le BC peut être considéré comme un traceur des émissions du trafic routier (Reche et al., 2011 ; Pant et al., 2013), cette corrélation, qui a également été observée dans de précédentes études in-situ (Rodríguez et al., 2008 ; Cheng et al., 2014), indique que les émissions de PN mesurées sur les trois sites de mesure proviennent principalement de l'échappement des véhicules routiers.

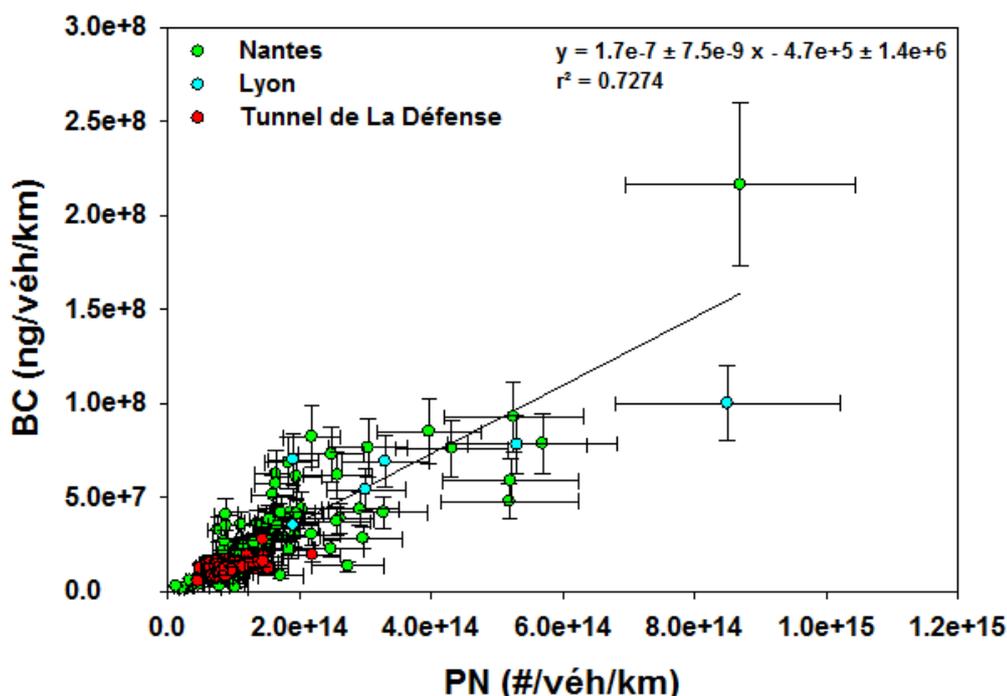


Figure 55. Corrélations entre les facteurs d'émission de PN et de BC pour les trois sites de mesure.

5. Conclusion

De manière générale, pour les PN, le BC, les BTEX et les alcanes de C9 à C11, les facteurs d'émission estimés dans le tunnel révèlent des distributions plus regroupées autour d'une valeur médiane que ceux de Nantes. Les facteurs d'émission calculés à Nantes et à Lyon pour les PN et le BC ont des valeurs médianes qui sont supérieures à celles du tunnel. Cela peut être dû à des parcs composés de véhicules plus anciens à Nantes, et, à des mesures uniquement effectuées le matin lors des démarrages à froid à Lyon. Pour les alcanes de C12 à C22, leurs facteurs d'émission ont été mesurés à Lyon et dans le tunnel, avec des valeurs principalement plus élevées à Lyon qui peuvent être dues au démarrage à froid.

Le nombre de véhicules étudiés sur le banc est plus restreint que les données in-situ. Cependant, les estimations sur les trois sites rapportent des facteurs d'émission par véhicule cohérents avec ceux mesurés dans des conditions expérimentales contrôlées. Cette comparaison rapporte que même si un parc roulant est caractérisé par une forte proportion de véhicules récents, les facteurs d'émission calculés pour les PN et le BC pour des conditions réelles sont similaires à ceux mesurés pour des anciens véhicules très polluants. Pour les BTEX, les facteurs d'émission in-situ sont plus élevés que ceux déterminés au banc pour les véhicules Euro 4 à 6 Diesel et essence, et sont du même ordre de grandeur que ceux estimés pour les véhicules Euro 3 Diesel et Euro 5 essence. Pour les alcanes de C12 à C22 mesurés à Lyon et dans le tunnel, les facteurs d'émission in-situ sont plus élevés que ceux mesurés sur le banc à rouleau, ce qui est dû soit à des véhicules testés sur le banc qui ont de faibles émissions pour ces composés, soit à des conditions d'échantillonnage qui diffèrent entre les deux méthodes (température de prélèvement et dilution) et qui induisent des impacts sur les émissions.

Les facteurs d'émission des PN, du BC et des BTEX ont également été comparés avec ceux issus de précédentes études in-situ. Ces études ont été effectuées d'une part sur des sites ouverts en bord de route, et d'autre part dans des tunnels. Pour les trois polluants, les comparaisons montrent des facteurs d'émission cohérents entre nos estimations et celles des précédentes études pour des sites avec des caractéristiques similaires et pour certaines compositions de parc et méthodes de calcul différentes.

Les facteurs d'émission des BTEX estimés dans le tunnel montrent des proportions similaires avec un pourcentage plus important de toluène, ce composé étant le plus émis des BTEX à l'échappement des véhicules routiers. Contrairement à Nantes où les proportions moyennes horaires des facteurs d'émission sont plus variables, avec notamment des jours où le benzène est le composé le plus présent, en raison d'autres sources d'émission sur le site ouvert. Ceci implique que les pourcentages, appliqués aux concentrations de BTEX mesurées sur un site ouvert pour éliminer les concentrations de fond des polluants, peuvent dépendre des conditions environnementales et ne sont pas toujours équivalents à la valeur qui a été choisie dans ce travail (Partie 2.1.2 du Chapitre 4).

Les corrélations entre les facteurs d'émission des BTEX et des alcanes de C9 à C11 révèlent une tendance linéaire plus significative dans le tunnel comparé à Nantes. Pour les PN et le BC, pour les trois sites la corrélation entre leurs facteurs d'émission est bonne. Les sources d'émission, autre que le trafic routier, influencent les émissions des BTEX et des C9 à C11 ce qui n'est pas le cas pour les émissions de BC et de PN qui sont principalement issues de l'échappement des véhicules routiers.

Conclusion générale

Ces travaux ont permis de mettre en œuvre une méthodologie de mesure in-situ des quantités de polluants émis par le trafic routier en zone urbaine et d'estimation de leurs facteurs d'émission pour un parc roulant réel dans des conditions de circulation réelles. Les mesures se sont concentrées sur des polluants non-réglés qui sont peu étudiés lors de mesures d'émission, notamment in-situ. En plus de l'estimation des facteurs d'émission pour une vingtaine de polluants dont les PN, le BC, les BTEX, et certains composés carbonyles et aliphatiques, des analyses ont été effectuées sur l'évolution de certains composés dans l'atmosphère (notamment les PN et les COV), sur l'impact d'autres sources d'émission que le trafic routier sur les sites de mesure ouverts, et sur l'impact des conditions de circulation et des compositions de parc sur les émissions.

Les mesures ont été réalisées sur trois sites, ayant des caractéristiques différentes : deux sites ouverts en bord de route dans le centre-ville de Nantes et dans une rue urbaine à Lyon, et un site confiné proche d'une zone urbaine, en l'occurrence le tunnel de La Défense à Nanterre. Les parcs en circulation et les conditions de conduite ont été caractérisés précisément sur les différents sites à l'aide de matériel d'enregistrement des plaques d'immatriculation des véhicules, de comptage du trafic et de mesure des vitesses moyennes de circulation. Ces parcs observés rapportent des différences dans leurs compositions notamment avec plus de véhicules récents dans le tunnel comparé à Nantes et à Lyon. Ces données ont servi pour l'estimation des facteurs d'émission ainsi que pour l'analyse des impacts de la composition du parc sur les émissions polluantes.

Ces mesures ont permis d'obtenir un nombre conséquent de facteurs d'émission pour tous les polluants étudiés représentant des émissions pour un large éventail de conditions de circulation urbaines et péri-urbaines avec notamment des périodes de congestion avec des arrêts et des redémarrages, de congestion à faibles vitesses, de circulation urbaine et péri-urbaine denses, avec des vitesses moyennes comprises entre 15 et 30 km/h, et fluides, pour des vitesses allant de 30 à 70 km/h en moyenne. Mais également pour une large gamme de compositions de parc, comprenant un nombre important de catégories de véhicules présentes dans des conditions réelles de fonctionnement et prenant en compte les différences de comportement des conducteurs ainsi que l'état des véhicules. Toutes ces données pourront permettre d'approfondir les connaissances sur les émissions véhiculaires dans des conditions réelles de circulation et d'enrichir les bases de données des modèles d'émission, plus particulièrement pour les données d'émissions des composés non-réglés.

Les impacts des compositions de parc ont été étudiés à l'aide d'une analyse de variance (ANOVA) permettant de mettre en évidence les différences entre les facteurs d'émission estimés pour un parc global et les compositions de parc, définies par différentes catégories de véhicules (PL et bus, VUL, VP Diesel de normes pré-Euro à Euro 3, VP Diesel de norme Euro 4 et VP Diesel de normes Euro 5 et 6, VP essence de normes pré-Euro à Euro 3 et VP essence de normes Euro 4 à

Euro 6). Le nombre plus important de PL et bus dans le tunnel de La Défense induit des émissions plus élevées de PN, BC, formaldéhyde et acétaldéhyde. Ces impacts ne sont pas observés à Nantes, où les PL et bus sont moins observés. À Nantes, des pourcentages élevés d'anciens VP essence et Diesel (de normes pré-Euro à Euro 3) induisent des émissions plus importantes de toluène, d'éthylbenzène, de m+p-xylène et d'o-xylène, contrairement au site du tunnel qui est caractérisé par un parc plus récent. Pour les deux sites, des pourcentages plus élevés de VP essence de normes Euro 4 à Euro 6 conduisent à des surémissions de BC, de toluène, d'éthylbenzène et de m+p-xylène. Cependant, le fait que certaines catégories de véhicules soient présentes en plus faibles quantités par rapport à d'autres ne permet pas de faire ressortir leurs impacts sur les émissions de polluants, alors que ces véhicules sont d'importants émetteurs de certains polluants. C'est notamment le cas pour les anciens véhicules Diesel (de normes pré-Euro à Euro 3) qui sont des gros émetteurs de particules et de carbone suie mais dont les impacts sur les émissions de ces deux polluants ne sont pas montrés par les analyses ANOVA.

Des analyses spécifiques ont été réalisées sur les PN afin de mettre en évidence l'impact de la distance de prélèvement et des transformations physico-chimiques sur la mesure des concentrations. Dans l'air ambiant, un prélèvement plus éloigné de la source d'émission montre des mesures de concentrations de particules en nombre plus faibles et des tailles de particules plus élevées dues au développement de phénomènes de coagulation et de condensation, provoqués par l'éloignement de la source d'émission. Pour éviter une sous-estimation des émissions dans l'air ambiant, il faut se placer au plus près de la source d'émission. Dans le tunnel, les corrélations étudiées entre les concentrations de BC et de PN pour différentes gammes de taille révèlent que les particules mesurées inférieures à 60 nm et supérieures à 100 nm ne sont pas toutes issues directement de l'échappement. Pour les plus petites particules (< 60 nm), elles résultent de la nucléation de composés gazeux, qui sont des COVI émis par le trafic routier et mesurés en grande quantité dans le tunnel. Pour les plus grandes particules (> 100 nm), elles sont aussi issues de la coagulation et de la condensation de particules déjà présentes dans le tunnel et émises par le trafic routier. Ces différents phénomènes de transformations physico-chimiques sont favorisés par la turbulence atmosphérique, par un temps de résidence plus long des particules dans l'atmosphère ou par la présence plus ou moins importante de COVI. Afin de supporter ces hypothèses, des études seront menées dans le futur sur ces différents phénomènes.

Des compositions de parc avec plus de véhicules récents et l'absence de l'influence du démarrage à froid des véhicules sur le site du tunnel de La Défense conduisent à des facteurs d'émission moins élevés qu'à Nantes et à Lyon pour tous les polluants étudiés. Les facteurs d'émission estimés in-situ sont cohérents avec ceux mesurés sur banc à rouleau pour différentes catégories de VP essence et Diesel de normes Euro 1 à Euro 6. Cependant, en fonction des polluants certaines variantes sont observées. Pour les PN et le BC, les facteurs d'émission in-situ sont dans les mêmes ordres de grandeur que les facteurs mesurés sur banc à rouleau pour les véhicules Diesel anciens (de normes Euro 1 à Euro 3) qui sont des forts émetteurs pour ces deux polluants. Pour les alcanes de C9 à C11, les facteurs d'émission estimés in-situ sont similaires à ceux

mesurés sur banc à rouleau pour les quatre véhicules (Euro 3 et Euro 5 Diesel et essence). Contrairement aux alcanes de C12 à C22 où les facteurs mesurés sur le banc pour les quatre mêmes véhicules sont 2 à 400 fois plus faibles que les facteurs d'émission in-situ. Cette différence peut s'expliquer par des véhicules testés faiblement émetteurs de ces composés. Ou alors, les conditions d'échantillonnage (température de prélèvement et dilution) sont différentes sur banc et in-situ. La concentration des COVI étant en effet plus forte lorsque la température de prélèvement est élevée, ou plus faible lorsque la dilution est basse.

Les corrélations étudiées entre les facteurs d'émissions estimés pour les différents COV (BTEX et alcanes de C6 à C22) ainsi que l'analyse des proportions des BTEX sur les sites du tunnel et de Nantes montrent une influence non négligeable, lors de certaines périodes de mesure, d'autres sources d'émission que le trafic routier sur le site de Nantes. Plus particulièrement, des facteurs d'émission élevés de benzène et des alcanes de C9 à C11 sont parfois observés à Nantes. Ce qui implique que dans certains cas, lors de mesures sur un site ouvert et pour ces composés, les facteurs d'émission calculés sont surestimés et ne sont pas représentatifs des émissions des véhicules. Et, lors de l'utilisation de la méthode des NO_x pour le calcul des facteurs d'émissions des COV, les pourcentages appliqués aux concentrations mesurées, permettant d'éliminer les concentrations de fond urbain, ne correspondent pas toujours à la valeur qui a été choisie dans ces travaux et doivent s'adapter aux conditions environnementales. Dans le tunnel, les facteurs d'émission estimés pour les COV représentent des émissions principalement issues de l'échappement des véhicules routiers et peuvent être considérés comme plus représentatifs des émissions véhiculaires par rapport aux estimations sur site ouvert.

Le BC étant considéré comme un traceur des émissions du trafic routier, les bonnes corrélations entre les facteurs d'émission des PN et du BC estimés sur les trois sites de mesure indique que ces facteurs sont cohérents et représentatifs des émissions polluantes réelles d'un parc automobile en circulation pour différentes conditions de conduite.

Pour les COVI, la méthodologie a permis d'estimer des facteurs d'émission pour les alcanes de C12 à C22 dans le tunnel et sur le site de Lyon. Cependant, il est nécessaire d'effectuer des travaux d'approfondissement sur l'étude des impacts des conditions d'échantillonnage sur la mesure des émissions sur banc à rouleau et in-situ afin de vérifier la cohérence des facteurs estimés in-situ. Mais également d'effectuer des mesures sur banc à rouleau pour un plus grand nombre de catégorie de VP afin de vérifier les niveaux d'émission de ces véhicules et de les comparer avec ceux estimés in-situ.

Annexe A : COPERT

COPERT (COmputer Programme to calculate Emissions from Road Transport) est un logiciel qui permet de calculer les émissions de polluants de véhicules standards de l'Union Européenne (UE). Son développement est coordonné par l'Agence Européenne pour l'Environnement (AEE), dans le cadre des activités du centre thématique européen pour l'atténuation de la pollution atmosphérique et du changement climatique. La méthode COPERT fait partie du guide EMEP (European Monitoring and Evaluation Programme)/AEE des inventaires des émissions de polluants atmosphériques pour le calcul des émissions de polluants atmosphériques et est conforme aux Directives 2006 du GIEC pour le calcul des émissions de gaz à effet de serre. Le logiciel contient des facteurs d'émission pour plus de 450 types de véhicules tels que les voitures particulières, les véhicules utilitaires légers et les poids lourds (camions, bus et cars). Ces facteurs d'émission sont estimés pour différents modes d'utilisation du véhicule qui sont notamment les conditions de conduite urbaines, routières ou autoroutières. Pour les conditions de conduite urbaines, la phase de réchauffement du moteur est prise en compte car elle entraîne des émissions différentes (émissions de démarrage à froid) de celles en fonctionnement stabilisé thermiquement du moteur (émissions à chaud)¹.

Tableau 17. Exemple de données d'entrée COPERT pour le calcul des facteurs d'émission de NO_x

Catégories	Carburant	Segment	Norme EURO	Population [n]	Activité moyenne [km/an]	Vitesse [km/h]
Passenger Cars	Gasoline	Small	PRE ECE	0	0	25
Passenger Cars	Gasoline	Small	Euro 1	1	4077	25
Passenger Cars	Gasoline	Small	Euro 2	2	5055	25
Passenger Cars	Gasoline	Small	Euro 3	1	6820	25
Passenger Cars	Gasoline	Small	Euro 4	2	8508	25
Passenger Cars	Gasoline	Small	Euro 5	1	11007	25
Passenger Cars	Gasoline	Small	Euro 6	5	13309	25
Passenger Cars	Gasoline	Medium	PRE ECE	0	0	25
Passenger Cars	Gasoline	Medium	Euro 1	2	5398	25
Passenger Cars	Gasoline	Medium	Euro 2	4	6672	25
Passenger Cars	Gasoline	Medium	Euro 3	5	8995	25
Passenger Cars	Gasoline	Medium	Euro 4	0	11319	25
Passenger Cars	Gasoline	Medium	Euro 5	2	14555	25
Passenger Cars	Gasoline	Medium	Euro 6	3	17592	25

¹ <https://www.emisia.com/utilities/copert/>

Passenger Cars	Gasoline	Large-SUV-Executive	PRE ECE	0	0	25
Passenger Cars	Gasoline	Large-SUV-Executive	Euro 1	0	5610	25
Passenger Cars	Gasoline	Large-SUV-Executive	Euro 2	0	7069	25
Passenger Cars	Gasoline	Large-SUV-Executive	Euro 3	0	9523	25
Passenger Cars	Gasoline	Large-SUV-Executive	Euro 4	1	12000	25
Passenger Cars	Gasoline	Large-SUV-Executive	Euro 5	0	15454	25
Passenger Cars	Gasoline	Large-SUV-Executive	Euro 6	3	18619	25
Passenger Cars	Diesel	Mini	Euro 4	10	15608	25
Passenger Cars	Diesel	Mini	Euro 5	5	17572	25
Passenger Cars	Diesel	Mini	Euro 6	5	19	25
Passenger Cars	Diesel	Small	Euro 1	1	10957	25
Passenger Cars	Diesel	Small	Euro 2	3	12152	25
Passenger Cars	Diesel	Small	Euro 3	7	13560	25
Passenger Cars	Diesel	Small	Euro 4	16	15236	25
Passenger Cars	Diesel	Small	Euro 5	12	17146	25
Passenger Cars	Diesel	Small	Euro 6	17	18122	25
Passenger Cars	Diesel	Large-SUV-Executive	Euro 1	0	11376	25
Passenger Cars	Diesel	Large-SUV-Executive	Euro 2	1	12489	25
Passenger Cars	Diesel	Large-SUV-Executive	Euro 3	2	14286	25
Passenger Cars	Diesel	Large-SUV-Executive	Euro 4	2	15807	25
Passenger Cars	Diesel	Large-SUV-Executive	Euro 5	2	17770	25
Passenger Cars	Diesel	Large-SUV-Executive	Euro 6	2	18788	25
Light Commercial Vehicles	Diesel	N1-II	Conventional	0	2313	25
Light Commercial Vehicles	Diesel	N1-II	Euro 1	0	5012	25
Light Commercial Vehicles	Diesel	N1-II	Euro 2	0	7490	25
Light Commercial Vehicles	Diesel	N1-II	Euro 3	2	10979	25
Light Commercial Vehicles	Diesel	N1-II	Euro 4	9	15840	25
Light Commercial Vehicles	Diesel	N1-II	Euro 5	13	21249	25
Light Commercial Vehicles	Diesel	N1-II	Euro 6	23	25636	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid <=7,5 t	Euro I	0	846	25

Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid <=7,5 t	Euro II	0	4475	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid <=7,5 t	Euro III	0	11207	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid <=7,5 t	Euro IV	0	19789	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid <=7,5 t	Euro V	0	32935	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid <=7,5 t	Euro VI	0	50409	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 7,5 - 12 t	Euro I	0	903	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 7,5 - 12 t	Euro II	0	4404	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 7,5 - 12 t	Euro III	0	11191	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 7,5 - 12 t	Euro IV	1	19733	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 7,5 - 12 t	Euro V	1	33797	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 7,5 - 12 t	Euro VI	0	53438	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 14 - 20 t	Euro I	0	952	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 14 - 20 t	Euro II	0	4598	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 14 - 20 t	Euro III	0	11195	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 14 - 20 t	Euro IV	0	19669	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 14 - 20 t	Euro V	0	33306	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 14 - 20 t	Euro VI	1	50609	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 20 - 26 t	Euro I	0	983	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 20 - 26 t	Euro II	0	4800	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 20 - 26 t	Euro III	0	11470	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 20 - 26 t	Euro IV	0	19795	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 20 - 26 t	Euro V	0	33762	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 20 - 26 t	Euro VI	0	50832	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 26 - 28 t	Conventional	0	0	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 26 - 28 t	Euro I	0	995	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 26 - 28 t	Euro II	0	4999	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 26 - 28 t	Euro III	0	11940	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 26 - 28 t	Euro IV	0	19884	25

Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 26 - 28 t	Euro V	2	34084	25
Heavy Duty Trucks	Diesel	Rigid 26 - 28 t	Euro VI	0	50947	25
Buses	Diesel	Urban Buses Midi <=15 t	Euro IV	0	27800	25
Buses	Diesel	Urban Buses Midi <=15 t	Euro V	0	38074	25
Buses	Diesel	Urban Buses Midi <=15 t	Euro VI	0	45582	25
Buses	Diesel	Urban Buses Articulated >18 t	Conventional	0	2000	25
Buses	Diesel	Urban Buses Articulated >18 t	Euro I	0	5823	25
Buses	Diesel	Urban Buses Articulated >18 t	Euro II	0	11357	25
Buses	Diesel	Urban Buses Articulated >18 t	Euro III	0	19120	25
Buses	Diesel	Urban Buses Articulated >18 t	Euro IV	1	27763	25
Buses	Diesel	Urban Buses Articulated >18 t	Euro V	1	37992	25
Buses	Diesel	Urban Buses Articulated >18 t	Euro VI	0	45633	25

Annexe B : Corrélations entre les concentrations des polluants mesurées à Nantes

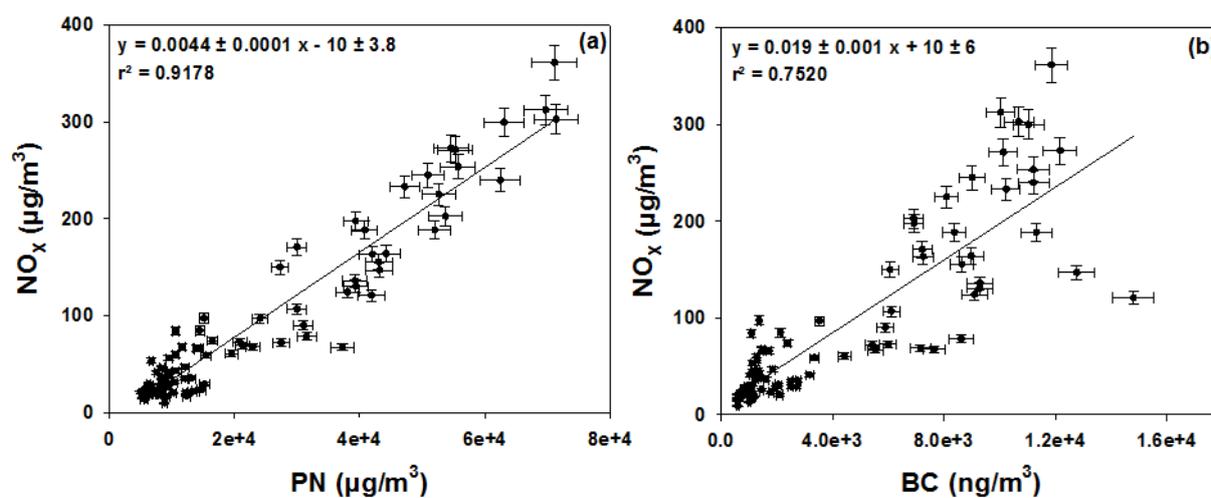


Figure 56. Corrélations entre les concentrations de NO_x et de PN et de BC mesurées pour la semaine de mesure à Nantes.

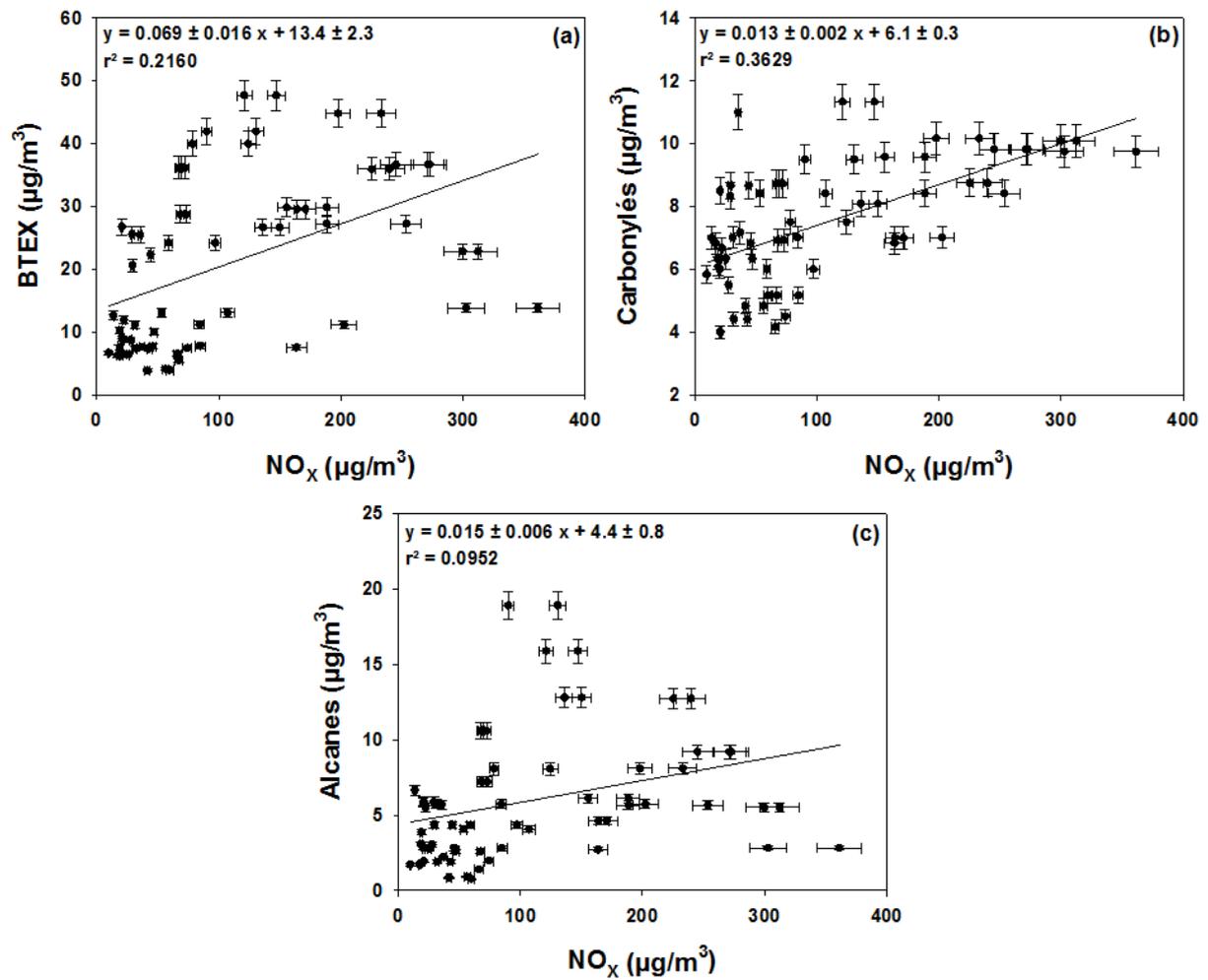


Figure 57. Corrélations entre les concentrations de NO_x et de BTEX, de composés carbonylés, et des alcanes mesurées pour la semaine de mesure à Nantes.

Annexe C : Distribution en taille des particules mesurées avec le FMPS sur la semaine de mesure dans le tunnel

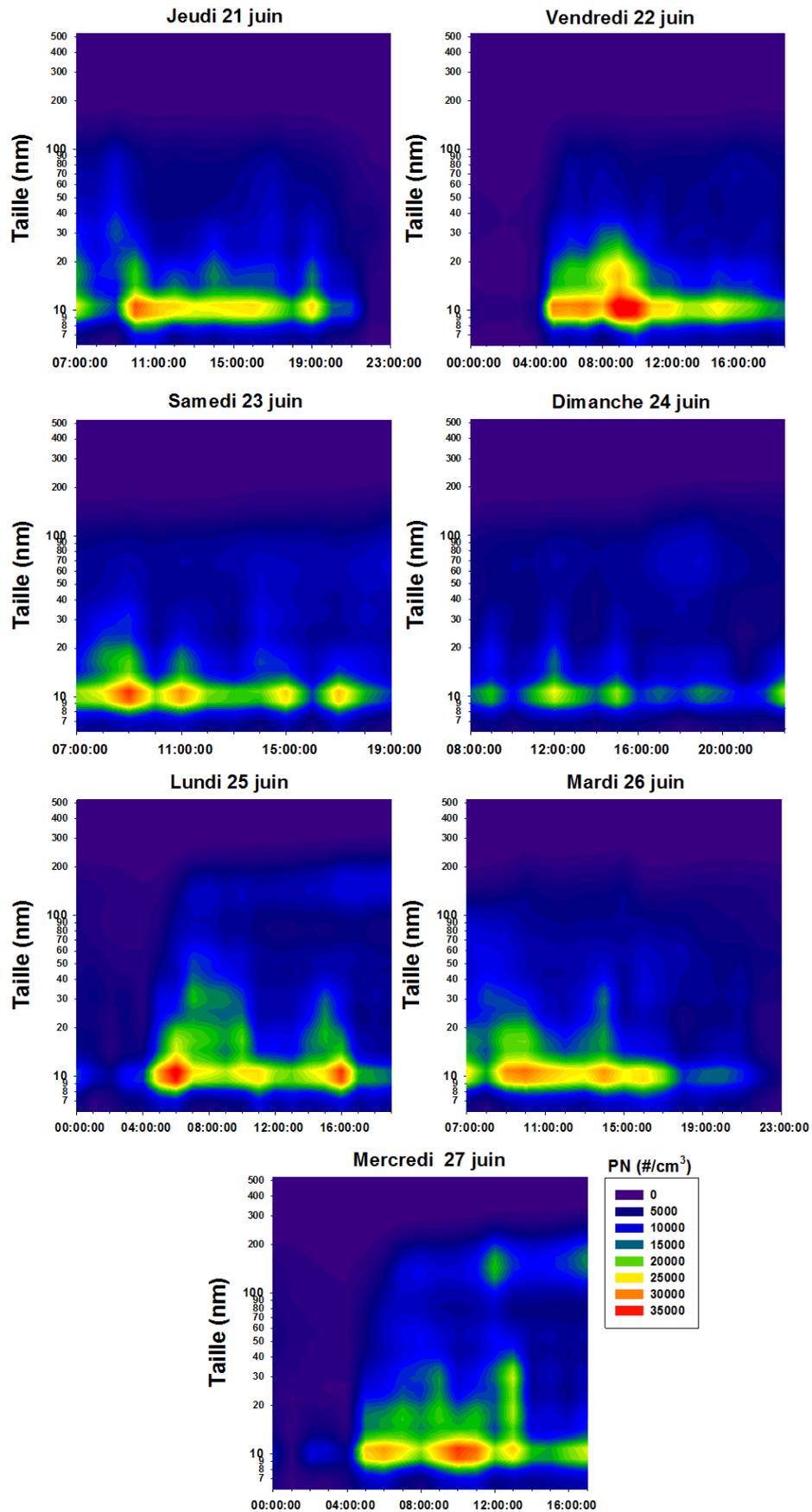


Figure 58. Distribution 3D des concentrations de particules en nombre mesurées avec le FMPS pour les 7 jours de mesure dans le tunnel de La Défense.

Annexe D : Euro 6 unregulated pollutant characterization and statistical analysis of the impact of aftertreatment devices and driving conditions on recent passenger cars emissions

Euro 6 unregulated pollutant characterization and statistical analysis of the impact of aftertreatment devices and driving conditions on recent passenger cars emissions

Simon Martinet^a, Yao Liu^{a,*}, Cédric Louis^{a,b}, Patrick Tassel^a, Pascal Perret^a, Agnès Chaumond^a,
Michel André^a

^aTransport and Environment Laboratory, IFSTTAR, 69675 Bron, France

^bFrench Environment and Energy Management Agency, ADEME, 49004 Angers, France

* Corresponding author: yao.liu@ifsttar.fr, Phone: +33 472 14 24 75, Fax: +33 472 37 68 37;
Address: 25 avenue François Mitterrand, 69675 Bron, France

Référence :

Martinet, S., Liu, Y., Louis, C., Tassel, P., Perret, P., Chaumond, A., André, M., 2017. Euro 6 Unregulated Pollutant Characterization and Statistical Analysis of After-Treatment Device and Driving-Condition Impact on Recent Passenger-Car Emissions. *Environ. Sci. Technol.* 51, 5847–5855.
<https://doi.org/10.1021/acs.est.7b00481>

Euro 6 Unregulated Pollutant Characterization and Statistical Analysis of After-Treatment Device and Driving-Condition Impact on Recent Passenger-Car Emissions

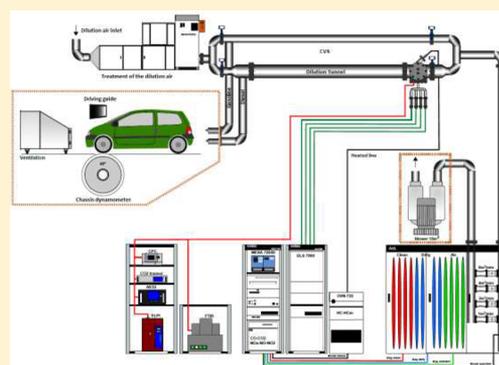
Simon Martinet,[†] Yao Liu,^{*,†} Cédric Louis,^{†,‡} Patrick Tassel,[†] Pascal Perret,[†] Agnès Chaumond,[†] and Michel André[†]

[†]Transport and Environment Laboratory, IFSTTAR, 69675 Bron, France

[‡]French Environment and Energy Management Agency, ADEME, 49004 Angers, France

S Supporting Information

ABSTRACT: This study aims to measure and analyze unregulated compound emissions for two Euro 6 diesel and gasoline vehicles. The vehicles were tested on a chassis dynamometer under various driving cycles: Artemis driving cycles (urban, road, and motorway), the New European Driving Cycle (NEDC) and the World Harmonized Light-Duty Test Cycle (WLTC) for Europe, and world approval cycles. The emissions of unregulated compounds (such as total particle number (PN) (over 5.6 nm); black carbon (BC); NO₂; benzene, toluene, ethylbenzene, and xylene (BTEX); carbonyl compounds; and polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs)) were measured with several online devices, and different samples were collected using cartridges and quartz filters. Furthermore, a preliminary statistical analysis was performed on eight Euro 4–6 diesel and gasoline vehicles to study the impacts of driving conditions and after-treatment and engine technologies on emissions of regulated and unregulated pollutants. The results indicate that urban conditions with cold starts induce high emissions of BTEX and carbonyl compounds. Motorway conditions are characterized by high emissions of particle numbers and CO, which mainly induced by gasoline vehicles. Compared with gasoline vehicles, diesel vehicles equipped with catalyzed or additive DPF emit fewer particles but more NO_x and carbonyl compounds.



1. INTRODUCTION

Road transportation (more particularly, light-duty vehicles) is one of the main causes of air pollution. In urban areas, road traffic represents the main source of emissions of regulated pollutants as well as unregulated pollutants, such as benzene, toluene, ethylbenzene, and xylene (BTEX), polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs), and carbonyl compounds.¹ Several of these pollutants have an important role in climate change, while others could lead to serious negative impacts on human health.^{2–4}

To reduce road traffic emissions, the European Union is imposing increasingly stringent emission limits for regulated compounds. Various aftertreatment devices (such as the diesel oxidation catalyst (DOC), the diesel particulate filter (DPF), the selective catalytic reduction (SCR), or NO_x trap and the three-way catalyst (TWC)) are being used to bring the pollutant emissions below regulatory levels.^{5–7} Although these technologies make it possible to significantly reduce regulated compound emissions, they affect some emissions of pollutants. Catalyzed or additive DPF reduce particle mass emission, with efficiency near 100%, but they might induce an increase of fine and ultrafine particle emissions and affect NO₂, volatile organic compounds, PAH, BTEX, and black carbon (BC) emissions.^{8–15} The actual impacts of these after-treatment

technologies on unregulated pollutant emissions are not fully known.^{13,16–20} The recent study by Louis et al.¹⁴ showed that catalyzed DPF vehicles emitted about 3 to 10 times more carbonyl compounds and particles than additive DPF vehicles, respectively, during urban driving cycles, while additive DPF vehicles emitted 2 and 5 times more BTEX and carbonyl compounds during motorway driving cycles.

Vehicle emissions are also affected by driving conditions. In the case of diesel vehicles, urban driving conditions or high engine RPM (revolutions per minute) involves high emissions of CO, NO_x, and HC compared to a steady speed profile or low engine speed.^{21–23} For gasoline vehicles, cold start and high-speed conditions induce high emissions of the same compounds.^{21–25} For urban driving conditions, diesel vehicles emit more NO_x during a hot start compared to a cold start.^{13,14} Various studies also show that a cold start results in significant emissions of BC, PAHs, BTEX, and aldehyde^{9,12,14,21,24–28} compared to urban hot starts. A vehicle running at low speed produces high PAH and carbonyl compound emissions, while a

Received: January 25, 2017

Revised: April 13, 2017

Accepted: April 20, 2017

Published: April 20, 2017

vehicle running at high speed produces high particulate emissions.^{12,26–28} Emission factors of unregulated compounds reported in the aforementioned papers have been measured with Euro 1 to Euro 5 diesel and gasoline vehicles with a relatively small number of vehicle samples: six Euro 4–5 vehicles by Louis et al.,¹⁵ four Euro 2–4 vehicles by Rehn,²⁵ and 25 Euro 1–3 vehicles by Caplain et al.²⁶ Emissions of unregulated compounds by Euro 6 vehicles have not been yet measured. Moreover, unregulated compound emission factors were often measured under Artemis driving conditions. Impacts of the World Harmonized Light-Duty Test Cycle (WLTC, future world approved driving cycle) on such emissions have not been studied to date.

In this paper, two recent in-use Euro 6 vehicles (diesel with catalyzed DPF and NO_x trap and gasoline direct injection (DI) with propulsion engine) were tested under Artemis urban, road, and motorway; WLTC; and New European Driving Cycle (NEDC) driving cycles. Unregulated compound emissions were measured to improve knowledge on their emissions under different driving conditions and supplement the emission factor database used by diverse emission models. Furthermore, Clairotte et al. used the principal component analysis (PCA) statistical analysis method for two mopeds³¹ and two light-duty flexible-fuel vehicles¹⁹ to investigate the impact of driving conditions on vehicle emissions. This method makes it possible to analyze the effects of low temperature on cold start gaseous emissions and deeply characterize online emission patterns. Our research thus used preliminary PCA to study the impacts of technologies and driving conditions on regulated and unregulated emissions of pollutants from eight Euro 4–6 diesel and gasoline vehicles tested in this research and previous studies.¹⁵

2. MATERIALS AND METHODS

2.1. Characteristics of the Vehicles. One Euro 6 gasoline vehicle with a direct injection system, TWC, and propulsion engine (Vehicle 1) and one Euro 6 diesel vehicle with DOC, catalyzed DPF, and NO_x trap (Vehicle 2) were tested. The propulsion engine was located at the rear of the rear-wheel drive vehicle. The technical characteristics of the two Euro 6 vehicles are given in Table 1.

2.2. Experimental Setup. Vehicle emissions were measured on the chassis dynamometer at the Transport and Environment Laboratory (LTE) of the French Institute of Science and Technology for Transport, Development, and Networks (IFSTTAR). Exhaust gas was collected at the outlet of the tailpipe and sent through the constant volume sampler

Table 1. Technical Characteristics of Tested Euro 6 Diesel and Gasoline Vehicles

vehicle	no. 1	no. 2
size class	0.9 DI	1.5 DCI
technology	gasoline	diesel
standard	Euro 6b	Euro 6b
engine capacity (cm ³)	999	1461
empty weight (kg)	864	1087
mileage (km)	2164	4700
gearbox type	manual ⁵	manual ⁵
after-treatment systems	TWC	DOC + catalyzed DPF + NO _x trap
registration date	12/11/2015	12/31/2015
test date	03/31/2016	04/14/2016

(CVS) to be diluted with filtered air. Pollutant emissions were measured at the outlet of the CVS by various online gas and particulate analyzers and were sampled on various filters and cartridges for off-line analysis.

Measurements were performed for five different driving cycles (NEDC, European approval cycle, WLTC, world approval cycle, and Artemis urban, road, and motorway driving), cycles that are more representative of real-world driving conditions.^{29,30} The characteristics of the driving cycles are given in Table 2. Each cycle was repeated two to six times

Table 2. Characteristics of the Driving Cycles

cycles	start	mileage (km)	duration (s)	average speed (km/h)	CVS flow (m ³ /min)
NEDC	cold	11.2	1180	34	9
WLTC	cold	23.25	1800	47	13
Artemis urban	cold and hot	4.47	921	17	9
Artemis road	hot	14.7	862	61	9
Artemis motorway	hot	23.7	736	116	13

under the same experimental conditions to check the emission level and exclude high-emission vehicles. The only exception was NEDC, for which only one measurement was conducted for each vehicle. All the experiments (this research and previous studies) were performed using commercial fuel (less than 10 ppm sulfur content) from the same filling station to minimize the impact of fuel composition on emissions. All of the diesel and gasoline vehicles were filled with fuel meeting the requirements of EN 590 and EN 228, respectively. The detailed fuel properties are given in the Table S1.

2.3. Analytical Methods. Concentrations of regulated compounds used in PCA analysis (section 3.4 herein) were measured using a HORIBA analytical emissions system. The analyzer using infrared absorption principle was used to measure carbon monoxide (CO), carbon dioxide (CO₂), flame ionization detection to total hydrocarbon (THC) and methane (CH₄), and chemiluminescence for nitrogen oxides (NO_x) and nitrogen oxide (NO). The concentration of nitrogen dioxide (NO₂) is determined by subtracting NO from NO_x. The concentration of CO₂ was also measured with a MIR-2 M (Multigas InfraRed; Environment SA), which also uses infrared absorption. Both CO₂ analyzers show good correlation between measurements, with a relative gap of about 2%.

The total particle number was measured with condensation particle counter (CPC, 3775 TSI). The CPC has a butanol condensation chamber enabling the detection of particles between 4 nm and 2 μm. The instrument was operated once a second at 1.5 L/min, with a concentration range of 0 to 10⁷ particles/cm³. The Particle Measurement Program (PMP) has been proposed by the direction of Joint Research Center (JRC), a Directorate-General of the European Commission, as a regulatory method for measuring particle numbers for Euro 5 and Euro 6 vehicles. PMP makes it possible to remove volatile particles with a 50% cut-point size of 23 nm. One of the main reasons for cutting volatile particles is that the measurement of nonvolatile particles is more repeatable. However, studies by Louis et al.¹⁵ showed that most particles emitted by tested Euro 4–5 vehicles were ultrafine particles with diameters of less than

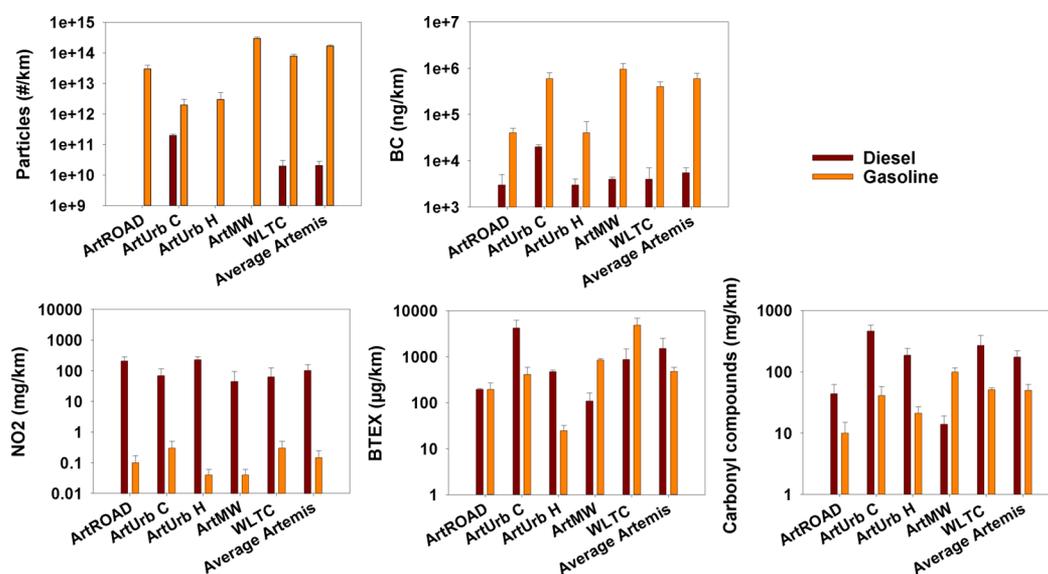


Figure 1. Particles, BC, NO₂, BTEX, and carbonyl compounds emission factors for Euro 6 diesel and gasoline vehicles.

23 nm. To obtain the fullest amount of data on total particle number emissions, the PMP was not used in this study. Furthermore, taking into account this volatile part, standard variations of particle number quantification with six repeated driving cycles ranged between 7 and 20%, which was quite low.

The particle size number distribution was measured with two different devices. The first was the electrical low-pressure impactor (ELPI; DEKATI), which has 12 filter stages and determines particle number distributions from 7 nm to 10 μm . The ELPI was operated once a second at a flow rate of 10 L/min. The minimal detection limit ranged from 250 to 0.1 particles/cm³ depending on the impactor stage. The second device was the Fast Mobility Particle Sizer (FMPS; TSI), which measures the total particle number and distribution ranging from 5.6 to 560 nm, with a concentration range from 0 to 10⁷ particle/cm³ and a flow rate of 8 L/min. The particle numbers obtained by these three devices were fairly well correlated, with a relative gap of about 20%. This gap might be explained by the fact that measurements of the size range of particles are not the same for all three devices.

The black carbon concentration was measured using an aethalometer (AE 33-7, Magee Scientific). The experimental data were collected once a second with the instrument operating at a flow rate of 5 L/min. The detection limit for 1 h was 5 ng/m³, with a concentration range of 10 to 10⁵ ng/m³. Light attenuation was measured at seven wavelengths, from UV to IR (370, 470, 525, 590, 660, 880, and 940 nm). The 880 nm wavelength corresponding to the maximum amount of black carbon was used for black carbon quantification in this study.

Unregulated compounds, such as BTEX, carbonyl compounds, and PAHs, were sampled on various cartridges or quartz filters. Emissions of three repeated Artemis cycles or two repeated WLTC cycles were sampled on one cartridge to collect enough pollutants for chemical analysis. Before each exhaust sample, one blank sample (dilution air in CVS) was collected under the same experimental conditions. Gas-phase PAHs were collected with ORBO 43 cartridges. The sampling flow rate was 0.5 L/min. Particulate-phase PAHs were collected on quartz filters at a flow rate of 50 L/min. BTEX were collected on Tenax cartridges at a flow rate of 0.5 L/min. Carbonyl compounds were collected on DNPH cartridges at a

flow rate of 2 L/min. The cartridges and filters were analyzed by TERA-Environment, a private laboratory with standardized analytical methods (for detailed of the analytical methods see ISO-16000-6, ISO 16000-3, NIOSH 2549, NIOSH 5506, and NF X43-025) (see Table S2). The complete list of compounds analyzed using the cartridges and filters, which includes 6 BTEX, 11 carbonyl compounds and 16 PAHs, is given below.

- BTEX: benzene, toluene, ethylbenzene, *m*-xylene, *p*-xylene, and *o*-xylene
- carbonyl compounds: formaldehyde, acetaldehyde, acetone, acrolein, propionaldehyde, crotonaldehyde, methacrolein, butanal, benzaldehyde, pantanal, and hexanal
- PAHs (gas and particulate phases): naphthalene, acenaphthylene, acenaphthene, fluorene, phenanthrene, anthracene, fluoranthene, pyrene, benzo[a]anthracene, chrysene, benzo[b,j]fluoranthene, benzo[k]fluoranthene, benzo[a]pyrene, dibenz[a,h]anthracene, benzo[g,h,i]perylene, and indeno[1,2,3-c,d]pyrene

2.4. Statistical Analysis. The impacts of driving conditions and technologies on emissions produced by two Euro 6 vehicles (tested in this study) and six Euro 4–5 vehicles (tested in previous studies by Louis et al.)¹⁵ were investigated using a statistical analysis method, i.e., the PCA. The basic objective of PCA is to reduce the data set and find the best space to project the variables. This dimension reduction process creates a limited number of eigenvectors called “principal components”, which are linear combinations and explain most of the total variance of the data set. This method was used by Clairotte et al.³¹ to separately analyze two motorcycles with around 20 measured pollutants. In this case, the variables corresponded to emission factors measured for 32 pollutants, cited above, and the individuals were the tested vehicles and driving cycles (Artemis urban with cold and hot starts, road and motorway, NEDC). The SPAD8 software was used to create geometric interpretations between the variables and individuals from principal components. These representations makes it possible to visually restore the relationships between the vehicles, or the driving cycles, and the emission factors.³²

Geometric representations are produced in 2D graphic form. Each dimension corresponds to one principal component

representing the maximum percentage of the total variance for the variable set. Both dimensions are represented by two factorial axes. The projection of the variables according to the two dimensions produces a graphic representation called "correlation circle". In this circle, each arrow represents a variable (an emission factor in the present case). An arrow close to the circle means that the circle can be interpreted. Any arrows that are clustered together are correlated and represent similar emission behavior. For projection of the individuals, the individuals in our case are vehicles or driving cycles, and the PCA provides a factorial plan according to the same two factorial axes. In this plan, any individuals that are clustered together have closed variable values indicating that they have similar effects on emissions. This method makes it possible to study the impacts of vehicle technologies and driving conditions on emission factors.

3. RESULTS AND DISCUSSION

3.1. Euro 6 Gasoline and Diesel Emission Factors.

Particles, BC, NO₂, BTEX, and carbonyl compound emission factors for Euro 6 (gasoline and diesel) vehicles with the six driving conditions (Artemis urban cold start (ArtUrb C), Artemis urban hot start (ArtUrb H), Artemis road (ArtROAD), Artemis motorway (ArtMW), and WLTC) are presented in Figure 1.

The article number emission factors for the gasoline vehicle varied between 2.3×10^{12} to 2.9×10^{14} nos./km. The highest factors were obtained for the motorway cycle, and the lowest were obtained for the urban cycle with similar emissions between hot start and cold start. Compared to the diesel vehicle equipped with DPF to emit few particles, the gasoline vehicle emitted 4 to 4500 times more particles. The gasoline vehicle emitted 10 to 30 times more BC than the diesel vehicle under Artemis urban and road driving conditions. Under the Artemis motorway and WLTC with high-speed conditions, the gasoline vehicle emitted 200 to 250 times more BC than the diesel vehicle. NO₂ emissions from the gasoline vehicle were low, i.e., between 0.04 and 0.3 mg/km, and were 200 to 5000 less than for the diesel vehicle (45 to 229 mg/km) depending on the driving conditions. For the unregulated compounds, the BTEX emission factors ranged from 0.03 and 4.9 mg/km for the gasoline vehicle and 0.11 and 4.2 mg/km for the diesel vehicle. For the exhaust samples, only formaldehyde, acetaldehyde and acetone were above the quantification limit that could be quantified. The diesel vehicle emitted on average 11 times more carbonyl compounds than the gasoline vehicle for all the cycles. The only exception was the motorway cycle, for which the gasoline vehicle emitted seven times more carbonyl compounds than the diesel vehicle. The concentrations of the 16 PAHs in the particulate phase were below the detection limit for both vehicles (see Table S3).

Generally, Artemis urban cold start induces more emissions than hot start for all the pollutants measured for both the diesel and gasoline vehicles. The diesel vehicle emitted 100 times more PN under urban cold-start conditions than hot start. Cold starting also induced 9–16, 2.5, and 10 times more BTEX, carbonyl compound, and BC emissions, respectively, than with hot starting for the diesel and gasoline vehicles. However, the diesel vehicle emitted three times more NO₂ under urban hot start than under cold start. This same emission characteristic has been observed in other studies as well.^{13,14} The high NO₂ emissions in urban driving conditions and the increase in the

number of Euro 6 diesel vehicles in the fleet raise serious concerns about urban air quality.

Compared to the WLTC approval cycle, diesel emission levels of PN, BC, NO₂, BTEX, and carbonyl compounds are similar under the Artemis average cycles (urban cold start + road + motorway). For the gasoline vehicle, all the pollutant emissions are similar between the average Artemis and WLTC cycles. The only exception is BTEX: the WLTC cycle induced 4 to 13 times more emissions than average Artemis cycle. However, only two vehicles in this study were tested using the WLTC cycle. Further testing will have to be conducted to confirm the impact of the WLTC on emissions of unregulated pollutants.

3.2. Size Distribution of the Particle Number. The particle size distributions were measured with the FMPS for all the Artemis driving cycles. Figure 2a,b shows the particle size distributions for the gasoline vehicle under motorway and road conditions (Figure 2a) and urban conditions with hot and cold start (Figure 2b). The particle size ranged from 22 ± 1.4 to 220 ± 15.6 nm for all the Artemis driving cycles. The peak number concentrations were around 45 ± 3.6 , 70 ± 4.7 , and 60 ± 4.7 nm for the road, motorway, and urban driving conditions, respectively.

The particle emissions for the diesel vehicle were near the background level (i.e., undetectable) for Artemis road, motorway, and urban with hot start (see Table S3). Only Artemis urban cold and hot starts are presented in Figure 2c. For an urban cycle with a cold start, the particle sizes varied between 22 ± 1.4 to 220 ± 15.6 nm, with two modes around 10 ± 0.8 and 40 ± 2.5 nm. The results also show that the particles emitted by the diesel vehicle were smaller than those emitted by the gasoline vehicle.

3.3. Pollutant Correlations. The correlations between the pollutant emissions for the two Euro 6 vehicles tested in this study and the six Euro 4–5 vehicles tested in the previous research¹⁵ were studied. However, only the emission factors of the diesel vehicles were used because the three gasoline vehicles did not show good correlations between their pollutant emissions. This is particularly true for the Euro 6 gasoline DI vehicle tested in this study and which showed very different emission behaviors. These differences in behavior may be explained by the different vehicle technologies. The Euro 6 gasoline vehicle has a propulsion engine that leads to a high exhaust temperature at the outlet of the tailpipe (up to 600 °C during the motorway phases). The Euro 4 and Euro 5 gasoline vehicles tested by Louis et al.¹⁵ were fitted with a traction engine that led to a lower exhaust temperature (around 200 °C at the tailpipe). Ghazikhani et al.³³ showed that the increase in exhaust temperature leads to an increase in emissions of pollutant such as CO and HC.

At first, the correlations between PN and BC emissions for the diesel vehicles were studied. Figure 3 shows the PN/BC correlation obtained from the Euro 6 diesel vehicle measured in this study (green dots) and the correlation obtained by Louis et al.¹⁵ for the Euro 4 (red dots) and 5 diesel vehicles (green dots). The PN/BC correlation of the Euro 6 diesel vehicle tested in this study follows a similar tendency compared to the Euro 4 and 5 vehicles for the Artemis urban cold start, WLTC, and NEDC driving cycles. However, the PN and BC emissions for the Euro 6 diesel vehicle were low, making it difficult to arrive at a clear conclusion with uncertainties.

The correlations between HC and CO (regulated compounds) and unregulated pollutant emissions measured for the

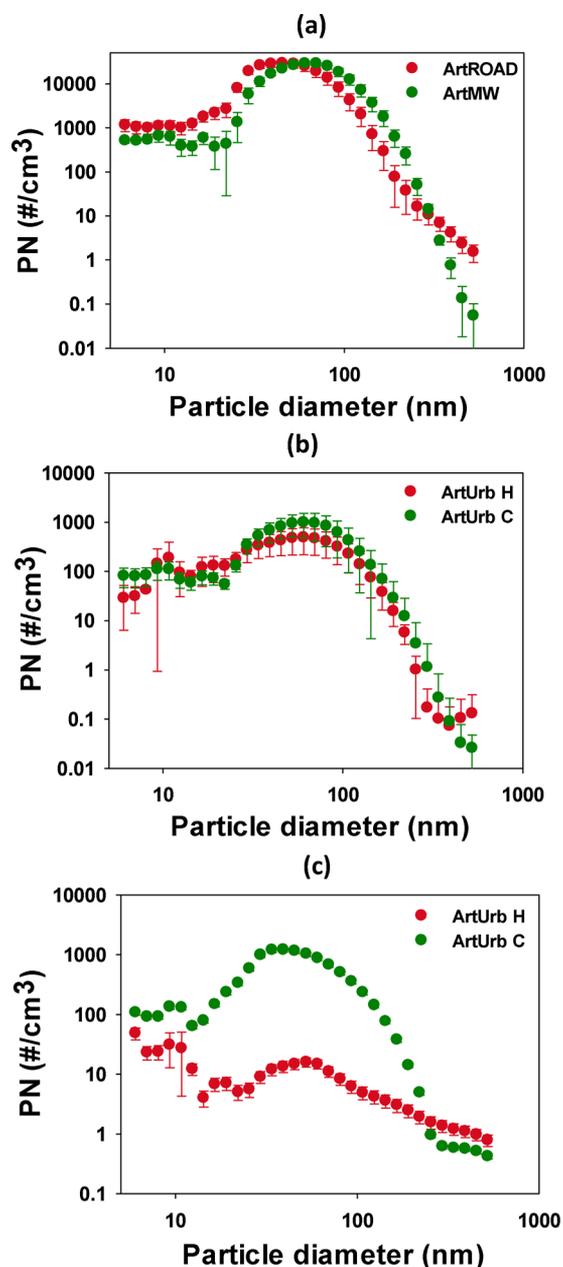


Figure 2. Particle size number distribution for the Euro 6 gasoline DI (a, b) and Euro 6 diesel vehicles (c). (a) The Artemis road (ArtROAD) and Artemis motorway (ArtMW) driving cycles; (b, c) the Artemis urban hot and cold start (ArtUrb H/C) driving cycles.

Euro 6 diesel vehicle (present study) and Euro 4–5 diesel vehicles¹⁵ were also studied under the Artemis urban, cold and hot start, Artemis road, Artemis motorway, WLTC, and NEDC driving cycles. Figure 4 shows the correlations between unregulated pollutants (benzene, toluene, xylene, formaldehyde, and acetaldehyde), and regulated pollutants (HC and CO). The correlations are a positive linear correlation, with r^2 varying from 0.57 to 0.91.

Unlike regulated compounds, emissions of unregulated compounds are not always measured on a chassis dynamometer. Based on the correlation equations given in Figure 4, it is therefore possible to estimate the emission factors of benzene, toluene, xylene, formaldehyde and acetaldehyde with HC and CO measurements for the Euro 4–6 diesel vehicles. However,

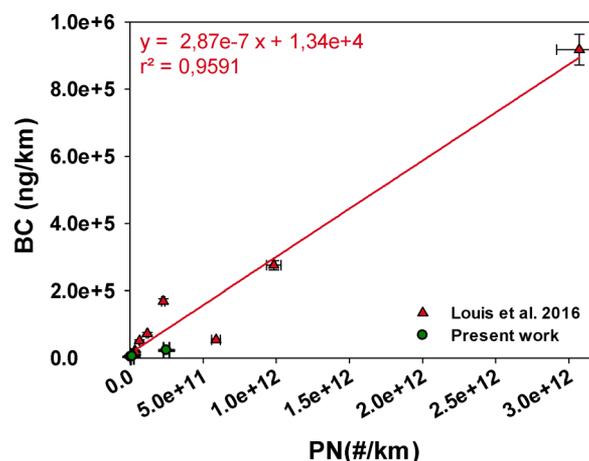


Figure 3. BC/PN correlation for the Euro 6 diesel vehicle (green dots, present study) and the Euro 4 and 5 diesel vehicles (red dots)¹⁵ for emissions measured under the Artemis urban cold start, WLTC, and NEDC driving cycles.

these correlations only give an approximate estimation that takes into account the large standard deviation due to the high variability of emissions of regulated and unregulated compounds during cold start.

3.4. Preliminary PCA Analysis. PCA is performed as a preliminary method to study the impacts of driving conditions, after-treatment, and engine technologies on pollutant emissions by analyzing the variable main trends. PCA was performed with emission factors of various gaseous and particulate pollutants measured in this study for two Euro 6 diesel and gasoline vehicles as well as for four Euro 5 vehicles and two Euro 4 vehicles measured in previous study.¹⁵ The technical characteristics of these eight vehicles are given in Table S4. To build the PCA, we used either the five driving conditions (Artemis urban with cold start, urban with hot start, road, motorway, and NEDC) or the eight tested vehicles as individuals, with the 32 pollutant emissions for each case (as variables) (section 3.4 herein). The SPAD8 software was then used to perform the PCA analysis of the data set. The results showed that the first two dimensions set by PCA account for the bulk of the total variance. Therefore, in these two cases, only two dimensions were used for this preliminary study.

3.4.1. Impacts of Driving Conditions on Pollutant Emissions. The impacts of driving conditions on pollutant emissions are studied using the PCA analysis with emission factors measured under the Artemis urban cold and hot start, Artemis road, Artemis motorway, and NEDC driving cycles. A pair of PCA analysis were performed: one for the Euro 4–6 diesel vehicles and one for the Euro 4–6 gasoline vehicle.

For the Euro 4–6 diesel vehicles, the urban cold start driving condition produces the most important emissions of various pollutants (PN, BTEX, and carbonyl compounds, etc.) compared to other driving conditions. For the Euro 4–6 gasoline vehicles, the impacts of the driving conditions on pollutant emissions are shown in Figure 5. Figure 5a shows the projection of the variables, the measured emission factors in this case, on the two principal axes. They account for 85% of the total variance, with a strong Axis 1 (49% of the variance). Figure 5b shows the projection of the driving cycles (individuals) in the same two dimensions.

A cluster composed of BTEX, black carbon, and carbonyl compounds can be seen on the right portion of the correlation

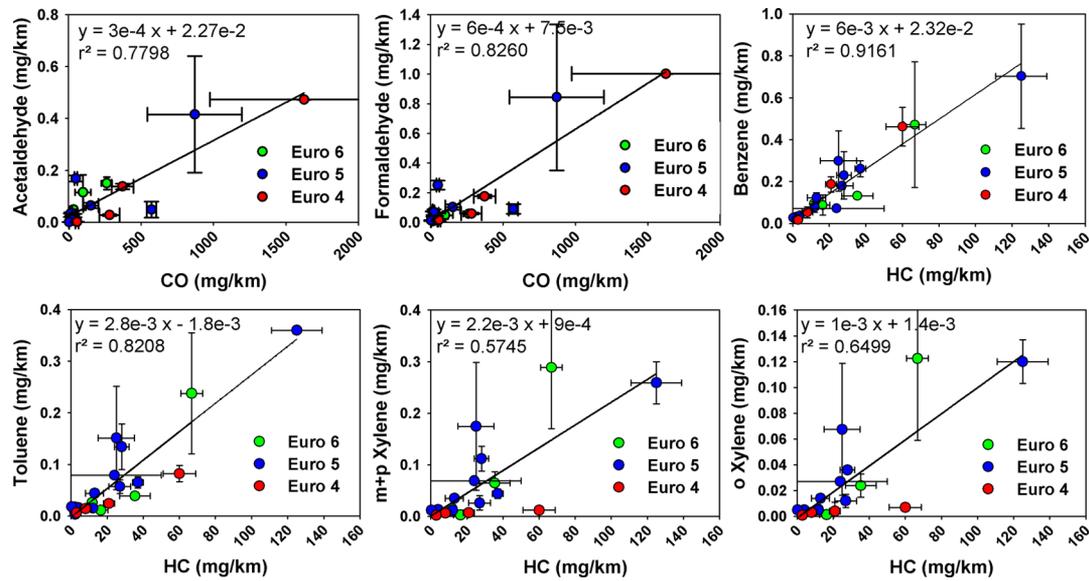


Figure 4. Correlations between the various pollutants measured for the Euro 4 (red dots), Euro 5 (blue dots), and Euro 6 (green dots) diesel vehicles with all Artemis, WLTC, and NEDC driving cycles.

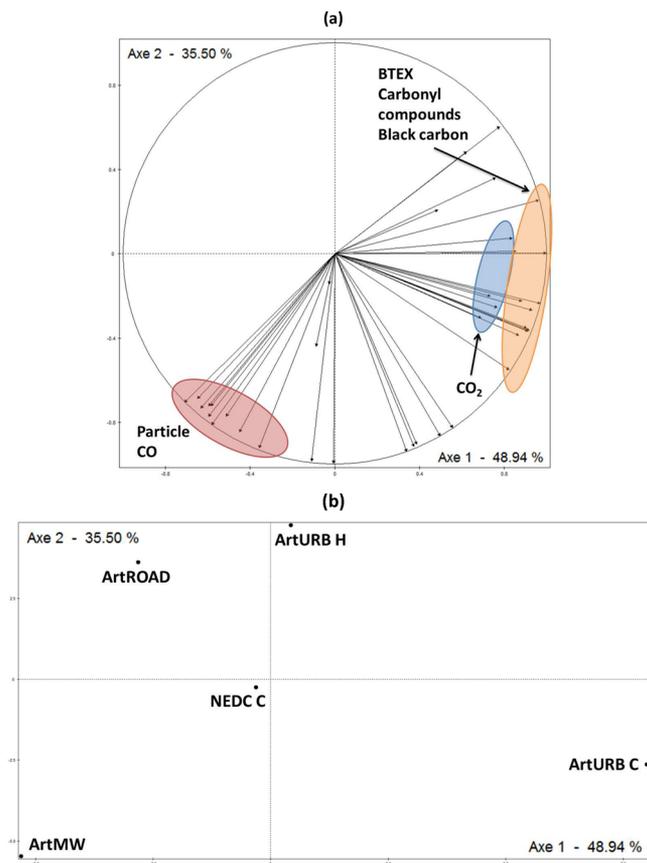


Figure 5. PCA performed for all the driving cycles for the Euro 4–6 gasoline vehicles with (a) the projection of emission factors and (b) the projection of cycles.

circle (Figure 5a). These compounds follow the same emission pattern and are at the same position as the Artemis urban driving cycle with cold start (Figure 5b). This observation indicates that the cold urban driving condition produces highest emissions of these compounds. Similar results were observed by Caplain et al.²⁶ and Louis et al.¹⁴ Another cluster, located in the

upper left portion of the correlation circle and corresponding to the Artemis motorway driving cycle, is composed of particles and CO. The motorway driving condition at high speed produces highest particle, and CO emissions. Finally, the NEDC driving cycle is in the middle of the four Artemis driving cycles of the factorial plan. This observation indicates that cycle emissions are not correlated with the two principal axes.

3.4.2. Impacts of After-Treatment and Engine Technologies on Pollutant Emissions. The eight vehicles tested were fitted with six different after-treatment and engine technologies. All three of gasoline vehicles in this study were fitted with TWC. However, they had different engine technologies. The Euro 4 vehicle used an indirect injection technology, the Euro 5 vehicle used a direct injection technology, and the Euro 6 used a direct injection technology with propulsion engine (located at the rear). All six diesel vehicles were fitted with DOC. Apart from this common system, the aftertreatment technologies were different. One Euro 4 vehicle and one Euro 5 vehicle had a catalyzed DPF, two Euro 5 vehicles had an additive DPF (add DPF), and one Euro 6 vehicle had a catalyzed DPF (cat DPF) and NO_x trap.

To study the effects of vehicle technologies on the pollutant emissions, we performed PCA using the emission factors measured for all the vehicles, with all the Artemis and NEDC driving cycles set as variables and the eight tested vehicles set as individuals. Figure 6 shows the projection of the variables (Figure 6a) and individuals (Figure 6b) on the two principal axes. They account for 62% of the total variance with a strong axis 1 (42% of the variance). On the factorial plan, the diesel and gasoline vehicles are separated into two clusters. The gasoline vehicles are in the right portion of the plan, and the diesel vehicles are in the left portion. In the case of the diesel vehicles, the two Euro 5 with additive DPF were clustered together and located at left bottom of the vehicle projection. To the contrary, the three diesel vehicles with catalyzed DPF were located at top left of the plan. All three gasoline vehicles tested were located at different places: Euro 6 DI was at the right bottom, Euro 4 was at the right axis, and Euro 5 DI was at the top right.

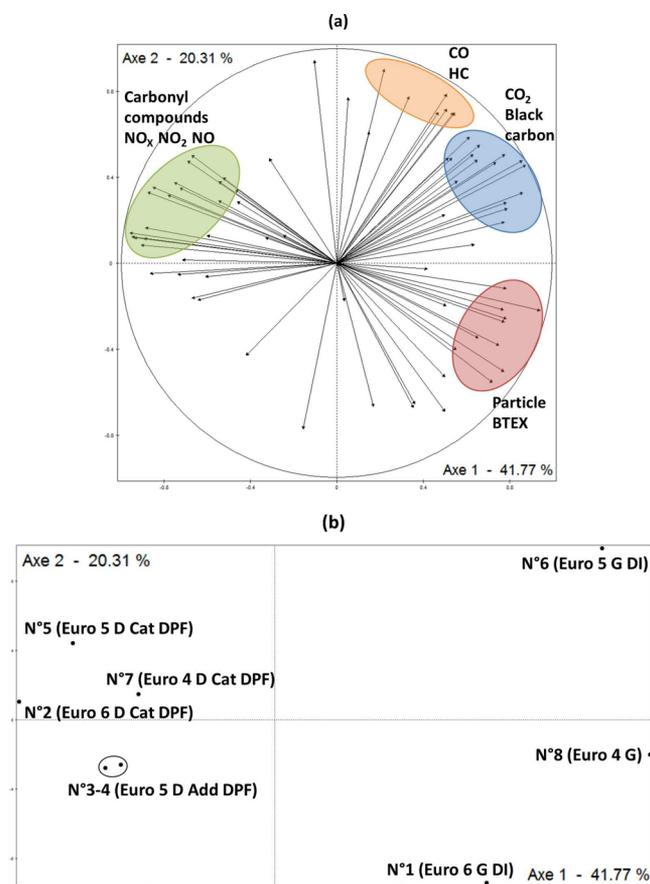


Figure 6. PCA performed for all the driving cycles and all the vehicles with (a) the projection of emission factors and (b) the projection of vehicles.

The cluster on the left portion of the correlation circle is composed of NO_x and carbonyl compounds. They correspond to the diesel vehicles fitted with a catalyzed DPF that meet Euro 4–6 standards, which are characterized by higher emissions of these compounds. The Euro 6 Catalyzed DPF diesel vehicle with NO_x trap is located at the leftmost portion of the plan, indicating that this vehicle produces higher NO_x emissions. Such high emissions were also observed Ntziachristos et al.³⁴ under the WLTC cycle and PEMS measurements, between 100 and 1100 mg/km with high uncertainties. A pair of clusters at the upper right portion are composed of CO and HC and black carbon and CO_2 , respectively. The cluster at the lower right portion is composed of particles and BTEX. These various compounds are emitted in greater quantities by the Euro 4–6 gasoline vehicles compared to the diesel vehicles.

This preliminary PCA analysis shows the possibility of studying the impacts of driving conditions and technologies on emissions using a statistical method. However, the number of samples remains small and does not comprise all vehicle technologies. A detailed discussion is presented in section 3.5 herein.

3.5. Discussion. This paper aims to measure emissions of unregulated compounds from Euro 6 vehicles that are never measured to improve knowledge about their emissions under different driving conditions, and to supplement the first data for the emission factor inventory used by various emission models (HBEFA, COPERT IV). This paper also attempts to show whether it is possible to use PCA statistical analysis to

investigate the impacts of aftertreatment technologies and driving conditions on vehicle emissions.

A single Euro 6 diesel vehicle and a single gasoline vehicle were tested on a chassis dynamometer for real-world Artemis, WLTC, and NEDC driving cycles. Emission factors of particles, black carbon, NO_2 , BTEX, PAH, and carbonyl compounds for these vehicles were determined. The results show that diesel produces 200 to 5000 times more NO_2 emissions and 4 to 4500 times less PN emissions than gasoline vehicles. Moreover, the Euro 6 diesel vehicle emits four times more carbonyl compounds than the Euro 6 gasoline vehicle. Compared to the Artemis urban hot start, the Artemis urban cold start produces 100, 9–16, 2.5, and 10 times more PN, BTEX, carbonyl compounds, and BC emissions, respectively, and three times less NO_2 emissions than Artemis urban hot start for both the diesel and gasoline vehicles. Compared to the WLTC approval cycle, diesel emission levels of PN, BC, NO_2 , BTEX, and carbonyl compounds are similar under the Artemis average cycles (urban cold start + road + motorway). For the gasoline vehicle, all the pollutant emissions are similar between the average Artemis and WLTC cycles. The only exception is BTEX: the WLTC cycle induced 4 to 13 times more emissions than average Artemis cycle. However, only two vehicles in this study were tested using the WLTC cycle. Further testing will have to be conducted to confirm the impact of the WLTC driving conditions on the emissions of unregulated pollutants. Positive linear correlations have been observed for Euro 4–6 diesel vehicles between emissions of regulated compounds (HC and CO) and unregulated compounds (black carbon, benzene, toluene, xylene, formaldehyde, and acetaldehyde). These correlations show that it is possible to estimate some of the unregulated compounds that are not always measured as a function of regulated compound emissions. These correlations only provide an approximate estimation that takes into account the large standard deviation.

PCA statistical analysis has been used as a preliminary method to see the possibility to investigate the impact of after-treatment device and driving conditions on pollutant emissions of eight vehicles with seven different technologies tested in this work and our previous work. With our PCA analysis, we show that the Euro 4–6 gasoline vehicles are characterized by higher particle number emission and lower NO_x emissions compared to diesel DPF vehicles. This statistical analysis with our data set is in agreement with Bach et al.,¹³ Alves et al.,²³ and Louis et al.¹⁵ They observed that Euro 4–5 gasoline vehicles emit around 100 times more particles and around 10 times less NO_x compared to the Euro 4–5 diesel equipped with DPF. The PCA analysis of the driving conditions showed that the urban driving conditions with cold start produce significant PN, BTEX, and carbonyl compound emissions compared to hot starts for the Euro 4–6 diesel vehicles. This is confirmed by the results of Louis et al.,¹⁵ Caplain et al.,²⁶ and Jourard et al.²¹ The PCA showed that high-speed driving conditions (motorway) produce significant CO and PN emissions compared to low-speed driving conditions (urban) mainly induced by the gasoline vehicles. This is in agreement with Huang et al.²² They observed that the urban driving condition with cold start emits around 2 to 150 times more BTEX and around two times more carbonyl compounds compared to the urban driving condition with hot start. For the impacts of after-treatment and engine technologies, the PCA showed that diesel vehicles equipped with additive and catalyzed DPF emit few particles. A pair of different DPF technologies exhibit slightly different emission

behaviors. The Euro 6 vehicle fitted with a NO_x trap emitted the most NO_x. The three gasoline vehicles, which are located opposite the diesel vehicles on the factorial plan, emit little NO_x but more particles, black carbon, BTEX, CO, HC, and CO₂. Due to different engine technologies (indirect injection for Euro 4, direct injection for Euro 5, and direct injection with a propulsion engine for Euro 6), the three gasoline vehicles exhibit different emission behaviors. These preliminary tests showed that different vehicle technologies or driving conditions can be characterized by some key pollutants. However, these tests included a relatively low sample number and did not cover all vehicle technologies. To complete our PCA analysis, we attempted to integrate results from other studies. For example: Caplain et al.²⁶ tested pre-Euro to Euro 3 diesel and gasoline vehicles. They monitored 11 aldehydes and 2 ketones as pollutants under urban with hot start and motorway driving conditions. Rehn²⁵ tested Euro 2 to Euro 4 diesel and gasoline vehicles by measuring HC, NO_x, CO, PAHs in particulate-phase, BTEX, aldehydes and acetone under Artemis urban with hot and cold start, and road driving conditions. Alves et al.²³ tested Euro 3 to Euro 5 diesel and gasoline vehicles. They monitored HC, CO, NO_x, and BTEX under Artemis urban with hot and cold start and road driving conditions. However, none of the pollutants monitored in these studies were measured for all Artemis driving conditions. Moreover, the particle number, black carbon, and several organic compound emission factors were not measured for Pre-Euro to Euro 3 Diesel and gasoline vehicles. We therefore lack all the necessary data to complete our PCA data set for the same pollutants under all driving conditions or for all vehicles. The PCA analysis with integration of literature data shows that the missing data, which introduced significant bias to the PCA analysis, should be included in a future study so as to extend this statistical method to a larger vehicle population.

■ ASSOCIATED CONTENT

Supporting Information

The Supporting Information is available free of charge on the ACS Publications website at DOI: 10.1021/acs.est.7b00481.

Tables showing fuel composition for all tested vehicles; analytical methods for BTEX, carbonyl compounds, and PAH samples in the gas and particulate phases with quantification limit and uncertainty; wmission factors for unregulated pollutant from Euro 6 diesel and gasoline vehicles; and technical characteristics of the eight diesel and gasoline vehicles used for statistical analyses. (PDF)

■ AUTHOR INFORMATION

Corresponding Author

*Phone: +33-472-14-24-75; fax: +33-472-37-68-37; e-mail: yao.liu@ifsttar.fr.

ORCID

Simon Martinet: 0000-0002-8777-2227

Cédric Louis: 0000-0003-1564-555X

Notes

The authors declare no competing financial interest.

■ ACKNOWLEDGMENTS

This work was supported by FEVER (1366C0051) and CapVeREA (1466C0001) projects funded by the French Environment and Energy Management Agency (ADEME).

■ ABBREVIATIONS

DPF	diesel particulate filter
DI	direct injection
NEDC	New European Driving Cycle
WLTC	World Harmonized Light-Duty Test Cycle
PN	particle number
BC	black carbon
BTEX	benzene, toluene, ethylbenzene, and xylene
PAH	polycyclic aromatic hydrocarbon
DOC	diesel oxidation catalyst
SCR	selective catalytic reduction
TWC	three-way catalyst
PCA	principal component analysis
DCI	direct common rail injection
CVS	constant volume sampler
CPC	condensation particle counter
PMP	particle-measurement program
ELPI	electrical low-pressure impact
FMPS	fast mobility particle sizer
AE	aethalometer
ArtUrb C	Artemis urban with cold start
ArtUrb H	Artemis urban with hot start
ArtROAD	Artemis rural
ArtMW	Artemis motorway
Add DPF	additive DPF
Cat DPF	catalyzed DPF

■ REFERENCES

- (1) Ning, Z.; Wubulihairan, M.; Yang, F. PM, NO_x and Butane Emissions from on-Road Vehicle Fleets in Hong Kong and Their Implications on Emission Control Policy. *Atmos. Environ.* **2012**, *46*, 265–274.
- (2) Sydbom, A.; Blomberg, A.; Parnia, S.; Stenfors, N.; Sandström, T.; Dahlén, S. E. Health Effects of Diesel Exhaust Emissions. *Eur. Respir. J.* **2001**, *17* (4), 733–46.
- (3) Lewtas, J. Air Pollution Combustion Emissions: Characterization of Causative Agents and Mechanisms Associated with Cancer, Reproductive, and Cardiovascular Effects: The Sources and Potential Hazards of Mutagens in Complex Environmental Matrices - Part II. *Mutat. Res., Rev. Mutat. Res.* **2007**, *636* (1–3), 95–133.
- (4) Amato, F.; Nava, S.; Lucarelli, F.; Querol, X.; Alastuey, A.; Baldasano, J. M.; Pandolfi, M. A. Comprehensive Assessment of PM Emissions from Paved Roads: Real-World Emission Factors and Intense Street Cleaning Trials. *Sci. Total Environ.* **2010**, *408* (20), 4309–4318.
- (5) Miyoshi, N.; Matsumoto, S.; Katoh, K.; Tanaka, T.; Harada, J.; Takahashi, N.; Yokota, K.; Sugiura, M.; Kasahara, K. Development of New Concept Three-Way Catalyst for Automotive Lean-Burn Engines. *SAE Tech. Pap. Ser.* **1995**, 1 DOI: 10.4271/950809.
- (6) Prasad, R.; Bella, V. R. A Review on Diesel Soot Emission, Its Effect and Control. *Bulletin of Chemical Reaction. Bull. Chem. React. Eng. Catal.* **2011**, *5* (2), 69–86.
- (7) Reşitoğlu, I. A.; Altinişik, K.; Keskin, A. The Pollutant Emissions from Diesel-Engine Vehicles and Exhaust Aftertreatment Systems. *Clean Technol. Environ. Policy* **2015**, *17* (1), 15–27.
- (8) Hall, D. E.; Doel, R.; Jørgensen, R.; King, D. J.; Mann, N.; Scorletti, P.; Heinze, P. *Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Automotive Exhaust Emissions and Fuels*; Concawe Report. 1998, http://www.concawe.eu/uploads/Modules/Publications/rpt_98-55-2004-01306-01-e.pdf.
- (9) Sluder, C. S.; West, H. V. Catalyzed Diesel Particulate Filter Performance in a Light-Duty Vehicle. *SAE Tech. Pap. Ser.* **2000**, 1 DOI: 10.4271/2000-01-2848.
- (10) Mohr, M.; Forss, A. M.; Lehmann, U. Particle Emissions from Diesel Passenger Cars Equipped with a Particle Trap in Comparison to Other Technologies. *Environ. Sci. Technol.* **2006**, *40* (7), 2375–2383.

- (11) Fino, D. Diesel Emission Control: Catalytic Filters for Particulate Removal. *Sci. Technol. Adv. Mater.* **2007**, *8* (1), 93–100.
- (12) Ravindra, K.; Sokhi, R.; Van Grieken, R. Atmospheric Polycyclic Aromatic Hydrocarbons: Source Attribution, Emission Factors and Regulation. *Atmos. Environ.* **2008**, *42* (13), 2895–2921.
- (13) Bach, C.; Schreiber, D.; Alvarez, R.; Lienin, S. Characterization of exhaust gas and particle emissions of modern gasoline, diesel and natural gas vehicles. *Proceedings of the EET-2008 European Ele-Drive Conference*; International Advanced Mobility Forum: Geneva, Switzerland, 2008.
- (14) Cédric, L.; Goriaux, M.; Tassel, P.; Perret, P.; André, M.; Liu, Y. Impact of Aftertreatment Device and Driving Conditions on Black Carbon, Ultrafine Particle and NO_x Emissions for Euro 5 Diesel and Gasoline Vehicles. *Transportation Research Procedia.* **2016**, *14*, 3079–3088.
- (15) Louis, C.; Liu, Y.; Tassel, P.; Perret, P.; Chaumond, A.; André, M. PAH, BTEX, Carbonyl Compound, Black-Carbon, NO₂ and Ultrafine Particle Dynamometer Bench Emissions for Euro 4 and Euro 5 Diesel and Gasoline Passenger Cars. *Atmos. Environ.* **2016**, *141*, 80–95.
- (16) Carslaw, D. C. Evidence of an Increasing NO₂/NO_x Emissions Ratio from Road Traffic Emissions. *Atmos. Environ.* **2005**, *39* (26), 4793–4802.
- (17) Carslaw, D. C.; Carslaw, N. Detecting and Characterising Small Changes in Urban Nitrogen Dioxide Concentrations. *Atmos. Environ.* **2007**, *41* (22), 4723–4733.
- (18) Weilenmann, M.; Favez, J. Y.; Alvarez, R. Cold-Start Emissions of Modern Passenger Cars at Different Low Ambient Temperatures and Their Evolution over Vehicle Legislation Categories. *Atmos. Environ.* **2009**, *43* (15), 2419–2429.
- (19) Clairotte, M.; Adam, T. W.; Zardini, A. A.; Manfredi, U.; Martini, G.; Krasenbrink, A.; Vicet, A.; Tournié, E.; Astorga, C. Effects of Low Temperature on the Cold Start Gaseous Emissions from Light Duty Vehicles Fuelled by Ethanol-Blended Gasoline. *Appl. Energy* **2013**, *102*, 44–54.
- (20) Mamakos, A.; Martini, G.; Manfredi, U. Assessment of the Legislated Particle Number Measurement Procedure for a Euro 5 and a Euro 6 Compliant Diesel Passenger Cars under Regulated and Unregulated Conditions. *J. Aerosol Sci.* **2013**, *55*, 31–47.
- (21) Joumard, R.; André, M.; Vidon, R.; Tassel, P.; Pruvost, C. Influence of Driving Cycles on Unit Emissions from Passenger Cars. *Atmos. Environ.* **2000**, *34* (27), 4621–4628.
- (22) Huang, C.; Lou, D.; Hu, Z.; Feng, Q.; Chen, Y.; Chen, C.; Tan, P.; Yao, D. A PEMS Study of the Emissions of Gaseous Pollutants and Ultrafine Particles from Gasoline-and Diesel-Fueled Vehicles. *Atmos. Environ.* **2013**, *77*, 703–710.
- (23) Alves, C. A.; Lopes, D. J.; Calvo, A. I.; Evtuygina, M.; Rocha, S.; Nunes, T. Emissions from Light-Duty Diesel and Gasoline in-Use Vehicles Measured on Chassis Dynamometer Test Cycles. *Aerosol Air Qual. Res.* **2015**, *15*, 99–116.
- (24) Westerholm, R.; Christensen, A.; Rosén, A. Regulated and Unregulated Exhaust Emissions from Two Three-Way Catalyst Equipped Gasoline Fuelled Vehicles. *Atmos. Environ.* **1996**, *30* (20), 3529–3536.
- (25) Rehn, L. Caractérisation et impacts des émissions de polluants du transport routier: Apports méthodologiques et cas d'études en Rhône Alpes. Ph.D. Dissertation, Université de Grenoble, 2013. <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00876623/document>.
- (26) Caplain, I.; Cazier, F.; Nouali, H.; Mercier, A.; Déchaux, J. C.; Nollet, V.; Joumard, R.; André, J. M.; Vidon, R. Emissions of Unregulated Pollutants from European Gasoline and Diesel Passenger Cars. *Atmos. Environ.* **2006**, *40* (31), 5954–5966.
- (27) Devos, O.; Combet, E.; Tassel, P.; Paturel, L. Exhaust Emissions of PAHs of Passenger Cars. *Polycyclic Aromat. Compd.* **2006**, *26* (1), 69–78.
- (28) Karavalakis, G.; Deves, G.; Fontaras, G.; Stournas, S.; Samaras, Z.; Bakeas, E. The Impact of Soy-Based Biodiesel on PAH, Nitro-PAH and Oxy-PAH Emissions from a Passenger Car Operated over Regulated and Nonregulated Driving Cycles. *Fuel* **2010**, *89* (12), 3876–3883.
- (29) André, M. The ARTEMIS European Driving Cycles for Measuring Car Pollutant Emissions. *Sci. Total Environ.* **2004**, *334*, 73–84.
- (30) André, M.; Joumard, R.; Vidon, R.; Tassel, P.; Perret, P. Real-World European Driving Cycles, for Measuring Pollutant Emissions from High-and Low-Powered Cars. *Atmos. Environ.* **2006**, *40* (31), 5944–5953.
- (31) Clairotte, M.; Adam, T. W.; Chirico, R.; Giechaskiel, B.; Manfredi, U.; Elsasser, M.; Sklorz, M.; et al. Online Characterization of Regulated and Unregulated Gaseous and Particulate Exhaust Emissions from Two-Stroke Mopeds: A Chemometric Approach. *Anal. Chim. Acta* **2012**, *717*, 28–38.
- (32) Lebart, L.; Piron, M.; Morineau, A. *Statistique exploratoire multidimensionnelle*; Dunod: Paris, 2006; pp 61–130.
- (33) Ghazikhani, M.; Hatami, M.; Safari, B.; Ganji, D. D. Experimental Investigation of Exhaust Temperature and Delivery Ratio Effect on Emissions and Performance of a Gasoline–ethanol Two-Stroke Engine. *Case Studies in Thermal Engineering* **2014**, *2*, 82–90.
- (34) Ntziachristos, L.; Papadimitriou, G.; Ligterink, N.; Hausberger, S. Implications of Diesel Emissions Control Failures to Emission Factors and Road Transport NO_x Evolution. *Atmos. Environ.* **2016**, *141*, 542–551.

Euro 6 unregulated pollutant characterization and statistical analysis of aftertreatment device and driving condition impact on recent passenger car emissions

Simon Martinet^a, Yao Liu^{a,*}, Cédric Louis^{a,b}, Patrick Tassel^a, Pascal Perret^a, Agnès Chaumond^a, Michel André^a

^aTransport and Environment Laboratory, IFSTTAR, 69675 Bron, France

^bFrench Environment and Energy Management Agency, ADEME, 49004 Angers, France

* Corresponding author: yao.liu@ifsttar.fr, Phone: +33 472 14 24 75, Fax: +33 472 37 68 37; Address: 25 avenue François Mitterrand, 69675 Bron, France

Supporting information available (4 pages)

Fuel composition for all tested vehicles; Analytical methods for BTEX, carbonyl compounds, and PAH samples in the gas and particulate phases with quantification limit and uncertainty; Emission factors for unregulated pollutant from Euro 6 diesel and gasoline vehicles; Technical characteristics of the eight diesel and gasoline vehicles used for statistical analyses. This material is available free of charge via the Internet at <http://pubs.acs.org>.

Table S1. Fuel composition for all tested vehicles

Vehicle	No. 1	No. 6	No. 8	No. 2	No. 3	No. 4	No. 5	No. 7
	Gasoline			Diesel				
Density at 15 °C (kg/m ³)	742.2	726	731	835.2	835	834	834	829
Sulfur content (mg/kg)	6.7	7.4	6.7	8.8	9.2	9.5	9.5	8.8
Water content (mg/km)	---	---	---	70	60	80	110	60
Total contamination (mg/kg)	---	---	---	12	4.9	4.8	12	12
Total AH (% m)	---	---	---	27.3	28.1	28.2	25.8	23.2
PAH (% m)	---	---	---	3.3	5.1	4.8	3.6	3.0
BTEX (% m)	---	---	---	---	0.97	0.91	1.36	1.17
Lead content (mg/L)	< 2.5	< 2.5	< 2.5	---	---	---	---	---
Benzene content (% m)	0.44	0.36	0.34	---	---	---	---	---
Ethanol content (% vol)	7.38	7.49	7.51	---	---	---	---	---
ETBE content (% vol)	4.48	5.1	5.35	---	---	---	---	---
Total oxygenates (% vol)	17.58	12.7	13.0	---	---	---	---	---
Oxygen content (% m)	3.65	3.7	3.7	---	---	---	---	---
Aromatic content (% vol)	26.2	19.3	20.9	---	---	---	---	---
Olefin content (% vol)	13.8	15.3	13.4	---	---	---	---	---
Saturates content (% vol)	---	52.6	52.7	---	---	---	---	---

Table S2. Analytical methods for BTEX, carbonyl compounds, and PAH samples in the gas and particulate phases with quantification limit and uncertainty

Compound family	Cartridge type	Analytical technique	Standardized method	Quantification limit	Analytical uncertainty
BTEX					
Benzene	Tenax	ATD-GC/MS*	ISO 16000-6	1 ng/cartridge	20%
Toluene					
Ethylbenzene					
m-p,Xylene					
o-Xylene					
Carbonyl					
Formaldehyde	DNPH	HPLC/UV [#]	ISO 16000-3	30 ng/cartridge	15%
Acetaldehyde					
Acetone					
Acrolein					
Propionaldehyde					
Crotonaldehyde					
Methacrolein					
Butanal					
Benzaldehyde					
Pentanal					
Hexanal					
PAHs (gas)	ORBO 43	HPLC/Fluo [§]	NIOSH 5506	10 to 100 ng/sample	20%
PAHs (particulate)				10 to 100 ng/sample	
Naphthalene	Quartz filter	HPLC/Fluo [§]	NF X43-025	10 ng/sample	20%
Acenaphthylene				100 ng/sample	
Acenaphthene				10 ng/sample	
Fluorene				10 ng/sample	
Phenanthrene				10 ng/sample	
Anthracene				10 ng/sample	
Fluoranthene				50 ng/sample	
Pyrene				10 ng/sample	
Benzo(a)anthracene				10 ng/sample	
Chrysene				10 ng/sample	
Benzo(b,j)fluoranthene				10 ng/sample	
Benzo(k)fluoranthene				10 ng/sample	
Benzo(a)pyrene				10 ng/sample	
Dibenz(a,h)anthracene				10 ng/sample	
Benzo(g,h,i)perylene				10 ng/sample	
Indeno(1,2,3-c,d)pyrene				50 ng/sample	

* ATD-GC-MS: Automated Thermal Desorption – Gas Chromatograph – Mass Spectrometer

HPLC/UV: High Performance Liquid Chromatography/Ultra Violet Detector

§ HPLC/Fluo: High Performance Liquid Chromatography/ Fluorescence Detector

Table S3. Emission factors for unregulated pollutant from Euro 6 diesel and gasoline vehicles

Diesel with DPF and NO _x trap						
	ArtROAD	ArtUrb C	ArtUrb H	ArtMW	WLTC	NEDC
BC (ng/km)	(3 ± 2)×10 ³	(2 ± 0.2)×10 ⁴	(3 ± 1)×10 ³	(4 ± 0.4)×10 ³	(4 ± 3)×10 ³	8×10 ⁴
Particles (#/km)	< BG	(2 ± 0.2)×10 ¹¹	< BG	< BG	(2 ± 1)×10 ¹⁰	3×10 ¹²
NO ₂ (mg/km)	207 ± 73	70 ± 47	229 ± 60	45 ± 51	63 ± 60	82
CH ₄ (mg/km)	6 ± 1	5 ± 0.6	2 ± 0.4	16 ± 4	5.8 ± 1.4	7
Benzene (µg/km)	95 ± 1	471 ± 300	132 ± 10	88 ± 47	300 ± 144	--
Toluene (µg/km)	26 ± 0.3	238 ± 117	39 ± 1	11 ± 2	151 ± 103	--
Ethylbenzene (µg/km)	4.5 ± 1.7	3127 ± 2292	215 ± 0.3	7 ± 3	181 ± 80	--
m+p Xylene (µg/km)	15 ± 3	289 ± 119	64 ± 22	2.6 ± 0.2	175 ± 125	--
o Xylene (µg/km)	56 ± 1	122 ± 64	24 ± 9	1.3 ± 0.1	67 ± 51	--
Naphthalene (µg/km)	1 ± 0.1	8 ± 1	25 ± 2	< DL	13	--
Formaldehyde (µg/km)	11 ± 1	57 ± 20	26 ± 3	8 ± 2	47 ± 25	--
Acetaldehyde (µg/km)	13 ± 7	150 ± 24	48 ± 15	5 ± 2	115 ± 67	--
Acetone (µg/km)	20 ± 10	257 ± 70	113 ± 36	1 ± 0.1	108 ± 34	--
Gasoline with direct injection						
	ArtROAD	ArtUrb C	ArtUrb H	ArtMW	WLTC	NEDC
BC (ng/km)	(4 ± 1)×10 ⁴	(6 ± 2)×10 ⁵	(4 ± 3) ×10 ⁴	(9.5 ± 3)×10 ⁵	(4 ± 1)×10 ⁵	4×10 ⁵
Particles (#/km)	(3 ± 1)×10 ¹³	(2 ± 1.2)×10 ¹²	(3 ± 2)×10 ¹²	(3 ± 0.3)×10 ¹⁴	(8 ± 1)×10 ¹³	1×10 ¹³
NO ₂ (mg/km)	0.1 ± 0.07	0.3 ± 0.2	0.04 ± 0.02	0.04 ± 0.02	0.3 ± 0.2	0.1
CH ₄ (mg/km)	0.5 ± 0.4	0.5 ± 0.1	0.3 ± 0.1	8 ± 1	4 ± 2	3
Benzene (µg/km)	53 ± 8	12 ± 7	3	223 ± 15	403 ± 56	--
Toluene (µg/km)	64 ± 19	63 ± 25	7 ± 2	334 ± 17	1588 ± 675	--
Ethylbenzene (µg/km)	16 ± 10	48 ± 20	3 ± 2	62 ± 23	528 ± 265	--
m+p Xylene (µg/km)	44 ± 27	202 ± 89	8 ± 2	163 ± 4	1790 ± 974	--
o Xylene (µg/km)	20 ± 10	87 ± 40	4 ± 1	69 ± 5	546 ± 181	--
Naphthalene (µg/km)	6 ± 1.8	51 ± 42	3 ± 0.2	3 ± 0.3	11 ± 8	--
Formaldehyde (µg/km)	6 ± 3.7	24 ± 2	14 ± 3	86 ± 15	35 ± 3	--
Acetaldehyde (µg/km)	3 ± 2.6	5 ± 0.5	7 ± 3.4	6 ± 1	16 ± 1	--
Acetone (µg/km)	1 ± 0.1	12 ± 14	< DL	7 ± 0.9	< DL	--

ArtUrb C/H: Artemis urban with cold or hot start

ArtROAD: Artemis road

ArtMW: Artemis motorway

< DL: below the detection limit

< BG: near background

--: no measurements for the pollutant

Table S4. Technical characteristics of the eight diesel and gasoline vehicles used for statistical analyses

Vehicle	No. 1	No. 2	No. 3	No. 4
Size class	0.9 DI	1.5 DCI	1.6 HDI	1.4 HDI
Technology	Gasoline	Diesel	Diesel	Diesel
Standard	Euro 6b	Euro 6b	Euro 5	Euro 5
Engine capacity (cm³)	999	1461	1560	1398
Empty weight (kg)	864	1087	1185	102
Mileage (km)	2164	4700	39600	45150
Gearbox type	Manual (5)	Manual (5)	Manual (5)	Manual (5)
Aftertreatment systems	TWC	DOC + Catalyzed DPF + NO _x trap	DOC + Additive DPF	DOC + Additive DPF
Registration date	12/11/2015	12/31/2015	06/06/2012	07/22/2011
Vehicle	No. 5	No. 6	No. 7	No. 8
Size class	1.5 DCI	1.4 TSI (DI)	2.0 D	1.2 i
Technology	Diesel	Gasoline	Diesel	Gasoline
Standard	Euro 5	Euro 5	Euro 4	Euro 4
Engine capacity (cm³)	1461	1390	1997	1242
Empty weight (kg)	1090	1241	1345	1030
Mileage (km)	87073	20822	130485	61719
Gearbox type	Manual (5)	Automatic (7)	Manual (6)	Manual (5)
Aftertreatment systems	DOC + Catalyzed DPF	TWC	DOC + Catalyzed DPF	TWC
Registration date	02/17/2012	06/08/2012	05/18/2010	06/25/2007

Annexe E : Proportions des BTEX mesurés dans d'autres études in-situ

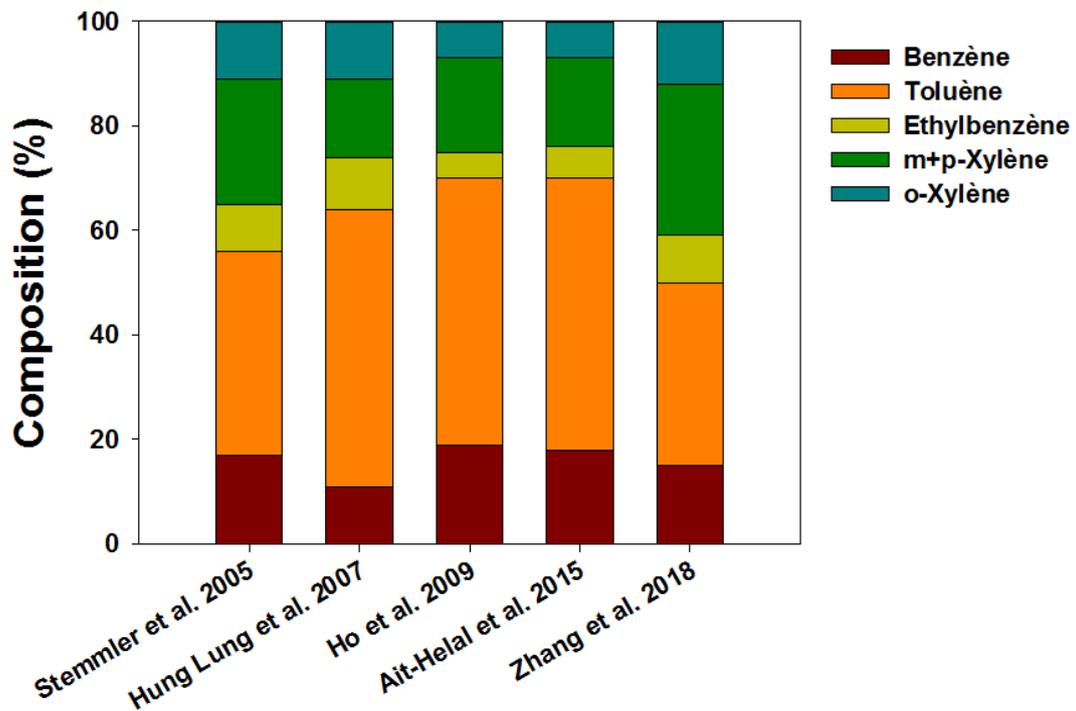


Figure 59. Proportions des facteurs d'émission des BTEX calculés dans d'autres études in-situ en tunnel (Stemmler et al., 2005 ; Hung-Lung et al., 2007 ; Ho et al., 2009 ; Ait-Helal et al., 2015 ; Zhang et al., 2018).

Références

- Ait-Helal, W., Beeldens, A., Boonen, E., Borbon, A., Boréave, A., Cazaunau, M., Chen, H., Daële, V., Dupart, Y., Gaimoz, C., 2015. On-road measurements of NMVOCs and NO_x: Determination of light-duty vehicles emission factors from tunnel studies in Brussels city center. *Atmospheric Environment* 122, 799–807.
- Alves, C.A., Lopes, D.J., Calvo, A.I., Evtyugina, M., Rocha, S., Nunes, T., 2015. Emissions from light-duty diesel and gasoline in-use vehicles measured on chassis dynamometer test cycles. *Aerosol Air Qual Res* 15, 99–116.
- Amato, F., Nava, S., Lucarelli, F., Querol, X., Alastuey, A., Baldasano, J.M., Pandolfi, M., 2010. A comprehensive assessment of PM emissions from paved roads: Real-world Emission Factors and intense street cleaning trials. *Science of The Total Environment* 408, 4309–4318.
- Ancelet, T., Davy, P.K., Trompeter, W.J., Markwitz, A., Weatherburn, D.C., 2011. Carbonaceous aerosols in an urban tunnel. *Atmospheric Environment* 45, 4463–4469.
- Andre, M., 1998. Construction de cycles de conduite représentatifs pour la mesure des émissions de polluants des véhicules. (phdthesis). Université de Grenoble.
- André, M., 2004. The ARTEMIS European driving cycles for measuring car pollutant emissions. *Science of the total Environment* 334, 73–84.
- André, M., Roche, A.L., Bourcier, L., 2014. Statistiques de parcs et trafic pour le calcul des émissions de polluants des transports routiers en France. Final report (in French), IFSTTAR LTE, available at <http://www.ademe.fr/statistiques-parcstrafic-calcul-emissions-polluants-transport-routiers-france>.
- ANSP (2016). URL <https://www.vie-publique.fr/acteurs/agence-nationale-sante-publique-ansp.html>
- Atkinson, R., Arey, J., 2003. Atmospheric degradation of volatile organic compounds. *Chemical reviews* 103, 4605–4638.
- ATMO ARA (2019). URL <https://www.atmo-auvergnerrhonealpes.fr/article/effets-sur-lenvironnement>
- Bach, C., Daniel, S., Robert, A., Stephan, L., 2008. Characterization of exhaust gas and particle emissions of modern gasoline, diesel and natural gas vehicles.
- Ban-Weiss, G.A., McLaughlin, J.P., Harley, R.A., Lunden, M.M., Kirchstetter, T.W., Kean, A.J., Strawa, A.W., Stevenson, E.D., Kendall, G.R., 2008. Long-term changes in emissions of nitrogen oxides and particulate matter from on-road gasoline and diesel vehicles. *Atmospheric Environment* 42, 220–232.
- Brimblecombe, P., Townsend, T., Lau, C.F., Rakowska, A., Chan, T.L., Močnik, G., Ning, Z., 2015. Through-tunnel estimates of vehicle fleet emission factors. *Atmospheric environment* 123, 180–189.
- Bukowiecki, N., Lienemann, P., Hill, M., Furger, M., Richard, A., Amato, F., Prévôt, A.S.H., Baltensperger, U., Buchmann, B., Gehrig, R., 2010. PM₁₀ emission factors for non-exhaust particles generated by road traffic in an urban street canyon and along a freeway in Switzerland. *Atmospheric Environment* 44, 2330–2340.

- Caplain, I., Cazier, F., Nouali, H., Mercier, A., Déchaux, J.-C., Nollet, V., Joumard, R., André, J.-M., Vidon, R., 2006. Emissions of unregulated pollutants from European gasoline and diesel passenger cars. *Atmospheric Environment* 40, 5954–5966.
- Carslaw, D.C., Beevers, S.D., Tate, J.E., Westmoreland, E.J., Williams, M.L., 2011. Recent evidence concerning higher NO_x emissions from passenger cars and light duty vehicles. *Atmospheric Environment* 45, 7053–7063.
- Chan, T.L., Ning, Z., Leung, C.W., Cheung, C.S., Hung, W.T., Dong, G., 2004. On-road remote sensing of petrol vehicle emissions measurement and emission factors estimation in Hong Kong. *Atmospheric Environment* 38, 2055–2066. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2004.01.031>
- Chan, T.L., Ning, Z., 2005. On-road remote sensing of diesel vehicle emissions measurement and emission factors estimation in Hong Kong. *Atmospheric Environment* 39, 6843–6856.
- Chen, Y., Borken-Kleefeld, J., 2014. Real-driving emissions from cars and light commercial vehicles—Results from 13 years remote sensing at Zurich/CH. *Atmospheric Environment* 88, 157–164.
- Cheng, Y.-H., Kao, Y.-Y., Liu, J.-J., 2014. Correlations between black carbon mass and size-resolved particle number concentrations in the Taipei urban area: A five-year long-term observation. *Atmospheric Pollution Research* 5, 62–72.
- Cicolella, A., 2008. Les composés organiques volatils (COV) : définition, classification et propriétés. *Rev Mal Respir* 9.
- CITEPA - SECTEN (2019). URL <https://www.citepa.org/fr/activites/inventaires-des-emissions/secten>
- Colberg, C.A., Tona, B., Stahel, W.A., Meier, M., Stachelin, J., 2005. Comparison of a road traffic emission model (HBEFA) with emissions derived from measurements in the Gubrist road tunnel, Switzerland. *Atmospheric Environment* 39, 4703–4714.
- Daham, B., Li, H., Andrews, G.E., Ropkins, K., Tate, J.E., Bell, M.C., 2009. Comparison of real world emissions in urban driving for euro 1-4 vehicles using a PEMS. SAE Technical Paper.
- Dai, S., Bi, X., Chan, L.Y., He, J., Wang, B., Wang, X., Peng, P., Sheng, G., Fu, J., 2015. Chemical and stable carbon isotopic composition of PM 2.5 from on-road vehicle emissions in the PRD region and implications for vehicle emission control policy. *Atmospheric Chemistry and Physics* 15, 3097–3108.
- Dearth, M.A., Butler, J.W., Colvin, A., Gierczak, C., Kaberline, S., Korniski, T., 2005. SemtechD: the chassis roll evaluation of a commercial portable emission measurement system (PEMS). SAE Technical Paper.
- Dunmore, R.E., Hopkins, J.R., Lidster, R.T., Lee, J.D., Evans, M.J., Rickard, A.R., Lewis, A.C., Hamilton, J.F., 2015. Diesel-related hydrocarbons can dominate gas phase reactive carbon in megacities. *Atmospheric Chemistry and Physics* 15, 9983–9996.
- Durbin, T.D., Johnson, K., Cocker, D.R., Miller, J.W., Maldonado, H., Shah, A., Ensfield, C., Weaver, C., Akard, M., Harvey, N., 2007. Evaluation and comparison of portable emissions measurement systems and federal reference methods for emissions from a back-up generator and a diesel truck operated on a chassis dynamometer. *Environmental science & technology* 41, 6199–6204.
- Ekström, M., Sjödin, \AA, Andreasson, K., 2004. Evaluation of the COPERT III emission model with on-road optical remote sensing measurements. *Atmospheric Environment* 38, 6631–6641.

- EMEP/EEA (2016). URL <https://www.eea.europa.eu/publications/emep-eea-guidebook-2016>
- Fanelli, R.M., Di Nocera, A., 2018. Customer perceptions of Japanese foods in Italy. *Journal of Ethnic Foods*.
- Fayemiwo, O.M., Daramola, M.O., Moothi, K., 2017. BTEX compounds in water—future trends and directions for water treatment. *Water SA* 43, 602–613.
- Fino, D., 2007. Diesel emission control: Catalytic filters for particulate removal. *Science and Technology of Advanced Materials* 8, 93–100.
- Fontaras, G., Franco, V., Dilara, P., Martini, G., Manfredi, U., 2014. Development and review of Euro 5 passenger car emission factors based on experimental results over various driving cycles. *Science of the Total Environment* 468, 1034–1042.
- Franco, V., Kousoulidou, M., Muntean, M., Ntziachristos, L., Hausberger, S., Dilara, P., 2013. Road vehicle emission factors development: A review. *Atmospheric Environment* 70, 84–97.
- Gallus, J., Kirchner, U., Vogt, R., Börensen, C., Benter, T., 2016. On-road particle number measurements using a portable emission measurement system (PEMS). *Atmospheric environment* 124, 37–45.
- Geller, M.D., Sardar, S.B., Phuleria, H., Fine, P.M., Sioutas, C., 2005. Measurements of particle number and mass concentrations and size distributions in a tunnel environment. *Environmental Science & Technology* 39, 8653–8663.
- Gentner, D.R., Isaacman, G., Worton, D.R., Chan, A.W.H., Dallmann, T.R., Davis, L., Liu, S., Day, D.A., Russell, L.M., Wilson, K.R., Weber, R., Guha, A., Harley, R.A., Goldstein, A.H., 2012. Elucidating secondary organic aerosol from diesel and gasoline vehicles through detailed characterization of organic carbon emissions. *Proceedings of the National Academy of Sciences* 109, 18318–18323.
- Gertler, A.W., Gillies, J.A., Pierson, W.R., Rogers, C.F., Sagebiel, J.C., Abu-Allaban, M., Coulombe, W., Tarnay, L., Cahill, T.A., 2002. Real-world particulate matter and gaseous emissions from motor vehicles in a highway tunnel. Research report (Health Effects Institute) 5–56.
- Gidney, J.T., Twigg, M.V., Kittelson, D.B., 2010. Effect of organometallic fuel additives on nanoparticle emissions from a gasoline passenger car. *Environmental science & technology* 44, 2562–2569.
- GIEC, 2013. Changements climatiques 2013 les éléments scientifiques : résumé à l'intention des décideurs : rapport du groupe de travail I du GIEC : résumé technique : rapport accepté par le Groupe de travail I du GIEC mais non approuvé dans le détail et foire aux questions : extraits de la contribution du groupe de travail I au cinquième rapport d'évaluation du Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat. Geneva, Switzerland: Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat.
- Giechaskiel, B., Dilara, P., Andersson, J., 2008. Particle measurement programme (PMP) light-duty inter-laboratory exercise: repeatability and reproducibility of the particle number method. *Aerosol Science and Technology* 42, 528–543.
- Giechaskiel, B., Chirico, R., DeCarlo, P.F., Clairotte, M., Adam, T., Martini, G., Heringa, M.F., Richter, R., Prevot, A.S.H., Baltensperger, U., 2010. Evaluation of the particle measurement programme (PMP) protocol to remove the vehicles' exhaust aerosol volatile phase. *Science of the total environment* 408, 5106–5116.

- Giechaskiel, B., Riccobono, F., Vlachos, T., Mendoza-Villafuerte, P., Suarez-Bertoa, R., Fontaras, G., Bonnel, P., Weiss, M., 2015. Vehicle emission factors of solid nanoparticles in the laboratory and on the road using portable emission measurement systems (PEMS). *Frontiers in Environmental Science* 3, 82.
- Giechaskiel, B., Schwelberger, M., Delacroix, C., Marchetti, M., Feijen, M., Prieger, K., Andersson, S., Karlsson, H.L., 2018. Experimental assessment of solid particle number Portable Emissions Measurement Systems (PEMS) for heavy-duty vehicles applications. *Journal of Aerosol Science* 123, 161–170.
- Gierczak, C.A., Korniski, T.J., Wallington, T.J., Butler, J.W., 2006. Laboratory evaluation of the SEMTECH-G® portable emissions measurement system (PEMS) For gasoline fueled vehicles. SAE Technical Paper.
- Gietl, J.K., Lawrence, R., Thorpe, A.J., Harrison, R.M., 2010. Identification of brake wear particles and derivation of a quantitative tracer for brake dust at a major road. *Atmospheric Environment* 44, 141–146.
- Gramotnev, G., Ristovski, Z.D., Brown, R.J., Madl, P., 2004. New methods of determination of average particle emission factors for two groups of vehicles on a busy road. *Atmospheric environment* 38, 2607–2610.
- Guo, H., Zhang, Q., Shi, Y., Wang, D., 2007. On-road remote sensing measurements and fuel-based motor vehicle emission inventory in Hangzhou, China. *Atmospheric Environment* 41, 3095–3107.
- Haddad, I.E., 2011. Fractions primaire et secondaire de l'aérosol organique : Méthodologies et application à un environnement urbain méditerranéen, Marseille.
- Hall, D.E., Doel, R., Jørgensen, R., King, D.J., Mann, N., Scorletti, P., Heinze, P., 1998. Polycyclic aromatic hydrocarbons in automotive exhaust emissions and fuels. *Concawe Report*.
- Handler, M., Puls, C., Zbiral, J., Marr, I., Puxbaum, H., Limbeck, A., 2008. Size and composition of particulate emissions from motor vehicles in the Kaisermühlen-Tunnel, Vienna. *Atmospheric Environment* 42, 2173–2186.
- Harrison, R.M., Deacon, A.R., Jones, M.R., Appleby, R.S., 1997. Sources and processes affecting concentrations of PM₁₀ and PM_{2.5} particulate matter in Birmingham (UK). *Atmospheric Environment* 31, 4103–4117.
- Harrison, R.M., 2009. Airborne particulate matter from road traffic: current status of knowledge and research challenges paper presented at the ETTAO09. In: 17th Transport and Air Pollution Symposium e 3rd Environment and Transport Symposium.
- Hausberger, S., Rodler, J., Sturm, P., Rexeis, M., 2003. Emission factors for heavy-duty vehicles and validation by tunnel measurements. *Atmospheric Environment* 37, 5237–5245.
- Ho, K.F., Lee, S.C., Ho, W.K., Blake, D.R., Cheng, Y., Li, Y.S., Ho, S.S.H., Fung, K., Louie, P.K.K., Park, D., 2009. Vehicular emission of volatile organic compounds (VOCs) from a tunnel study in Hong Kong. *Atmospheric chemistry and physics* 9, 7491–7504.
- Hsu, Y.-C., Tsai, J.-H., Chen, H.-W., Lin, W.-Y., 2001. Tunnel study of on-road vehicle emissions and the photochemical potential in Taiwan. *Chemosphere* 42, 227–234.

- Hudda, N., Fruin, S., Delfino, R.J., Sioutas, C., 2013. Efficient determination of vehicle emission factors by fuel use category using on-road measurements: downward trends on Los Angeles freight corridor I-710. *Atmospheric chemistry and physics* 13, 347–357.
- Hueglin, C., Buchmann, B., Weber, R.O., 2006. Long-term observation of real-world road traffic emission factors on a motorway in Switzerland. *Atmospheric Environment* 40, 3696–3709.
- Hung-Lung, C., Ching-Shyung, H., Shih-Yu, C., Ming-Ching, W., Sen-Yi, M., Yao-Sheng, H., 2007. Emission factors and characteristics of criteria pollutants and volatile organic compounds (VOCs) in a freeway tunnel study. *Science of the Total Environment* 381, 200–211.
- Imhof, D., Weingartner, E., Ordóñez, C., Gehrig, R., Hill, M., Buchmann, B., Baltensperger, U., 2005. Real-world emission factors of fine and ultrafine aerosol particles for different traffic situations in Switzerland. *Environmental science & technology* 39, 8341–8350.
- Jamriska, M., Morawska, L., Thomas, S., He, C., 2004. Diesel bus emissions measured in a tunnel study. *Environmental science & technology* 38, 6701–6709.
- Johansson, C., Norman, M., Burman, L., 2009. Road traffic emission factors for heavy metals. *Atmospheric Environment, Urban Air Quality* 43, 4681–4688.
- Jones, A.M., Harrison, R.M., 2006. Estimation of the emission factors of particle number and mass fractions from traffic at a site where mean vehicle speeds vary over short distances. *Atmospheric Environment* 40, 7125–7137.
- Joumard, R., André, M., Vidon, R., Tassel, P., Pruvost, C., 2000. Influence of driving cycles on unit emissions from passenger cars. *Atmospheric environment* 34, 4621–4628.
- Kadijk, G., van Mensch, P., Spreen, J., 2015a. Detailed Investigations and Real-world Emission Performance of Euro 6 Diesel Passenger Cars. TNO report 2015R10702, Delft, the Netherlands, p. 75.
- Kadijk, G., Ligterink, N.E., Spreen, J., 2015b. On-road NO_x and CO₂ Investigations of Euro 5 Light Commercial Vehicles. TNO report 2015 R10192, Delft, the Netherlands, p. 30.
- Kam, W., Liacos, J.W., Schauer, J.J., Delfino, R.J., Sioutas, C., 2012. On-road emission factors of PM pollutants for light-duty vehicles (LDVs) based on urban street driving conditions. *Atmospheric Environment* 61, 378–386.
- Kawashima, H., Minami, S., Hanai, Y., Fushimi, A., 2006. Volatile organic compound emission factors from roadside measurements. *Atmospheric Environment* 40, 2301–2312.
- Kean, A.J., Sawyer, R.F., Harley, R.A., Kendall, G.R., 2002. Trends in exhaust emissions from in-use California light-duty vehicles, 1994-2001. *SAE Transactions* 710–717.
- Kean, A.J., Littlejohn, D., Ban-Weiss, G.A., Harley, R.A., Kirchstetter, T.W., Lunden, M.M., 2009. Trends in on-road vehicle emissions of ammonia. *Atmospheric Environment* 43, 1565–1570.
- Kerchich, Y., Kerbachi, R., 2012. Measurement of BTEX (benzene, toluene, ethylbenzene, and xylene) levels at urban and semirural areas of Algiers City using passive air samplers. *Journal of the Air & Waste Management Association* 62, 1370–1379.
- Ketzel, M., Wählin, P., Berkowicz, R., Palmgren, F., 2003. Particle and trace gas emission factors under urban driving conditions in Copenhagen based on street and roof-level observations. *Atmospheric Environment* 37, 2735–2749.

- Kim, Y., Sartelet, K., Seigneur, C., Charron, A., Besombes, J.-L., Jaffrezo, J.-L., Marchand, N., Polo, L., 2016. Effect of measurement protocol on organic aerosol measurements of exhaust emissions from gasoline and diesel vehicles. *Atmospheric environment* 140, 176–187.
- Kittelson, D.B., Watts, W.F., Johnson, J.P., 2006. On-road and laboratory evaluation of combustion aerosols—Part1: Summary of diesel engine results. *Journal of Aerosol Science* 37, 913–930.
- Knibbs, L.D., Cole-Hunter, T., Morawska, L., 2011. A review of commuter exposure to ultrafine particles and its health effects. *Atmospheric Environment* 45, 2611–2622.
- Köhler, F., 2013. Testing of particulate emissions from positive ignition vehicles with direct fuel injection system. Technical Report.
- Krecl, P., Johansson, C., Targino, A.C., Ström, J., Burman, L., 2017. Trends in black carbon and size-resolved particle number concentrations and vehicle emission factors under real-world conditions. *Atmospheric Environment* 165, 155–168.
- Krecl, P., Targino, A.C., Landi, T.P., Ketzel, M., 2018. Determination of black carbon, PM 2.5, particle number and NOx emission factors from roadside measurements and their implications for emission inventory development. *Atmospheric Environment*.
- Kumar, P., Fennell, P., Langley, D., Britter, R., 2008. Pseudo-simultaneous measurements for the vertical variation of coarse, fine and ultrafine particles in an urban street canyon. *Atmospheric Environment* 42, 4304–4319.
- Lechowicz, S., Jayaratne, R., Morawska, L., Jamriska, M., 2008. Development of a methodology for the quantification of particle number and gaseous concentrations in a bidirectional bus tunnel and the derivation of emission factors. *Atmospheric Environment* 42, 8353–8357.
- Lewtas, J., 2007. Air pollution combustion emissions: Characterization of causative agents and mechanisms associated with cancer, reproductive, and cardiovascular effects. *Mutation Research/Reviews in Mutation Research, The Sources and Potential Hazards of Mutagens in Complex Environmental Matrices - Part II* 636, 95–133.
- Liang, B., Ge, Y., Tan, J., Han, X., Gao, L., Hao, L., Ye, W., Dai, P., 2013. Comparison of PM emissions from a gasoline direct injected (GDI) vehicle and a port fuel injected (PFI) vehicle measured by electrical low pressure impactor (ELPI) with two fuels: Gasoline and M15 methanol gasoline. *Journal of Aerosol Science* 57, 22–31.
- Lingard, J.J., Agus, E.L., Young, D.T., Andrews, G.E., Tomlin, A.S., 2006. Observations of urban airborne particle number concentrations during rush-hour conditions: analysis of the number based size distributions and modal parameters. *Journal of Environmental Monitoring* 8, 1203–1218.
- Liu, H., Barth, M., Scora, G., Davis, N., Lents, J., 2010. Using portable emission measurement systems for transportation emissions studies: Comparison with laboratory methods. *Transportation research record* 2158, 54–60.
- Liu, Y., Martinet, S., Louis, C., Pasquier, A., Tassel, P., Perret, P., 2017. Emission Characterization of In-Use Diesel and Gasoline Euro 4 to Euro 6 Passenger Cars Tested on Chassis Dynamometer Bench and Emission Model Assessment. *Aerosol and Air Quality Research* 17, 2289–2299.
- Lohmeyer, A., Lambrecht, U., Peranic, Z., Boesinger, R. 2002. Validation of vehicle road PM10 emission models by the Karlsruhe PM10 validation data set and the results of the regular German state

- monitoring stations. In: Proceedings of the Eighth International Conference on Harmonisation within atmospheric Dispersion Modelling for Regulatory Purposes. Sofia, Bulgaria.
- Louis, C., Liu, Y., Tassel, P., Perret, P., Chaumond, A., André, M., 2016. PAH, BTEX, carbonyl compound, black-carbon, NO₂ and ultrafine particle dynamometer bench emissions for Euro 4 and Euro 5 diesel and gasoline passenger cars. *Atmospheric Environment* 141, 80–95.
- Louis, C., Goriaux, M., Tassel, P., Perret, P., André, M., Liu, Y., 2016. Impact of Aftertreatment Device and Driving Conditions on Black Carbon, Ultrafine Particle and NO_x Emissions for Euro 5 Diesel and Gasoline Vehicles. *Transportation Research Procedia* 14, 3079–3088.
- Louis, C., 2018. Impacts des technologies de dépollution et des conditions de conduites sur les émissions primaires des véhicules et leur évolution dans l’atmosphère (PhD Thesis).
- Lu, Q., Zhao, Y., Robinson, A.L., 2018. Comprehensive organic emission profiles for gasoline, diesel, and gas-turbine engines including intermediate and semi-volatile organic compound emissions. *Atmospheric Chemistry and Physics* 18, 17637–17654.
- Martinet, S., Liu, Y., Louis, C., Tassel, P., Perret, P., Chaumond, A., André, M., 2017. Euro 6 Unregulated Pollutant Characterization and Statistical Analysis of After-Treatment Device and Driving-Condition Impact on Recent Passenger-Car Emissions. *Environ. Sci. Technol.* 51, 5847–5855.
- May, A.A., Presto, A.A., Hennigan, C.J., Nguyen, N.T., Gordon, T.D., Robinson, A.L., 2013a. Gas-particle partitioning of primary organic aerosol emissions:(1) Gasoline vehicle exhaust. *Atmospheric environment* 77, 128–139.
- May, A.A., Presto, A.A., Hennigan, C.J., Nguyen, N.T., Gordon, T.D., Robinson, A.L., 2013b. Gas-particle partitioning of primary organic aerosol emissions:(2) Diesel vehicles. *Environmental science & technology* 47, 8288–8296.
- May, J., Bosteels, D., Favre, C., 2014. An assessment of emissions from light-duty vehicles using PEMS and chassis dynamometer testing. *SAE International Journal of Engines* 7, 1326–1335.
- Miyoshi, N., Matsumoto, S., Katoh, K., Tanaka, T., Harada, J., Takahashi, N., Yokota, K., Sugiura, M., Kasahara, K., 1995. Development of new concept three-way catalyst for automotive lean-burn engines. *SAE Technical Paper*.
- Mohr, M., Forss, A.-M., Lehmann, U., 2006. Particle emissions from diesel passenger cars equipped with a particle trap in comparison to other technologies. *Environmental science & technology* 40, 2375–2383.
- Ning, Z., Wubulihairan, M., Yang, F., 2012. PM, NO_x and butane emissions from on-road vehicle fleets in Hong Kong and their implications on emission control policy. *Atmospheric Environment* 61, 265–274.
- Ntziachristos, L., Papadimitriou, G., Ligterink, N., Hausberger, S., 2016. Implications of diesel emissions control failures to emission factors and road transport NO_x evolution. *Atmospheric Environment* 141, 542–551.
- O’Driscoll, R., ApSimon, H.M., Oxley, T., Molden, N., Stettler, M.E., Thiyagarajah, A., 2016. A Portable Emissions Measurement System (PEMS) study of NO_x and primary NO₂ emissions from Euro 6 diesel passenger cars and comparison with COPERT emission factors. *Atmospheric Environment* 145, 81–91.

- OMS (2019). URL <http://www.euro.who.int/fr/health-topics/environment-and-health/urban-health/news/news/2019/6/beat-air-pollution-to-protect-health-world-environment-day-2019>
- OMS (2014). URL <https://www.who.int/mediacentre/news/releases/2014/air-quality/fr/>
- Ondráček, J., Schwarz, J., Ždímal, V., Andělová, L., Vodička, P., Bízek, V., Tsai, C.-J., Chen, S.-C., Smolík, J., 2011. Contribution of the road traffic to air pollution in the Prague city (busy speedway and suburban crossroads). *Atmospheric Environment* 45, 5090–5100.
- Ots, R., Young, D.E., Vieno, M., Xu, L., Dunmore, R.E., Allan, J.D., Coe, H., Williams, L.R., Herndon, S.C., Ng, N.L., 2016. Simulating secondary organic aerosol from missing diesel-related intermediate-volatility organic compound emissions during the Clean Air for London (ClearfLo) campaign. *Atmospheric Chemistry and Physics* 16, 6453–6473.
- Padro-Martinez, L.T., Patton, A.P., Trull, J.B., Zamore, W., Brugge, D., Durant, J.L., 2012. Mobile monitoring of particle number concentration and other traffic-related air pollutants in a near-highway neighborhood over the course of a year. *Atmospheric Environment* 61, 253–264.
- Pant, P., Harrison, R.M., 2013. Estimation of the contribution of road traffic emissions to particulate matter concentrations from field measurements: a review. *Atmospheric Environment* 77, 78–97.
- Pelkmans, L., Debal, P., 2006. Comparison of on-road emissions with emissions measured on chassis dynamometer test cycles. *Transportation Research Part D: Transport and Environment* 11, 233–241.
- Phuleria, H.C., Sheesley, R.J., Schauer, J.J., Fine, P.M., Sioutas, C., 2007. Roadside measurements of size-segregated particulate organic compounds near gasoline and diesel-dominated freeways in Los Angeles, CA. *Atmospheric Environment* 41, 4653–4671.
- Pierson, W.R., Gertler, A.W., Robinson, N.F., Sagebiel, J.C., Zielinska, B., Bishop, G.A., Stedman, D.H., Zweidinger, R.B., Ray, W.D., 1996. Real-world automotive emissions—summary of studies in the Fort McHenry and Tuscarora mountain tunnels. *Atmospheric Environment* 30, 2233–2256.
- Pope, C.A., Burnett, R.T., Thun, M.J., Calle, E.E., Krewski, D., Ito, K., Thurston, G.D., 2002. Lung cancer, cardiopulmonary mortality, and long-term exposure to fine particulate air pollution. *JAMA* 287, 1132–1141.
- Pope, C.A., Renlund, D.G., Kfoury, A.G., May, H.T., Horne, B.D., 2008. Relation of Heart Failure Hospitalization to Exposure to Fine Particulate Air Pollution. *The American Journal of Cardiology* 102, 1230–1234.
- Prasad, R., Bella, V.R., 2011. A review on diesel soot emission, its effect and control. *Bulletin of Chemical Reaction Engineering & Catalysis* 5, 69–86.
- Ravindra, K., Sokhi, R., Van Grieken, R., 2008. Atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons: source attribution, emission factors and regulation. *Atmospheric Environment* 42, 2895–2921.
- Reche, C., Querol, X., Alastuey, A., Viana, M., Pey, J., Moreno, T., Rodríguez, S., González, Y., Fernández-Camacho, R., Rosa, J., 2011. New considerations for PM, Black Carbon and particle number concentration for air quality monitoring across different European cities. *Atmospheric Chemistry and Physics* 11, 6207–6227.
- Rehn, L.P., 2013. Caractérisation et impacts des émissions de polluants du transport routier : Apports méthodologiques et cas d'études en Rhône Alpes. (phdthesis). Université de Grenoble.

- Reşitoğlu, İ.A., Altinişik, K., Keskin, A., 2015. The pollutant emissions from diesel-engine vehicles and exhaust aftertreatment systems. *Clean Technologies and Environmental Policy* 17, 15–27.
- Robinson, A.L., Grieshop, A.P., Donahue, N.M., Hunt, S.W., 2010. Updating the conceptual model for fine particle mass emissions from combustion systems Allen L. Robinson. *Journal of the Air & Waste Management Association* 60, 1204–1222.
- Rodríguez, S., Cuevas, E., González, Y., Ramos, R., Romero, P.M., Pérez, N., Querol, X., Alastuey, A., 2008. Influence of sea breeze circulation and road traffic emissions on the relationship between particle number, black carbon, PM₁, PM_{2.5} and PM_{2.5–10} concentrations in a coastal city. *Atmospheric Environment* 42, 6523–6534.
- Rose, D., Wehner, B., Ketzel, M., Engler, C., Voigtländer, J., Tuch, T., Wiedensohler, A., 2005. Atmospheric number size distributions of soot particles and estimation of emission factors. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions* 5, 10125–10154.
- Rubino, L., Bonnel, P., Hummel, R., Krasenbrink, A., Manfredi, U., De Santi, G., Perotti, M., Bomba, G., 2007. PEMS light duty vehicles application: experiences in downtown Milan. SAE Technical Paper.
- Rubino, L., Bonnel, P., Carriero, M., Krasenbrink, A., 2010. Portable emission measurement system (PEMS) for heavy duty diesel vehicle PM measurement: the European PM PEMS program. *SAE International Journal of Engines* 2.
- Schifter, I., Díaz, L., Rodríguez, R., Durán, J., Chávez, O., 2008. Trends in exhaust emissions from in-use Mexico City vehicles, 2000–2006. A remote sensing study. *Environmental Monitoring and Assessment* 137, 459–470.
- Silverman, D.T., Samanic, C.M., Lubin, J.H., Blair, A.E., Stewart, P.A., Vermeulen, R., Coble, J.B., Rothman, N., Schleiff, P.L., Travis, W.D., 2012. The diesel exhaust in miners study: a nested case–control study of lung cancer and diesel exhaust. *Journal of the National Cancer Institute* 104, 855–868.
- Singer, B.C., Harley, R.A., 1996. A fuel-based motor vehicle emission inventory. *Journal of the Air & Waste Management Association* 46, 581–593.
- Sluder, C.S., West, B.H., 2000. Catalyzed diesel particulate filter performance in a light-duty vehicle. SAE Technical Paper.
- Stemmler, K., Bugmann, S., Buchmann, B., Reimann, S., Staehelin, J., 2005. Large decrease of VOC emissions of Switzerland’s car fleet during the past decade: results from a highway tunnel study. *Atmospheric Environment* 39, 1009–1018.
- Sydbom, A., Blomberg, A., Parnia, S., Stenfors, N., Sandström, T., Dahlén, S.-E., 2001. Health effects of diesel exhaust emissions. *European Respiratory Journal* 17, 733–746.
- Terzano, C., Di Stefano, F., Conti, V., Graziani, E., Petroianni, A., 2010. Air pollution ultrafine particles: toxicity beyond the lung. *Eur Rev Med Pharmacol Sci* 14, 809–821.
- Wang, F., Ketzel, M., Ellermann, T., Wa, P., 2010. Particle number, particle mass and NO_x emission factors at a highway and an urban street in Copenhagen. *Atmos. Chem. Phys.* 20.
- Weiss, M., Bonnel, P., Hummel, R., Manfredi, U., Colombo, R., Lanappe, G., Le Lijour, P., Sculati, M., 2011. Analyzing on-road emissions of light-duty vehicles with Portable Emission Measurement Systems (PEMS). JRC Scientific and Technical Reports, EUR 24697.

- Westerdahl, D., Wang, X., Pan, X., Zhang, K.M., 2009. Characterization of on-road vehicle emission factors and microenvironmental air quality in Beijing, China. *Atmospheric Environment* 43, 697–705.
- Westerholm, R., Christensen, A., Rosén, A., 1996. Regulated and unregulated exhaust emissions from two three-way catalyst equipped gasoline fuelled vehicles. *Atmospheric Environment* 30, 3529–3536.
- Wichmann, H.E., Spix, C., Tuch, T., Wölke, G., Peters, A., Heinrich, J., Kreyling, W.G., Heyder, J., 2000. Daily mortality and fine and ultrafine particles in Erfurt, Germany part I: role of particle number and particle mass. *Res Rep Health Eff Inst* 5–86; discussion 87-94.
- Wildt, A. R., & Ahtola, O. T. (1978). *Analysis of covariance*. Newbury Park, CA: Sage Publications. View.
- Yan, B., Zheng, M., Hu, Y., Ding, X., Sullivan, A.P., Weber, R.J., Baek, J., Edgerton, E.S., Russell, A.G., 2009. Roadside, urban, and rural comparison of primary and secondary organic molecular markers in ambient PM_{2.5}. *Environmental science & technology* 43, 4287–4293.
- Yang, L., Franco, V., Mock, P., Kolke, R., Zhang, S., Wu, Y. and German, J., 2015. Experimental Assessment of NO_x Emissions from 73 Euro 6 Diesel Passenger Cars. *Environ. Sci. Technol.* 49: 14409–14415.
- Yli-Tuomi, T., Aarnio, P., Pirjola, L., Mäkelä, T., Hillamo, R., Jantunen, M., 2005. Emissions of fine particles, NO_x, and CO from on-road vehicles in Finland. *Atmospheric Environment* 39, 6696–6706.
- Zhang, Y., Wang, X., Li, G., Yang, W., Huang, Zhonghui, Zhang, Z., Huang, X., Deng, W., Liu, T., Huang, Zuzhao, 2015. Emission factors of fine particles, carbonaceous aerosols and traces gases from road vehicles: recent tests in an urban tunnel in the Pearl River Delta, China. *Atmospheric Environment* 122, 876–884.
- Zhang, Y., Yang, W., Simpson, I., Huang, X., Yu, J., Huang, Zhonghui, Wang, Z., Zhang, Z., Liu, D., Huang, Zuzhao, 2018. Decadal changes in emissions of volatile organic compounds (VOCs) from on-road vehicles with intensified automobile pollution control: Case study in a busy urban tunnel in south China. *Environmental Pollution* 233, 806–819.
- Zhao, Y., Nguyen, N.T., Presto, A.A., Hennigan, C.J., May, A.A., Robinson, A.L., 2015. Intermediate volatility organic compound emissions from on-road diesel vehicles: chemical composition, emission factors, and estimated secondary organic aerosol production. *Environmental science & technology* 49, 11516–11526.
- Zhao, Y., Nguyen, N.T., Presto, A.A., Hennigan, C.J., May, A.A., Robinson, A.L., 2016. Intermediate volatility organic compound emissions from on-road gasoline vehicles and small off-road gasoline engines. *Environmental science & technology* 50, 4554–4563.
- Zhu, L., Yu, J., Wang, X., 2007. Oxidation treatment of diesel soot particulate on CexZr1-xO2. *Journal of Hazardous Materials* 140, 205–210.