THESE

En vue de l'obtention du diplôme de

Doctorat de l'**UNIVERSITE PARIS. DIDEROT (Paris 7)**

Ecole doctorale : Sciences de l'environnement de l'Ile de France

Spécialité :

Chimie de la Pollution Atmosphérique et Physique de l'Environnement

---

Les Emissions d'Ammoniac par les Activités Agricoles : Impact sur la Qualité de l'Air

---

Thèse rédigée par Lynda HAMAOUI-LAGUEL

Jury composé de :

NEFTEL A. :	Responsable de recherche, Agroscope, Zurich	Rapporteur
SERÇA D. :	Maître de conférences, CNRS-LA, Toulouse	Rapporteur
BALDASANO J.M.:	Professeur, BSV-CNS, Barcelone	Examinateur
GENERMONT S. :	Chargée de recherche, INRA, Grignon	Examinatrice
MATHIAS E. :	Ingénieur CITEPA, Paris	Examinateur
MELEUX F. :	Ingénieur INERIS, Verneuil-en-Halatte	Encadrant
BEEKMANN M. :	Directeur de recherche, CNRS, Paris	Directeur de thèse

RESUME

La période de mars – avril 2007 a été marquée par plusieurs vagues d'épisodes de pollution dues aux particules en Europe de l'Ouest. En France, plusieurs mesures in-situ ont relevé la forte proportion de nitrate d'ammonium dans la composition des particules identifiant ainsi leur forte origine agricole. Les prévisions du modèle de chimie transport CHIMERE (plateforme PREV'AIR) ont affiché une sous-estimation de la concentration en particules durant ces épisodes ainsi que de leur teneur en nitrate d'ammonium.

Une nouvelle approche a été adoptée pour l'estimation des émissions d'ammoniac provenant de la fertilisation minérale des sols agricoles. Ces émissions ont été calculées avec un modèle mécaniste unidimensionnel (1D) "VOLT'AIR'' (développé à l'INRA) couplé avec des données spatialisées concernant les pratiques agricoles, les propriétés du sol et la météorologie. Les données requises par ce modèle ont nécessité un important travail de recensement des pratiques agricoles au niveau national et de nombreux traitements pour être spatialisées. Les émissions d'ammoniac liées aux autres sources agricoles (bâtiments d'élevage, stockage et épandage d'engrais organiques) sont extraites à l'échelle du canton de l'inventaire national spatialisé (INS) récemment développé en France, et par la suite finement spatialisées.

Les émissions modélisées montrent des variations spatiotemporelles qui dépendent du pH du sol, des taux et dates de fertilisation et des variables météorologiques, notamment la température de surface du sol et la vitesse du vent. La comparaison des émissions agricoles d'ammoniac calculées avec la nouvelle approche VOLT'AIR_INS (VOLT'AIR pour la fertilisation minérale et l'INS pour les autres sources agricoles) ou issues de l'INS (pour l'ensemble des sources agricoles d'ammoniac) avec celles fournies par EMEP (*European Monitoring and Evaluation Programme*) utilisées habituellement dans le modèle CHIMERE montre des différences significatives dans les distributions spatiales et temporelles.

Afin d'étudier et de comparer l'impact de la variabilité des émissions d'ammoniac sur la formation des particules de nitrates d'ammonium, des simulations ont été réalisées avec le modèle CHIMERE sur la période allant de mi-février à mi-mai de l'année 2007 en utilisant les émissions obtenues avec les trois méthodes VOLT'AIR_INS, INS et EMEP. Les résultats montrent que les modifications d'émissions d'ammoniac se répercutent sur la teneur en particules, mais de façon différenciée selon la région, en fonction des teneurs en nitrates. Les concentrations modélisées ont été comparées avec les concentrations mesurées des PM10 (matière particulaire avec un diamètre aérodynamique inférieur à 10 µm) et des particules de nitrate d'ammonium dans le but d'évaluer l'apport de la nouvelle approche de calcul des émissions d'ammoniac sur la formation des particules. Une légère amélioration de la corrélation spatiotemporelle pour certaines régions et une réduction limitée du biais négatif (1 à 2 $\mu g/m^3$) sont mises en évidence. La formation du nitrate d'ammonium ne dépend pas que des concentrations en ammoniac mais aussi de la disponibilité en acide nitrique souvent limitant en régions rurales et des conditions météorologiques.

***Mots-clés** : Modélisation, agriculture, émissions, ammoniac, qualité de l'air, PM10, nitrate d'ammonium.*

ABSTRACT

Within the period March – April 2007, episodes with high particulate matter concentrations occurred in Western Europe. In France, the analysis of the aerosol composition showed high concentrations of ammonium nitrate over several regions. For these episodes, forecasting made with the chemical transport model (CTM) CHIMERE (within the operational platform for air quality monitoring and forecasting PREV'AIR) have underestimated PM10 concentrations and their ammonium nitrate content.

A new approach has been set up to compute the ammonia emissions coming from mineral fertilizer spreading over agricultural soils. They are calculated using the one dimensional mechanistic model "VOLT'AIR" (developed at INRA) which has been coupled with datasets on cultural practices, soil properties and meteorology. A considerable effort was made to collect agricultural practice data at national level and several processing performed for their spatialisation. Ammonia emissions from other agricultural sources (animal housing, manure storage and organic manure spreading) are extracted at local scale from the national spatialised inventory (INS) recently developed in France and thereafter finely spatialised.

The modelled emissions show high spatiotemporal variations depending on soil pH, rates and dates of fertilization and meteorological variables, especially soil temperature and wind speed. The comparison of the total ammonia emissions estimated with the new approach VOLT'AIR_INS (VOLT'AIR for mineral fertilization and INS for other agricultural sources) and INS (for overall agricultural sources) with the standard emissions provided by EMEP (*European Monitoring and Evaluation Programme) and currently* used in the CHIMERE model shows significant differences in the spatial and temporal distributions.

To assess and compare the impact of ammonia emission variability on the formation of ammonium nitrate particles, several simulations were carried out with CHIMERE for the period of February-May 2007 using ammonia emissions from the three methods : VOLT'AIR_INS, INS et EMEP. The results show that changes in ammonia emissions have different effects on particle concentrations depending on regions and nitrate concentrations The comparison of modelled PM10 (particulate matter with aerodynamic diameter smaller than 10 µm) and ammonium nitrate aerosol with observations shows that the use of the new ammonia emission method improves slightly the spatiotemporal correlation in several regions and lightly reduces the negative bias (1 to 2 µg m^{-3} on average).

The formation of ammonium nitrate aerosol depends not only on ammonia concentrations but also on nitric acid availability which can be a limiting factor in rural regions and on meteorological conditions.

Keywords: modelling, agriculture, ammonia, emissions, air quality, PM10, ammonium nitrate.