Rapport final du projet

« Emissions d'oxydes d'azote par les sols. Mesures, modélisation, cadastre et inventaire. Impact sur la qualité de l'air, le changement climatique, et évaluation des gisements de réduction de ces émissions »

Dominique Serça¹, Patricia Laville², Matthias Beekmann³, Catherine Hénault⁴, Benoît Gabrielle², François Ravetta³, Jérôme Cortinovis¹

¹LA Laboratoire d'Aérologie UMR 5560, 14 Avenue Edouard Belin, 31400 Toulouse

²INRA-EGC Environnement et Grandes Cultures, 78850 Thiverval-Grignon

³SA Service d'Aéronomie, Université Pierre et Marie Curie, 4 place Jussieu, 75252 Paris Cedex 05

⁴INRA-LMS UMR Microbiologie des Sols-Géosol, 17 rue de Sully–BV 1540, 21034 Dijon cedex

Résumé

Ce projet porte sur les échanges biosphère-atmosphère des NO_x (NO+ NO₂) en tant que gaz à effet de serre indirect (précurseurs O₃ troposphérique). Il s'appuie sur quatre laboratoires spécialisés à la fois dans les études à l'interface sol-plante-atmosphère, et dans les études de chimie de l'atmosphère. La méthodologie employée repose sur un ensemble de mesures in situ et en laboratoire destinées à améliorer les paramétrisations des émissions existantes, ainsi qu'à définir de nouvelles paramétrisations adaptées aux agro-écosystèmes rencontrés dans notre pays. Les mesures in situ ont permis d'étudier la phénologie des émissions en relation avec les paramètres environnementaux (météorologiques, pédologiques, culturaux) pertinents. Les mesures en laboratoire ont permis d'établir un algorithme des émissions de NO en fonction des trois paramètres principaux que sont la température, l'humidité et la teneur en azote ammoniacal des sols. Cet algorithme adapté et simplifié a été utilisé dans la spatialisation des émissions de NO à l'échelle de la France. Cette spatialisation a été effectuée à l'aide de variables environnementales spatialisées et directement accessibles dans diverses bases de données (ECMWF) ou indirectement à partir d'enquêtes agricoles (quantités d'azote apportées, itinéraires techniques, occupation des sols par type de culture et par région). L'extrapolation spatiale et temporelle des émissions a permis d'aboutir au principal résultat attendu, à savoir l'inventaire des émissions à l'échelle du territoire national pour une année de référence (2002). Cet inventaire a permis de déterminer la contribution des NO_x émis par les sols par rapport aux NO_x totaux, et la proportion de NO_x émis par les sols directement liée à l'utilisation d'engrais. A partir de notre étude portant sur 57% de la SAU en France, et en extrapolant les résultats à l'intégralité des surfaces arables, on trouve que les sols émettraient environ 5% du total des émissions de NOx. Sur ces 5%, seuls 20%, une quantité relativement faible au final, seraient liés à l'épandage d'engrais. L'impact de ces émissions sur la chimie de l'atmosphère a été évalué à l'aide du modèle de chimie-transport –CHIMERE. On a trouvé que les émissions biogéniques de NOx étaient presque partout minoritaires par rapport aux émissions industrielles, d'un facteur 10 en moyenne sur la France. En conséquence, l'impact de ces émissions sur les maxima journaliers d'ozone est relativement limité à l'échelle de l'Europe au mois de juin, mais peut atteindre de 2 à 3 ppb dans certaines régions du centre de la France pour cette même période.

Abstract

This project deals with NOx biosphere-atmosphere exchanges, NOx being considered as an indirect greenhouse gases (tropospheric O₃ precursor). It relies on four laboratory specialized both on the soil-plant-atmosphere interface, and on the atmospheric chemistry. Methodology used bear on a set of in situ and laboratory measurements aiming at improving existing emission parameterization, or building new ones for the agro-ecosystems encountered in France or Europe. In situ measurements allowed to study the emission phenology in relation with relevant environmental parameters (meteorological, soil characteristics, and agricultural). Laboratory measurements allowed to establish an emission algorithm related to the three main parameters, that is, soil temperature, water and ammonia content. This algorithm has been adapted and simplified to spatialize the emissions at the France level. This spatialization was performed using environmental parameters accessible through data base (ECMWF) or agricultural statistics (such as nitrogen inputs, land use, crops...). Spatial and temporal extrapolation allowed reaching the main objective, that is, to build a national inventory for a reference year (2002). This inventory allowed determining the contribution of NOx emitted by soil as compared to total emitted NOx, and the proportion of NOx emitted by soil due to fertilizer use. Our study, based on 57% of the French used agricultural area, and extrapolated

to the whole arable surface, shows that soils would be responsible of about 5% of the total NOx emissions. On these 5%, 20%, which finally is a rather low percentage, would be linked to fertilizer use. The impact of these emissions on the atmospheric chemistry has been evaluated using the CHIMERE chemistry-transport model. We found that NOx emissions from soil would be of minor importance when compared to the industrial emissions, being a factor of ten lower in France. As a matter of consequence, the impact of the emissions on the maximum ozone concentration during summer months is relatively limited over Europe, but can reach 2 to 3 ppb for some of the rural French regions.

- LA Laboratoire d'Aérologie UMR 5560, 14 Avenue Edouard Belin, 31400 Toulouse

- INRA-EGC Environnement et Grandes Cultures, 78850 Thiverval-Grignon

- SA Service d'Aéronomie, Université Pierre et Marie Curie, 4 place Jussieu, 75252 Paris Cedex 05

- INRA-LMS UMR Microbiologie des Sols-Géosol, 17 rue de Sully–BV 1540, 21034 Dijon cedex

Ce rapport clôt le projet en synthétisant d'une part les résultats présentés dans le rapport intermédiaire du 15 avril 2004 (I), et d'autre part en présentant en détail le travail réalisé sur la spatialisation des émissions à l'échelle de la France (II), et sur l'impact de ces émissions sur la chimie de l'atmosphère (III). En conclusion, nous présenterons un bilan des travaux réalisés, et mettrons en perspectives les éléments restants à développer pour atteindre l'ensemble des objectifs originellement prévus.

On rappelle que le projet portait sur l'établissement d'un inventaire national des émissions de NO par les sols. La méthodologie utilisée pour construire cet inventaire reposait sur l'utilisation de mesures in situ et en laboratoire, sur la compilation et la synthèse de données statistiques agricoles, et sur la modélisation des émissions. Une première utilisation de cet inventaire a porté sur l'étude de l'impact des émissions de NO sur les concentrations en NOx et en O_3 à l'échelle de la France et de l'Europe.

I. Synthèse des résultats précédents

L'établissement de l'inventaire des émissions de NO et son utilisation dans la chimie de l'atmosphère s'est déroulé en cinq étapes : (i) les mesures et développements méthodologiques expérimentaux, (ii) les mesures en laboratoire et l'algorithme d'émission, (iii) la modélisation des émissions et des échanges, (iv) la spatialisation, (v) la modélisation physico-chimique de l'impact des émissions sur la chimie atmosphérique. Tous les thèmes ont été abordés dans le rapport intermédiaire, sauf la spatialisation. Nous allons synthétiser ici les résultats présentés dans le rapport intermédiaire, présenter de façon extensive la méthodologie adoptée pour la spatialisation, et détailler l'influence de cette nouvelle spatialisation sur l'impact des émissions sur la chimie de l'atmosphère

1. Mesures in situ

Les mesures au champ ont été réalisées avec deux prototypes différents qui ont été intercomparés, les chambres dynamiques automatiques et les tunnels ventilés. Les chambres dynamiques automatiques ont été spécifiquement développées dans le cadre du projet GICC. Six mois de développement ont été nécessaires à un ingénieur de recherche du Laboratoire d'Aérologie pour développer ce prototype entièrement nouveau, très différent dans sa conception des chambres dynamiques manuelles utilisées jusqu'à présent. Une comparaison a été menée entre les chambres automatiques et les chambres manuelles qui a montré une très bonne comparaison entre les deux méthodes, ce qui était attendu, il est vrai, sachant qu'elles sont basées toutes les deux sur le même principe de la résolution de l'équation du bilan de masse dans une enceinte dynamique.

Les tunnels ventilés ont quant à eux été adaptés à partir de matériel utilisé précédemment pour la mesure de flux de NH₃. L'adaptation, qui s'est déroulée sur le premier trimestre du projet (INRA Grignon), a porté sur l'étude de la reproductibilité des mesures et de l'impact de la couverture translucide des tunnels sur une éventuelle transformation photochimique du NO dans l'enceinte. La comparaison avec la méthode des chambres manuelles précédemment utilisées s'est avérée tout à fait satisfaisante, bien que les tunnels aient une légère tendance à sous-estimer les flux. Cette différence a été attribuée aux perturbations de la turbulence locale, plus importantes dans les tunnels, et à des précipitations moins bien intégrées sous les tunnels qui restent en place pendant toute la durée de l'expérience. Il est à noter aussi qu'en raison du caractère automatique des tunnels, les émissions sont mesurées sur une base de cycle

journalier (24h) et peuvent donc intégrer des valeurs nocturnes des flux, plus faibles, qui ne sont bien évidemment pas acquises lors de mesures manuelles.

L'ensemble des deux prototypes mis en oeuvre a permis d'établir une base de données qui est une première en France. Cette base permet en effet de suivre pour deux types de cultures (maïs et blé), l'évolution des émissions de NO sur des **cycles agriculturaux complets**, et d'en faire le bilan. Les précédentes campagnes de mesure étaient en général basées sur quelques mesures ponctuelles, uniquement centrées sur les périodes d'épandage d'engrais et qui ne donnaient accès ni à la variation saisonnière, ni au bilan des émissions cumulées à l'échelle du cycle cultural.

L'analyse des données a permis de mieux comprendre les mécanismes mis en jeu dans les émissions de NO, et de suivre l'évolution **in situ** de ces émissions en relation avec les paramètres environnementaux (météorologiques, phénologiques, pédologiques) pertinents.

Il est parfois difficile de pouvoir conclure quant aux processus mis en jeu à partir de la seule analyse des données in situ, tant les différents paramètres, température, humidité et azote du sol sont variables dans le temps et l'espace. Cela a motivé l'utilisation de mesures en laboratoire et d'un modèle de culture (CERES) pour modéliser les émissions à une plus grande échelle spatiale et temporelle.

Toutefois, de grandes lignes se dégagent quand même à partir de la seule analyse de données de terrain :

Les émissions sont maximales lorsque les trois conditions suivantes sont réunies :

- Apport d'engrais préalable
- Température moyenne journalière supérieure à 10°C
- Humidité (pondérale) des sols supérieure à 9%, et précipitation ($\leq 10~\text{mm}$) préalable

Soit des émissions maximales observées :

- En avril-mai pour le blé
- En mai pour le maïs

Ces émissions restent à des niveaux supérieurs à celles du niveau de fond pendant des périodes comprises entre trois et quatre semaines après la conjonction apport d'engrais-précipitation.

- Effet humidité sol-précipitation. Les émissions de NO les plus fortes sont toujours consécutives à un apport d'engrais et à des précipitations. L'absence de précipitations après un apport d'engrais se traduit par une absence de stimulation des émissions car l'engrais n'est pas dissout (aspect physique du processus), et l'azote n'est pas disponible pour les microorganismes (aspect biologique). Les observations ont montré qu'il fallait des précipitations supérieures ou égales à 10 mm pour déclencher les émissions liées aux apports d'engrais.

- Les émissions ne sont pas nulles en dehors des conditions précitées, et en particulier pendant l'hiver. On observe des émissions de fond, comprises entre 1 et 3 gN.ha⁻¹.j⁻¹, vraisemblablement liées à la minéralisation de fond de l'azote organique endogène. Ces émissions, si elles n'ont que peu d'influence sur les niveaux atmosphériques de NO_x à un instant donné, ont un impact prépondérant sur le bilan des émissions cumulées à l'échelle du cycle cultural.

- Les émissions (en moyenne journalière) sont corrélées avec le température de surface du sol, et ceci avec des coefficients de corrélation r^2 compris entre 0,6 et 0,8 pour des

paramétrisations exponentielles du type $Flux_{NO} = A \exp(B \times T)$. Les coefficients B, proches de 0,7, sont comparables aux valeurs de la littérature. Le même type de relation exponentielle, avec des coefficients B comparables, mais des coefficients de corrélation légèrement inférieurs ($r^2 \approx 0.5$), a pu être déterminé pour les données individuelles d'émissions au pas quart d'heure. La relation a pu être établie dans la gamme de 10 à 30 °C, le coefficient B correspondant à une valeur de Q₁₀ égale à 2,1, soit approximativement un doublement des émissions pour une augmentation de la température de 10°C.

- Effet température seuil. Pour des températures moyennes journalières inférieures à 10°C, les émissions sont plus faibles, et ont tendance à ne pas suivre l'évolution de la température, que ce soit à l'échelle du quart d'heure ou de la journée. Les émissions que l'on observe alors correspondent aux émissions hors apport d'engrais (hiver, automne), c'est-à-dire aux émissions de fond. Les émissions sont alors vraisemblablement principalement corrélées à la quantité d'azote organique susceptible d'être minéralisée.

- Effet apport d'engrais. Les émissions les plus fortes suivent toujours l'apport d'engrais, avec un délai plus ou moins grand suivant l'occurrence de précipitations. Comme il est précisé précédemment, l'intensité de ces émissions est modulée par les précipitations et la température du sol. Le développement phénologique des cultures a aussi une influence sur les émissions (cf. ci-après).

- Effet pratiques agricoles-culture. On a pu observer que les émissions sont plus fortes, d'un facteur 6, sur maïs que sur blé. Une partie de cette différence (20%) s'explique par un effet de la température. En effet, les émissions de maïs survenant plus tard dans l'année que celles du blé, elles sont observées pendant des journées plus chaudes (cf. loi exponentielle ci-dessus). Une autre partie de la différence s'explique par des apports d'engrais traditionnellement plus conséquents et non-fractionnés, sur le maïs (140 kg) que sur le blé (2° apport = 80 kg). Le reste de la différence entre les émissions reste largement expliqué par la différence dans le développement phénologique des plantes lors que l'apport d'engrais. En effet, l'engrais est apporté sur un sol nu dans le cas du maïs, ce qui fait que l'engrais est entièrement disponible pour les micro-organismes du sol dans ce cas-là, contrairement au blé pour lequel les plantes sont à un stade de développement tel qu'elles ont un besoin en azote important lors de l'apport.

Les mesures réalisées sur plusieurs mois consécutifs ont permis d'évaluer les quantités cumulées de NO émises par les sols à l'échelle du cycle cultural. Ces pourcentages de pertes sont compris entre 1% (blé) et 2,6% (maïs) des quantités d'azote apportées sous forme d'engrais. Ces pourcentages sont conformes aux valeurs publiées dans la littérature, en particulier pour des sites nord-américains. La prise en compte de la minéralisation de fond de l'azote organique a pu être réalisée à partir des données d'émission obtenues hors apport d'engrais. On a pu montrer ainsi que sur le **blé**, plus de 55% des émissions des émissions n'étaient pas liées aux pratiques culturales, les pertes liées aux engrais représentant donc **0.45%** en masse de ces apports. Pour le **maïs**, les pertes résiduelles sont minimes ($\approx 11\%$), 89% des 2,6%, soit 0,89*2,6 = **2,3%** des émissions étant directement liés aux apports d'engrais.

2. Mesures en laboratoire et algorithme d'émission

On ne reviendra pas ici sur la méthodologie utilisée pour étudier en laboratoire les prélèvements de sols qui ont accompagné chacun des sites étudiés. Ces mesures ont permis d'obtenir pour chacun des deux sites du projet GICC (ainsi que pour d'autres sols étudiés par ailleurs, projets AGRIGES et ESCOMPTE) un ensemble de paramètres permettant de relier **l'activité de nitrification** avec la production de NO. La relation entre ces deux grandeurs n'est pas linéaire, mais du type:

$$NO = a.\exp\left[-0.5\left(\frac{\ln\left(\frac{Ni}{x_0}\right)}{b}\right)^2\right]$$

où N_i est la vitesse de nitrification exprimée en mgN kg⁻¹sol j⁻¹ et *NO* le flux (production = émission) correspondant en mgN-NO kg⁻¹sol j⁻¹. La vitesse de nitrification est elle-même contrôlée par l'humidité du sol, la température et le stock d'ammonium (Robertson, 1989). Elle s'exprime de la manière suivante :

$$N_i = N_w \cdot N_T \cdot N_{NH4}$$

où N_w , N_T et N_{NH4} sont des fonctions liant vitesse de nitrification Ni (en kgN ha⁻¹ j⁻¹) et respectivement, les effets de l'humidité, de la température et du stock d'ammonium. Ces fonctions s'expriment comme suit :

$$N_w = c.Wc + d$$

$$N_T = \exp\left[\frac{(T - 20).\ln(2,1)}{10}\right]$$

$$N_{NH4} = \frac{[NH_4^+]}{km + [NH_4^+]}$$

- N_w est une fonction **linéaire** de l'humidité pondérale Wc (en g eau g⁻¹ sol sec), sur le domaine 9 à 27%. Elle s'exprime en mkgN.ha⁻¹.j⁻¹, et les coefficients c et d sont déterminés à partir de l'expérience en laboratoire;

- N_T est une fonction sans dimension définie de façon à être normalisée pour T=20°C, *T* étant la température de surface du sol en °C;

- N_{NH4} est une fonction sans dimension de type **Michaelis-Menten**, $[NH_4^+]$ étant la concentration en ammonium dans le sol, et s'exprimant en mgN kg⁻¹sol. La constante à demisaturation *km* peut prendre des valeurs comprises entre 1 et 50 mgN kg⁻¹sol.

Les émissions de NO d'un sol sont donc directement liées, par l'intermédiaire des 5 paramètres a, b, c, d et x_0 , à ses propriétés de nitrification, fonction elle-même des conditions de température, d'humidité, et du stock d'azote ammoniacal du sol. Ces paramètres ont ensuite pu être intégrés dans le modèle de culture CERES pour simuler les émissions à l'échelle du cycle cultural (cf. détails ci-après dans 'modélisation des émissions').

3. Modélisation des émissions et des échanges

a. Les échanges de NOx avec l'atmosphère

Un des aspects importants dans l'estimation de l'impact des émissions de NO sur la chimie de l'atmosphère repose sur la distinction entre le flux net (au-dessus du couvert), et le flux brut (au niveau du sol). L'incertitude liée à la prise en compte du phénomène de capture du NO-NO₂ par le couvert représente 50% de l'estimation des émissions totales de NO par les sols. Le NO est un gaz très réactif qui est susceptible de réagir avec l'ozone à des pas de temps inférieur à la minute. Le NO peut ainsi être transformé en NO₂ sous le couvert. Le NO₂ étant un gaz qui a une vitesse de dépôt beaucoup plus importante que le NO, il aura tendance à être capturé par les surfaces végétales du couvert. Pour être complet, il faut mentionner que le NO₂ peut redonner du NO par photodissociation, mais que cette voie est réduite sous le couvert en raison de l'atténuation du rayonnement.

Pour pouvoir prendre en compte cet « effet couvert », nous avons développé et adapté un nouveau module d'échanges sol-végétation-atmosphère ou SVAT, le modèle SURFATM. Ces développements ont eu lieu dans le cadre du programme BioPollAtm (programme destiné à étudier l'impact de la biosphère sur la pollution, et de la pollution sur la biosphère, soutenu par les comités PNCA, Primequal, ACI quantitative, et coordonné par Pierre Cellier, INRA-EGC), et ne seront donc pas détaillés ici. Un des principaux résultats à commenter, et l'obtention du coefficient de réduction du couvert, ou CRF. Ce coefficient représente la part du flux de NO qui est transmises au-dessus du couvert, c'est-à-dire la part du flux qui n'est pas déposé sous forme de NO2 dans le couvert. Le CRF est inversement proportionnel au LAI: pour les valeurs de LAI les plus fortes, c'est-à-dire pour une surface d'interception du NO₂ augmentée, et une diminution du taux de photolyse sous le couvert, la part de NO transmise diminue, c'est-à-dire qu'une plus grande partie de NO est déposée sous forme de NO2. Cette modélisation au niveau du couvert est extrêmement importante, car on voit que l'impact des pratiques agricoles sur les niveaux d'émissions de NO sera très variable en fonction certes du niveau de l'émission au sol, mais aussi du LAI de la culture ou de l'écosystème pris en compte. On voit qu'il y a ici un lien à faire entre les modèles de culture sol tel que CERES et les SVAT, et donc les modèles de chimie-transport (CTM). Les modèles de culture permettent en effet de renseigner au mieux les CTM et leur SVAT associés sur les caractéristiques d'évolution de la végétation (LAI, mais aussi hauteur, biomasse...) et donc sur les caractéristiques associées des sols (température, azote minéral...). Ces couplages entre modèles sont en cours de développement dans le projet BioPollAtm.

b. Modélisation des émissions

La modélisation des émissions a été réalisée avec CERES qui est un modèle mécaniste simulant la croissance et le développement d'un peuplement donné en fonction de données micro-météorologiques et pédologiques, et de données intrinsèques à la plante. Le développement du peuplement considéré dépend des paramètres météorologiques classiques, température et rayonnement, et de la disponibilité en azote, phosphore, potassium et eau du sol. Dans CERES, le sol est considéré comme un réservoir composé d'un empilement de couches horizontales, la gestion de l'eau se faisant suivant trois paramètres principaux : le point de flétrissement, la capacité au champ et le point de saturation. De façon schématique, les sources d'azote sont: les engrais, la minéralisation de la matière organique, les remontées capillaires, alors que les puits sont : les émissions gazeuses (issus de la nitrification et de la dénitrification), l'absorption par les plantes, l'infiltration et le drainage. Le modèle CERES fonctionne avec un pas de temps journalier et à l'échelle de la parcelle. Il est représentatif d'un « couvert moyen » (hétérogénéités non prises en compte, pas de relation de concurrence entre plantes). Les principales sorties sont: l'état de la plante (indice foliaire, biomasse par type d'organe, azote), l'état du sol (température, humidité, azote minéral), et les échanges avec

l'atmosphère (CO₂, NH₃, NO). L'ensemble de ces variables permettent l'initialisation des données végétation et sol.

Une version CERES-NO a été créée en incluant dans le modèle l'algorithme développé à partir des études en laboratoire. L'utilisation du modèle CERES-NO a permis de reproduire les émissions de NO sur toute la durée du cycle cultural de chacune des cultures considérées (maïs et blé).

Des simulations de référence ont été menées sur Grignon et Auradé qui ont montré que le modèle, une fois certains paramètres clés calés (humidité volumique, azote minéral-NH4 et NO₃ du sol, LAI), permet de reproduire correctement l'évolution des émissions de NO sur le cycle cultural complet. Ces simulations de référence ont permis d'étudier la sensibilité du modèle à différents paramètres susceptibles d'avoir une influence sur les émissions. Un premier test a montré que les émissions de NO étaient avant tout conditionnées par le stock d'azote minéral dans le sol, l'humidité, puis la température étant des paramètres de deuxième ordre. L'effet du bilan hydrique a été étudié en faisant varier arbitrairement le point de flétrissement et la capacité au champ. Quelle que soit la culture considérée, une augmentation de ces deux paramètres se traduit par une augmentation des émissions. De même, l'effet de la texture des sols a été étudié. On montre que les flux sont moindres, là aussi quelle que soit la culture considérée, sur les sols sableux par comparaison avec les sols argilo-limoneux ou argileux. Cela tiendrait à l'effet filtrant des sols sableux dans lesquels l'humidité et les nutriments sont en moindre quantité. Une étude de la représentation des émissions en fonction des 5 paramètres microbiens $(a, b, c, d, \text{ et } x_0)$ a montré que le seul paramètre a peut servir à définir les émissions au sein d'une même classe pédologique (hypothèse validée sur les sols de type bruns).

Le modèle CERES-NO a ensuite servi à déterminer les facteurs d'émission (EF). On a transposé au NO la définition adoptée par l'IPCC pour le N₂O, à savoir: **le facteur d'émission représente le pourcentage d'engrais directement émis dans l'atmosphère sous forme de NO**. La détermination des facteurs d'émission s'est fait en faisant varier les quantités d'engrais apportées et en gardant les caractéristiques des sols et des cultures inchangées. Le modèle calcule les émissions obtenues avec les données climatiques utilisées pour chaque site, et cumule les émissions sur le cycle cultural. Ces pertes cumulées suivent à peu près de façon linéaire les apports d'engrais, de sorte que la régression linéaire 'émissions cumulées-apports d'engrais' permet de déterminer directement le facteur d'émission (pente de la droite) et la minéralisation de fond (ordonnée à l'origine, c'est-à-dire émission sans apport d'engrais). Le modèle a été utilisé pour évaluer l'impact des paramètres de climats, cultures, texture sols, activités microbiologiques sur la détermination des EF. Une étude statistique, basée sur la répartition marginale de l'ensemble des EF calculés, a montré que l'activité microbiologique était le paramètre de premier ordre pour expliquer la variabilité de ces facteurs, les 3 autres paramètres, s'échelonnant dans l'ordre culture, texture et climat, étant de deuxième plan.

II. Spatialisation des émissions

1. Rappels

La partie présentée ci-après s'appuie sur l'utilisation de l'algorithme d'émission de NO développé à partir des mesures en laboratoire. Cet algorithme a permis de spatialiser les flux de NO à partir de variables environnementales spatialisées et directement accessibles dans diverses bases de données (ECMWF) ou indirectement à partir d'enquêtes agricoles (quantités d'azote apportées, itinéraires techniques, occupation des sols par type de culture et par région). Cette spatialisation a été uniquement menée sur les sols arables (voir plus loin).

On rappelle qu'il existait un inventaire des émissions à l'échelle de l'Europe, et englobant donc la France. Cet inventaire, établi par Stohl et al., (1996), reposait sur une unique dépendance exponentielle ($Q_{10} \approx 2,1$) des émissions de NO avec la température:

 $R = A \exp(0,071 \times T)$

avec R facteur d'émission (ngN m⁻² s⁻¹), A facteur d'émission (ngN m⁻² s⁻¹) associé au type de biome considéré, et T la température du sol (°C). La température du sol est estimée comme une fonction linéaire de la température atmosphérique au-dessus du sol en fonction de type de végétation ($T_{sol} = 1,03 \times T_{air} + 2,9$ pour les cultures). Notons que, pendant la journée, la température ainsi calculée correspond à une température à la surface du sol (et non dans les premiers centimètres du sol), ce qui peut conduire à une certaine surestimation des émissions. Le coefficient A est une constante, excepté pour les sols arables pour lesquels il s'exprime comme un pourcentage (1.6%) de la quantité moyenne d'engrais azoté apportée. Stohl et al., (1996) utilisent les statistiques de la FAO dans lesquelles, en moyenne, 119 kg ha⁻¹ sont apportés chaque année en France. Ils considèrent que l'apport d'engrais est réparti uniformément sur les 90 jours correspondant aux mois de mai à juillet, soit 1,52 10³ ngN m⁻² s⁻¹ ou encore 1,32 10³ gN ha⁻¹ apporté chaque jour. En dehors des périodes d'apport, le coefficient A est constant (0,5 ngN m⁻² s⁻¹), comme dans les autres biomes.

Deux principales critiques peuvent être faites concernant l'inventaire de Stohl et al. (1996): celui-ci ne prend pas en compte l'humidité des sols, dont on sait quelle est primordiale si on veut correctement décrire les processus microbiens tels que la nitrification. D'autre part, on sait que la répartition continue des apports d'engrais sur la période de mai à juillet ne reflète pas la réalité rencontrée dans notre pays. Pour l'ensemble des cultures, les apports d'engrais sont essentiellement réalisés entre février (cultures d'hiver) et mai (cultures de printemps).

Pour apporter des améliorations sur ces deux points, nous avons d'une part utilisé l'algorithme d'émission qui prend en compte l'effet de l'humidité sur les flux de NO et d'autres part, nous nous sommes basés sur une étude des itinéraires culturaux moyens pratiqués par région et par type de culture, intégrant notamment les chronologies d'apports d'engrais.

2. Adaptation algorithme d'émission.

L'algorithme a déjà été présenté en détail (§ I.2. et rapport intermédiaire), aussi le travail d'adaptation pourra être trouvé en détail en annexe. Une partie de ce travail fait l'objet d'une publication soumise (Laville et al, 2005). Les émissions sont exprimées en fonction de paramètre AF qui représente la quantité d'azote ammoniacal apportée par hectare, une donnée qui est disponible dans les statistiques agricoles. On a donc:

$$NO = 0.091.AF.(0.8166Wc - 6.6868).\exp\left(\frac{Ln(2.1).T}{10}\right)$$
où NO est le flux d'oxyde nitrique exprimé en gN ha⁻¹ j⁻¹

On voit donc que l'inventaire permet de calculer un flux de NO dès que la température, l'humidité pondérale et la quantité d'azote ammoniacal sont connues. Les deux premiers paramètres peuvent être relativement simplement obtenus à partir de données climatiques ou de sorties de modèles meso-échelle ou CTM. La connaissance de l'azote ammoniacal du sol est en revanche moins évidente à obtenir, l'essentiel des développements des deux paragraphes suivants (§ II.3. et § II.4. extrapolations spatiale et temporelle de l'ammonium du sol) portant sur cette détermination.

L'utilisation de l'algorithme d'émission a permis aussi d'étudier le poids relatif des trois fonctions d'humidité, de température et de contenu en azote ammoniacal du sol sur la variabilité des flux de NO. On a déterminé que 69% de la variabilité des émissions pouvait être expliquée à partir de l'azote ammoniacal du sol. Cela montre l'importance de la constante *km*, et plaide pour une détermination de ce coefficient en laboratoire en conditions contrôlées pour corroborer la valeur déterminée in situ. De plus, cette détermination devrait être effectuée pour un large éventail des concentrations de NH₄, y compris proches de celles observées in situ. La deuxième fonction par ordre d'importance est celle de la température, qui explique entre 14% (maïs) et 20% (blé) de la variabilité des flux. La plus forte influence de la température dans le cas du blé peut s'expliquer par la plus grande gamme de température rencontrée pour ce type de culture d'hiver. La fonction 'humidité du sol" est celle qui a le moins de poids sur les émissions. Cela semble logique sachant que l'humidité pondérale des sols est restée comprise entre 9 à 27%, une gamme dans laquelle la nitrification reste relativement optimale.

Donc, pour conclure, des axes de travail seront à poursuivre afin d'améliorer la représentativité et l'exhaustivité des mesures en laboratoire:

- Affiner la détermination de la constante de **demi-saturation**.
- Refaire des simulations en laboratoire avec des conditions plus proches de celles observées in situ, en particulier pour les concentrations **en ammonium**.
- Prendre en compte les émissions liées à la **dénitrification**.

3. Extrapolation spatiale de l'ammonium du sol (sur culture arable)

Cette étude a été réalisée par Anne-Laure Palluis dans le cadre de son stage de DESS (2004). Elle repose sur la réalisation d'un inventaire comprenant des informations à l'échelle régionale sur les surfaces agricoles utiles (SAU), sur les surfaces par type de culture, ainsi que sur les itinéraires moyens pratiqués. En particulier, des informations sur les quantités et la chronologie des apports d'engrais azotés par type de culture ont été recueillies. Ces informations ont été obtenues grâce aux enquêtes réalisées en 2000 par AGRESTE (SCEES) dans le cadre du Recensement Général Agricole (RGA). Pour ce qui concerne les informations sur les quantités et les dates d'apport d'engrais par culture et par région, elles ont fait l'objet d'une enquête directe d'Anne-Laure Palluis auprès d'au moins 3 chambres d'agricultures départementales par région administrative (voir en annexe les tableaux 1 et 2 pour Ile-de-France et Midi-Pyrénées).

Dans cette étude, seules les cultures comportant la mention '**Terre Arables Sélectionnées**-*TAS*' ont été prises en compte dans l'extrapolation spatiale des flux de NO. On peut en effet considérer que pour les autres terres arables (prairies permanentes et pâturées, cultures maraîchères, légumineuses, cultures permanentes..), l'algorithme utilisé pour le calcul de flux de NO, et évalué sur des grandes cultures (maïs, blé), n'est pas applicable. Dans le cas des légumineuses par exemple, les apports en azote se font via la fixation symbiotique, et sont donc entièrement décorrélés d'éventuels apports d'engrais minéraux. Dans le cas des prairies pâturées, une partie importante de l'azote peut provenir des déjections animales non prises en compte dans notre inventaire. La simple prise en compte de ces apports organiques ne suffirait pas. En effet, si les quantités de fumier ou de lisier apportées sur les surfaces agricoles sont généralement bien renseignées, les taux d'azote de ces apports le sont beaucoup moins. Dans ces deux cas, les quantités d'azote présentes dans le sol sont donc difficilement chiffrables et comparables à celles résultant des apports sous forme minérale. La figure 1 représente le pourcentage de SAU par région lié aux terres arables sélectionnées (*TAS*). A l'échelle de la France elles représentent 57% (160171,47 km²) de la SAU totale (277725,65 km²). Les terres arables non sélectionnées (*Tans*) représentent quant à elles 5306,49 km² (1,9%), les terres arables sans apport d'azote (*TAsN*) 17788,70 km² (6,4%), les cultures permanentes (*Cp*) 11298,26 km² (4,1%), et les prairies (*P*) 83160,71km² (30%). La figure 1 indique que pour certaines régions dites de grandes cultures, telles que l'IIe-de-France, le Centre, la Picardie, et la Champagne-Ardenne, les *TAS* sont largement représentatives (> 60%) de l'ensemble de la SAU. En revanche, ce n'est pas le cas du Limousin ou de l'Auvergne qui sont essentiellement des régions d'élevage, ou des régions PACA et Languedoc-Roussillon qui sont des régions de vignes, vergers et maraîchages. Pour ces régions, ainsi que pour la Corse, notre inventaire ne sera que peu représentatif, puisqu'il portera sur moins de 20% de la SAU.



Figure 1 : SAU totale et 'terres arables sélectionnées' (TAS) par région

En faisant, dans chacun des régions, et uniquement pour les *TAS*, le produit des apports moyens d'azote par culture par celui des SAU de chacune de ces cultures, nous avons pu quantifier l'azote total apporté à l'échelle des régions. La figure 2 montre la comparaison des valeurs obtenues par ce calcul, avec les livraisons d'engrais minéraux données par l'UNIFA (Union des industries de la fertilisation- statistique 2001). Pour l'ensemble des régions, on obtient en moyenne une bonne concordance entre les deux types de données même si, logiquement, le calcul effectué à partir des *TAS* uniquement tend à sous-estimer légèrement, en moyenne, les quantités d'azote apportées. Les différences entre les deux sources peuvent s'expliquer aussi par le fait que les livraisons d'engrais à l'échelle d'une région ne correspondent pas toujours à une utilisation dans la région. Il peut exister en effet, suivant les circuits de distribution, des transferts d'engrais d'une région à l'autre.



Figure 2: comparaison entre les livraisons d'engrais (source UNIFA) et les quantités calculées à partir des informations AGRESTE et des enquêtes régionales sur les quantités d'engrais apportées par type de culture (*TAS* uniquement).

D'après les résultats de l'enquête, à l'échelle de la France et pour les cultures du type *TAS*, la quantité moyenne et pondérée par type de culture apportée par hectare est de l'ordre de **122** kgN ha⁻¹. Cette valeur est de l'ordre 97 kgN ha⁻¹ pour les cultures du type *TAnS*, de 61 kgN ha⁻¹ pour les cultures permanentes (*CP*), et de 49 kgN ha⁻¹ pour les prairies. Pour l'ensemble des cultures *TAS*+*TAnS*+*TsN*+*Cp*, l'apport moyen par hectare, pondéré par catégorie, est de l'ordre de **114 kgN ha⁻¹**. Cette valeur est très proche de l'estimation réalisée par la FAO (1994), et qui donne 119 kgN ha⁻¹ pour la France (cf. inventaire Stohl et al, 1996).

A titre indicatif, on considère que **2,4 millions de tonnes d'engrais minéraux** sont utilisés en France (rapport d'Agreste n°123, 2003). Les apports minéraux constituent la première source d'amendement azoté, mais les sources d'azote organique ne sont pas négligeables puisqu'elles constituent environ un tiers de la production d'azote totaux, soit environ 1,4 million de tonnes d'azote (estimées à partir des divers cheptels français). Les formes d'engrais minéraux utilisées peuvent être très variées (engrais simples ou composés). Sachant que le calcul des flux de NO repose exclusivement sur la forme ammoniacale de l'azote minéral, il est indispensable de convertir toutes les formes d'engrais en azote ammoniacal. Pour cela, nous nous sommes servis des statistiques de l'UNIFA pour estimer le rapport N-NH₄/N-total résultant de chaque forme d'azote minéral apportée. La figure 3 donne une information sur ce rapport région par région.



Figure 3: rapports entre les quantités d'azote ammoniacal et les quantités d'azote minéral totales, (Source UNIFA, 2001).

En moyenne sur l'ensemble de la France on peut considérer que **65**% de l'azote minéral utilisé est sous forme ammoniacale.

4. Extrapolation temporelle de l'ammonium du sol.

Une amélioration quantitative et qualitative importante par rapport à l'algorithme de Stohl et al. (1996), pour lequel l'azote lié aux apports d'engrais (azote exogène) est réparti uniformément sur 3 mois, consiste à prendre en compte les ITK (itinéraires techniques agricoles) pour effectuer cette répartition.

On rappelle que 65% de l'azote minéral employé est sous forme ammoniacale. Si on prend par exemple le cas de l'avoine de l'Ile-de-France (voir tableau 1, colonnes MoyB N/A et Moy B) on va considérer que $0,65 \times 35 = 22,75$ kgN-NH₄ ha⁻¹ sont apportés uniformément pendant la période 9-29 février (21 jours) et que $0,65 \times 65 = 42,25$ kgN-NH₄ ha⁻¹ sont apportés également uniformément pendant la période du 11-31mars (21 jours). Pendant ces deux périodes de 21 jours, on va ajouter chaque jour les quantités 22,75/21 et 42,25/21 kgN-NH₄ ha⁻¹ j⁻¹. Mais on va également considérer qu'au jour *J*+*1*, il faut ajouter 90 % de l'ammonium apporté au jour *J*, les 10% restant ayant été nitrifiés et émis sous forme de NO. A la fin des périodes d'apport, l'azote ammoniacal présent dans le sol décroît simplement de 10% par jour. Les 2 fonctions obtenues pour les deux apports, et additionnées entre elles doivent être normalisées de façon à obtenir une aire sous la courbe résultante égale à la quantité d'azote ammoniacal apportée, soit dans ce cas: $(35+65) \times 0,65 = 65$ kgN-NH₄ ha⁻¹.

Ainsi, par exemple pour le premier apport d'engrais sur l'avoine de l'Ile-de-France (cf. figure 4), on a la répartition suivante, avec J quantité d'azote en kgN-NH₄ ha⁻¹ pour le jour *J*: Du 1/01 au 28/02 J = 0 Du 01/01 au 09/02J = 0Du 9 au 29/02=>1.'J+1' = 0,9 'J' + 22,75/21Du 1/03 au 31/12=>2.'J+1' = 0,9 'J'

De façon identique pour le second apport: Du 1/01 au 10/03 J=0 Du 11/03 au 31/03 => 3. 'J+1' = 0,9 'J' + 42,25/21 Du 1/03 au 31/12 => 4. 'J+1' = 0,9 'J'



Figure 4 : Répartition temporelle de l'azote ammoniacal, cas de l'avoine en Ile-de-France; 1: premier apport; 2: fin effet premier apport; 3 : second apport ; 4: fin effet second apport.

La fonction ainsi obtenue décrit l'évolution de la valeur moyenne journalière de la quantité d'azote ammoniacal présent par hectare d'avoine en Ile-de-France, et provenant des apports d'engrais minéraux. On procède de façon identique pour l'ensemble des cultures considéré (*TAS*). Les fonctions élémentaires ainsi obtenues pour chacune des cultures sélectionnées sont ensuite pondérées par leurs surfaces respectives dans chacune des régions, puis sommées au sein de ces mêmes régions. On obtient donc l'évolution journalière de la quantité totale d'azote ammoniacal exogène présent sur l'ensemble de la SAU d'une région. La figure 5a donne à titre d'exemple l'évolution de ces quantités pour les régions Ile-de-France et Midi-Pyrénées.



Figures 5a et 5b : a) répartition temporelle de l'azote sur l'ensemble de la SAU (*TAS*) pour l'Ile-de-France et Midi-Pyrénées. b) valeur moyenne à l'échelle de l'hectare pour les 2 régions.

La figure 5b correspond aux mêmes fonctions que celles décrites dans la figure 5a, mais les quantités sont alors divisées par les surfaces *TAS* respectives des deux régions, et il s'agit donc de kgN-NH₄ ha⁻¹. A l'évolution des quantités décrites dans la figure 5a, nous avons également rajouté une concentration de base moyenne sur l'ensemble de l'année de 0,9 kgN-NH₄ ha⁻¹ (et ceci, pour l'ensemble des régions françaises). Cette valeur correspond à l'azote provenant de la minéralisation de l'azote organique du sol (azote endogène) ou minéralisation de fond.

Les figures 5a et 5b montrent clairement que suivant les itinéraires techniques pratiqués, et suivant le type de cultures présentes, l'évolution temporelle de l'azote est différente d'une région à l'autre. On voit clairement par exemple la prépondérance des cultures d'hiver (blé et assimilés) en Ile-de-France, et de celles d'été (tournesol, maïs) en Midi-Pyrénées, avec un pic d'azote ammoniacal présent en avril dans cette région.

Les figures suivantes (6 et 7) montrent l'évolution temporelle de l'azote ammoniacal total (exogène + endogène) pour l'ensemble des régions françaises prises individuellement (figure 6), ou en moyenne (figure 7). On observe clairement sur les deux figures que l'azote est apporté entre début février et début juin. A l'échelle de la France, on obtient un apport moyen de l'ordre de 122 kgN ha⁻¹ (aire sous la courbe moyenne, figure 7) pour les cultures sélectionnées. On peut donc, à partir des données de la figure 6, avoir accès aux concentrations en azote ammoniacal du sol pour chacune des régions, et ce à un pas de temps journalier. C'est le croisement de ces données, avec des données de température et d'humidité du sol qui permet, avec l'aide de l'algorithme d'émission, de calculer les émissions de NO à l'échelle de la région (cf. § II.5).



Figure 6: Evolution temporelle de l'azote ammoniacal total pour chacune des 22 régions françaises



Figure 7: Evolution temporelle **moyenne** de l'azote ammoniacal total à l'échelle de la France. Les barres d'erreur correspondent à l'écart type obtenu en faisant la moyenne sur les 22 régions. Nb: on a reporté la fonction créneau représentant la répartition de l'azote suivant Stohl et al, (1996).

5. Emissions de NO à l'échelle du territoire français.

A partir des données météorologiques (T et humidité sol) fournies par le Centre Européen de Prévision Météorologique à Moyen Terme (ECMWF), des données d'azote ammoniacal spatialisées à l'échelle régionale (cf. § II.3 et II.4), et de l'algorithme d'émission précédemment défini (§ II.2), nous avons établi à cette même l'échelle les émissions de NO pour l'**année 2002**.

Les figures 8a et 8b représentent les données horaires ECMWF de température de sol (horizon 0-15 cm) et d'humidité volumique du sol (horizon 0-15 cm, en m³ eau m⁻³ sol) correspondant aux coordonnées géographiques de Grignon (en fait, maille de $0,5^{\circ} \times 0,5^{\circ}$ centrée sur 1,92° E, 48,85° N), et par extrapolation, représentatives de la région Ile-de-France. Sur les deux figures, nous avons fait figurer les émissions de NO (gN ha⁻¹ j⁻¹) associées calculées à partir des données de température et d'humidité des sols et de la fonction de distribution de l'azote ammoniacal (figure 6).



Figures 8a et 8b : Variations horaires des données (température et humidité) du ECMWF pour le site de Grignon, et émissions de NO (gN ha⁻¹ j⁻¹) associées.

On note que les émissions de NO suivent l'évolution saisonnière de la température du sol, avec des flux et des températures maximums pendant l'été. L'évolution avec l'humidité du sol est moins nette à cette échelle de temps, et plutôt observable à l'échelle des événements pluvieux.

A l'échelle de l'année (on notera que les données ECMWF n'étaient pas disponibles pour la période du 1/1 au 10/2), on observe un flux moyen de l'ordre de 3,16 gN ha⁻¹ j⁻¹, soit 1,16 gN ha⁻¹ an⁻¹. Cette émission correspond à 1,0% de l'azote ammoniacal apporté (115 kgN-NH₄ ha⁻¹) sur les parcelles d'Ile de France.

Le même travail a été réalisé sur le site expérimental d'Auradé. Les figures 9a et 9b représentent les données horaires ECMWF de température de sol (horizon 0-15 cm) et d'humidité volumique du sol (horizon 0-15 cm, en m³ eau m⁻³ sol) correspondant aux coordonnées géographiques d'Auradé (en fait maille de $0,5^{\circ}*0,5^{\circ}$, centrée sur $1,06^{\circ}E$; 43,57°N), et par extrapolation, représentatives de la région Midi-Pyrénées. Sur les deux figures, nous avons fait figurer les émissions de NO (gN ha⁻¹ j⁻¹) associées.



Figures 9a et 9b : Variations horaires des données (température et humidité) du ECMWF pour le site d'Auradé, et émissions de NO (gN ha⁻¹ j⁻¹) associées.

Sur l'ensemble de l'année on observe des pertes à peu près équivalentes à celles obtenues sur l'Ile-de-France (3,10 gN ha⁻¹ j⁻¹ soit 1,13 kgN ha⁻¹ an⁻¹). Néanmoins en valeur relative, sachant que les intrants azotés par hectare sont en moyenne plus faibles en région Midi Pyrénées (59 kgN-NH₄ ha⁻¹), les pertes d'azote sous forme de NO représentent 1,9% de l'azote NH₄ apporté, et sont donc proches de celles observées en Ile-de-France.

La figure 10 compare les flux moyens obtenus sur les deux sites en tenant compte à la fois de la météorologie, de l'occupation des sols, et des itinéraires techniques propres à chaque site.



Figure 10: comparaison entre flux estimés pour Grignon et Auradé.

Les flux estimés sur Grignon sont plus importants durant la période de février à début avril, ceci étant lié au fait que les principales cultures sur l'Ile-de-France, et donc de la maille centrée sur Grignon, sont des cultures du type hivernal (blé tendre, orge..) qui reçoivent leur apport d'engrais en fin d'hiver. En revanche on a vu qu'en région Midi-Pyrénées, les cultures majoritaires sont celles de printemps (maïs, tournesol..), pour lesquelles les apports d'engrais se font plutôt pendant la deuxième quinzaine d'avril. C'est pendant cette période que l'on trouve les plus fortes émissions de NO. Les flux plus importants observés à Grignon fin juillet-début août s'expliquent par une humidité du sol relativement plus favorable aux émissions (plus élevée) à Grignon qu'à Auradé à cette période-là.

Flux cumulés sur la France- année 2002

En prenant une humidité pondérale moyenne de 20% et la température moyenne de Grignon observée en 2002 (année des mesures de flux de NO sur Grignon), nous avons estimé à l'échelle de la France les flux de NO correspondant aux terres arables sélectionnées (*TAS*) (cf. tableau 3).

Région	Surface TAS (ha)	N-NH4 (kg an ⁻¹)	N-NO(t an⁻¹)	N-NO(t an^{-1})	N-NO/N-NH4(%)	N-NO/N-NH4 (%)	
			total	lié aux engrais	total	lié aux engrais	
ALSACE	212035	102	208	50	0,96	0,23	
AQUITAINE	767774	92	736	165	1,04	0,23	
AUVERGNE	527360	56	454	62	1,53	0,21	
BOURGOGNE	932899	94	861	167	0,98	0,19	
BRETAGNE	1362963	53	1157	144	1,60	0,20	
CENTRE	1819860	100	1713	401	0,94	0,22	
CHAMPAGNE-ARDENN	1053704	103	992	209	0,92	0,19	
CORSE	8821	49	7	1	1,73	0,22	
FRANCHE-COMITE	281665	70	248	39	1,25	0,19	
ILE-DE-FRANCE	468416	115	453	105	0,84	0,20	
LANGUEDOC-ROUSSIL	198935	75	178	30	1,19	0,20	
LIMOUSIN	322501	45	270	30	1,85	0,21	
LORRAINE	634608	75	565	94	1,19	0,20	
MDI-PYRENEES	1416119	59	1230	177	1,46	0,21	
NORD-PAS-DE-CALAIS	500674	98	460	88	0,99	0,19	
BASSE-NORMANDIE	561119	65	488	71	1,33	0,19	
HAUTE-NORMANDIE	466938	98	433	86	0,95	0,19	
PAYSDELALOIRE	1474579	54	1253	158	1,58	0,20	
PICARDIE	948389	106	906	201	0,90	0,20	
POITOU-CHARENTES	1321158	77	1202	221	1,18	0,22	
PROVENCE-ALPES-CO	150281	77	149	38	1,29	0,33	
RHONE-ALPES	586349	69	565	129	1,39	0,32	
Total	16017147		14530	2667			
Moyenne		79			1,23	0,22	

Tableau 3: Régions administratives, surfaces terres arables sélectionnées *TAS* (ha), quantité moyenne d'ammonium apportée par région (kgN ha⁻¹), quantité totale (apports d'engrais + minéralisation de fond) d'azote NO produite par région (tonnes an⁻¹), quantité d'azote NO produite par région liée aux apports d'engrais (tonnes an⁻¹), pourcentage de l'azote ammoniacal apporté sous forme d'engrais minéral qui est émis sous forme d'engrais et à la minéralisation de fond), et pourcentage de l'azote ammoniacal apporté sous forme d'engrais minéral qui est émis sous forme d'engrais minéral qui est émis sous forme de NO (émissions seules dues aux apports d'engrais).

Pour une surface totale des TAS de 160171 km², on observe donc une émission annuelle de l'ordre de 15126 tonnes de NO (soit 15,1 GgN ou ktN de NO). Ces chiffres sont à comparer avec les estimations réalisées par le CITEPA. Dans son rapport 2000, le CITEPA considère que le secteur agricole contribue pour environ 14% aux émissions de NO. Cependant pour ce secteur, seules les rubriques autres agricultures et sylviculture avaient été considérées, les secteurs cultures et élevage n'étant pas pris en compte. Or, le poste autres agricultures inclus essentiellement la combustion liée aux activités agricoles (utilisation d'engins agricoles tels que tracteurs, moissonneuses etc..) et les feux ouverts de déchets agricoles, mais pas les émissions par les sols. Les postes autres agricultures et sylviculture contribuent aux émissions à hauteur de 223,6 Kt (équivalent NO₂) et 13,3 kt (équivalent NO₂) respectivement. En comparaison, les émissions par les sols des TAS sont égales à: $15,1 \times (14+16\times 2)/14 = 49,6$ kt équivalent NO₂ pour la surface considérée, à savoir 57% de la SAU totale de la France. En première approximation, et en considérant que les émissions sur les terres arables non sélectionnées dans le cadre de cette étude émettent de façon analogue à celles sélectionnées, on obtiendrait pour l'ensemble des terres arables françaises une valeur de l'ordre de 87.0 kt équivalent NO₂. Ce chiffre est comparable, en ordre de grandeur, à celui des émissions de N₂O répertoriées par le CITEPA pour la même année, et chiffrées à 166,1 kt N₂O (à noter que les masses molaires de N₂O et du NO₂-rapport 44/46- étant équivalentes, la comparaison se fait directement sans conversion). Cette estimation est réconfortante dans la mesure où le N_2O tous les deux issus de processus microbiens comparables et NO étant (nitrification/dénitrification), il est logique que les productions de composés azotés gazeux (NO et N₂O) soient d'un ordre de grandeur équivalent. Le facteur d'émission déterminé par l'IPCC pour le N₂O est de 1,25%, c'est-à-dire que 1,25% de l'azote apporté est réémis sous forme de N₂O. Dans le cas de notre étude on obtient une émission moyenne de NO représentant 0,80% de l'azote total apporté sous forme d'engrais minéral. Si on tient compte du fait que seule la fraction ammoniacal de l'azote minéral a été considérée dans le processus de production de NO (65% des apports totaux), on trouve qu'en moyenne pour toutes les régions françaises (moyenne avant-dernière colonne tableau 3), 0,80/0,65 = 1,23 % de l'azote NH₄ apporté est émis sous forme de NO.

La comparaison avec les données du CITEPA pour l'année 1998 et pour le territoire français montre que la contribution des sols représente **11%** des émissions liées au **secteur des transports routiers**, première source de NO_x avec 794,5 kt NO₂, et **5,3 % des émissions totales** (transformation énergie, industrie manufacturière, résidentiel-tertiaire, agriculture-sylviculture, transport routier, autres transports) de NO_x estimées à 1654 kt NO₂.

Une rapide évaluation de la proportion des émissions de NO par les sols liées aux apports d'engrais peut-être faite à partir de la valeur de l'émission totale calculée. Lorsque l'on retire les émissions liées à la minéralisation de fond, on constate qu'une grande partie des émissions disparaissent. En effet, en moyenne sur toutes les régions, plus de 80% (exactement 81,6% = 2667/14530) des émissions sont liées à cette minéralisation de fond (cf tableau 3). Celle-ci est inférieure à la minéralisation de l'azote exogène pendant la période d'efficacité maximale de cette dernière, à savoir une période de trois mois centrée sur avril. En revanche, la minéralisation de fond est active pendant les 12 mois de l'année, même si elle est vraisemblablement modulée, contrairement à ce que l'on a simulé, et fini donc par représenter en moyenne plus de 80% des émissions. Selon les régions, les itinéraires techniques et le type de cultures majoritaire, ce pourcentage varie entre 75 et près de 90%.

6. Conclusion :

Cette étude de spatialisation nous a donc permis de réaliser un inventaire des émissions de NO par les sols à l'échelle de la France. Ces travaux sont toutefois préliminaires car ils reposent sur une généralisation à l'échelle de la France des facteurs d'émissions biologiques du NO déterminés sur le site expérimental de Grignon. Plusieurs étapes de développement sont indispensables pour achever le développement de cet inventaire. Un certain nombre d'hypothèses utilisées pour la généralisation devront être testées afin de quantifier l'incertitude sur les résultats produits, ce que l'on ne peut pas encore faire à l'heure actuelle. Certaines hypothèses nous ont en effet peut-être mené à sous-estimer les émissions (des facteurs d'émissions peuvent être plus fort que ceux de Grignon, des sources d'azote n'ont pas été prises en compte, telles que les sources organiques et des processus n'ont pas été pris en compte, comme la dénitrification), alors que d'autres nous ont peut-être conduit à surestimer les émissions (facteurs plus faibles sur certains sols par rapport à Grignon, période de saturation en eau des sols...).

On peut mentionner un certain nombre de sources potentielles d'incertitude dans l'inventaire établi ci-dessus, et par là même, d'améliorations possibles:

- Une première source d'erreur repose sur la détermination des facteurs d'émissions en laboratoire (coefficients liant NO et Ni, et Ni avec N_T, Nw, et N_{NH4}), et la transposition de ces coefficients depuis le laboratoire vers le champ. Un certain nombre de précautions seraient à prendre afin d'aboutir à une méthode en laboratoire 'standardisée', c'est-à-dire applicable aux différents types de sol que l'on peut rencontrer en France. Une première étude exhaustive sur l'ensemble des différents types de sol permettrait d'appréhender la variabilité des émissions de NO sur l'ensemble des sols français, et d'estimer l'erreur commise en extrapolant la valeur de Grignon à l'ensemble des sols français. A noter tout de même que plusieurs sols (6, reposant sur 5 types différents) ont été étudiés en laboratoire avec la même méthodologie, et que le sol de Grignon présentait une intensité d'émission moyenne par rapport à cet échantillon de sols, laissant penser que la généralisation ne s'est pas traduite par l'introduction d'une forte source d'erreur. L'autre amélioration au niveau des émissions en laboratoire porte sur l'étude des émissions dans une gamme plus large des paramètres de température et d'humidité pondérale. On rappelle en effet que le modèle d'émission est pour l'instant défini pour des températures inférieures à 35°C, et pour des humidités inférieures à 27%. Il serait donc souhaitable d'étendre les fonctions Nw et N_T qui décrivent l'évolution des vitesses de nitrification pour des humidités ou des températures supérieures aux limites précédentes. A noter que cette extension ne peut pas se faire simplement de façon linéaire. Dans leur étude, Yienger et Levy (1995), définissent les flux comme une fonction exponentielle la température lorsque $T \le 35^{\circ}C$, les flux s'exprimant au-delà de cette limite indépendamment de cette variable.

De la même façon, les quantités de substrat azoté utilisé dans les incubations en laboratoire pourraient être prises dans des gammes proches de celles observées in situ. De plus, dans le modèle qui est proposé, les émissions de NO sont simulées à partir de la **nitrification** exclusivement. La part de NO produite par **dénitrification** n'a pas été prise en compte. Ce dernier processus microbien est reconnu comme étant de deuxième ordre dans les conditions moyennes d'humidité des sols rencontrées en France, mais peut devenir prépondérant dans les régimes de sols anoxiques. Ainsi, il est très probable que l'on n'est pas correctement estimé les flux de NO en période hivernale et/ou pour les sols hydromorphes (rizières, estuaires, marais).

- Les flux de NO ont été mesurés et estimés également pour **2 types de cultures** : blé et maïs, la généralisation à d'autres cultures reste incertaine. C'est le cas notamment des légumineuses ou l'azote est fixé symbiotiquement au niveau de la rhizosphère des plantes. A notre connaissance, aucune étude sur les émissions de NO n'a été réalisée pour ce type de culture. C'est également le cas des pairies qui sont recensées en tant que surfaces agricoles utiles, mais qui ont le plus souvent des intrants azotées plus faibles que les grandes cultures, et qui peuvent être réalisés sous forme organique. En effet d'après Agreste Primeur (N°64, 1999), un tiers des surfaces herbeuses reçoivent des engrais azotés sous forme organique. Les fumures organiques sont également utilisées de façon intensive sur les cultures fourragères (maïs), mais cet usage est largement dépendant de la région considérée (vrai uniquement si présence d'élevage intensif). L'écosystème forestier qui recouvre environ un tiers de la surface de la France n'a également pas été traité. Les dépôts secs ou humides d'azote, liés à la proximité de champ fertilisés ou de sources anthropiques d'azote sur ce type de végétation peuvent également entraîner des émissions en oxyde nitrique non négligeables (Jambert et al, 1997).

- Pour estimer les stocks d'azote NH₄ dans les sols, nous avons considéré qu'en moyenne 10% de l'azote NH₄ était nitrifié chaque jour. En fait, cette valeur moyenne est elle-même fonction de l'humidité et de la température du sol. Il serait souhaitable de pouvoir ajuster cette vitesse en fonction de ces deux variables. De même, nous avons considéré qu'en dehors des périodes d'apport d'engrais la concentration moyenne en ammonium du sol résultant de **la minéralisation** de la matière organique était de l'ordre de 0,9 kgN ha⁻¹. Il s'agit en fait d'une valeur moyenne, qui peut varier d'un sol à l'autre, suivant les pratiques agricoles (travail du sol) et le climat (humidité et température).

Bien que cette étude repose sur un nombre important d'hypothèses, elle présente le mérite de paramétrer les émissions de NO par les sols en s'appuyant sur un ensemble détaillé de processus biologiques (nitrification, fonctions de la température, de l'humidité des sols et du substrat ammoniacal) et de données liées à l'agriculture (intrants azotés, SAU, ITK). Elle permet de montrer que le bilan des sources NO liées aux sols agricoles utiles, **de l'ordre de** 5% des émissions totales, est significatif.

n.b.: l'ensemble de ces résultats pourraient figurer dans le site internet GICC.

III. Modélisation physico-chimique- impact des émissions

1. Rappels/Résumé rapport intermédiaire (15/04/04)

Afin d'évaluer l'impact des émissions du NO par les agrosystèmes sur les concentrations d'ozone en Europe, une base de données préliminaire de ces émissions a été construit et introduite dans le modèle CHIMERE. Des simulations avec et sans NO d'origine agricole ont été effectuées avec ce modèle pour le printemps et l'été 1998. Le module d'émission de NO lié à l'agriculture choisi est celui développé par Stohl et al (1996) et donc il a déjà été fait mention (II.1.). Dans ce modèle, 1,6% des engrais appliqués sont réémis vers l'atmosphère sous forme de NO, et les émissions dépendent de la température selon la relation de Williams (1992): R = A exp (0,071 × T), où R est le facteur d'émission(ng N m⁻² s⁻¹), A est une constante, excepté pour les sols arables dans lesquels elle s'exprime comme un pourcentage (1.6%) de la quantité d'engrais azoté (F) apportée en moyenne sur les sols cultivés, et T la température du sol (en °C). Cette température du sol est estimée comme une fonction linéaire de la température atmosphérique au-dessus du sol en fonction du type de végétation (T_{sol} = 1,03 × T_{air} + 2,9 -pour les cultures). Notons que, pendant la journée, la température ainsi calculée correspond à une température à la surface du sol (et non dans les premiers

Pays	1993	2000
Belgique et Luxembourg	226	190
République Tchèque et Slovaque	47	58
Pays de l'ex-URSS	37	14
Allemagne	147	149
Hongrie	26	38
Italie	100	92
Norvège	124	118
Portugal	57	56
Suède	69	61
Royaume-Uni	203	179
Autriche	86	72
Bulgarie	56	48
Danemark	131	105
Pays de l'ex-Yougoslavie	41	80
France	119	106
Grèce	115	107
Irlande	365	290
Hollande	425	331
Pologne	48	64
Roumanie	28	14
Espagne	50	66
Suisse	157	91

centimètres du sol), ce qui peut conduire à une certaine surestimation des émissions. Les quantités d'engrais apportées sont connues pour chacun des pays d'Europe (cf. tableau 4), les données FAO de 1993 ayant été utilisées pour cette simulation.

Tableau 4 : Quantités d'engrais azotés (en kgN ha⁻¹an⁻¹) par pays de l'Europe; années 1993 et 2000, données FAO.

Dans ce premier cadastre, les émissions de NO agricoles ont été considérées comme actives, avec des valeurs de A constantes pendant toute la période de simulation (d'avril à août), ce qui représente certainement une simplification importante, car les épandages d'engrais se concentrent plutôt sur la période printanière.

Les différences entre les deux simulations (avec et sans NO agricoles) ont été analysées pour plus que 70 stations sol de mesure d'ozone couvrant le domaine de simulation. Les données montrent un fort gradient nord-ouest - sud-est des maxima journaliers d'ozone (moyennés sur la période de simulation), avec moins de 45 ppb en Royaume Uni et plus de 65 ppb en Italie de Nord et dans les bouches du Rhône. Les résultats montrent un effet assez contrasté des émissions agricoles de NO sur les maxima d'ozone. Les augmentations les plus fortes, d'environ 2 ppb, sont observées dans la partie sud du domaine de simulation, c'est-à-dire en Allemagne de Sud, dans la majeure partie de la France et en Italie de Nord. Des valeurs plus élevées au sud s'expliquent surtout par une activité photochimique plus intense due au rayonnement solaire plus fort. Symétriquement, les valeurs plus faibles dans la partie nord du domaine (Royaume Uni, Nord de la France, Nord de l'Allemagne) s'expliquent, à quantité d'apports d'engrais comparable, voire supérieure au nord, par une intensité moindre de la production photochimiques d'ozone. Les valeurs négatives observées en Angleterre, c'est-à-

dire les diminutions des maxima d'ozone dues à la prise en compte des émissions agricoles de NO correspondent à un effet similaire déjà observé pour les émissions industrielles de NO dans cette région. Cela montre le caractère « COV-limité » de la chimie de cette région : la production d'ozone y est tributaire des niveaux de concentrations de COV et non de NOx. On peut rappeler tout de même qu'il faut être prudent sur les interprétations. En effet, ces valeurs représentent plutôt une limite supérieure des phénomènes reproduits, ceci en raison du choix d'une valeur élevée pour le facteur A.

La comparaison avec les mesures montre une erreur quadratique (*rms* ou root mean square, c'est-à-dire écart type de la différence modèle-mesure) pour l'ozone de surface autour de 10 ppb, sans structure spatiale distincte. Il est potentiellement plus intéressant d'analyser l'amélioration potentielle du *rms* suite au rajout du module d'émissions agriculturales. Il en ressort que ces émissions n'affectent que peu l'erreur du modèle, avec des modifications du rms en général en dessous de \pm 1ppb. On ne peut donc pas constater une amélioration des performances du modèle suite au rajout du module d'émissions agriculturales de NO. D'une part, les modifications induites par ces émissions sont faibles par rapport aux autres sources d'erreur. D'autre part, le cadastre est probablement encore trop rudimentaire pour bien prendre en compte la variabilité d'un jour à l'autre de ces émissions, même s'il est représente bien celles-ci en moyenne.

2. Objectifs de la nouvelle étude

Cette étude reprend l'objectif d'évaluer l'impact des émissions de NO par les sols sur les concentrations des oxydes d'azote et de l'ozone en Europe. Pour cela, des simulations pour le printemps et l'été (février à septembre) 2003 ont été effectuées avec la chaîne de modélisation MM5-CHIMERE. Cette fois-ci, deux modèles d'émissions biogéniques de NO ont été implantés dans CHIMERE, celui de Stohl et al., (1996), et celui précédemment présenté, ou modèle « GICC ». On a vu qu'il repose sur une statistique détaillée de l'évolution saisonnière de l'azote ammoniacal du sol, et qu'il prend en compte également l'humidité du sol.

	Stohl et al. (1996)	GICC			
Fraction de l'engrais Azoté émis sous forme de NO pour T_{sol} = 20°C et humidité pondérale = 20 %	1.6 %	0.3 % 1			
Dépendance avec température	exp (0,071 x T)	exp (0,074 x T)			
	T: température surface	T:température sol (0-15cm)			
Dépendance avec humidité pondérale	néant	linéaire entre 9 et 27%			
Quantité d'engrais	FAO pour 1993	FAO pour 2000			

On rappelle ci-dessous (cf. tableau 5) les principales caractéristiques des deux modèles d'émission.

¹ à la valeur faible de 0.1%, se rajoute la contribution due à la minéralisation de fond, non directement dépendante des entrées de fertilisants, 4 fois plus élevée en moyenne sur l'année.

Tableau 5 : Comparaison récapitulative des deux modèles d'émissions

A noter que le pourcentage de fertilisant azoté réémis sous forme d'oxyde d'azote choisi par Stohl et al. (1996), 1,6%, figure parmi les plus élevés de la littérature. Les simulations utilisant ce modèle d'émission fournit donc des résultats proche de la limite supérieure de l'effet possible des émissions agriculturales sur les concentrations d'ozone en Europe.

Les articles Schmidt et al. (2001), Vautard et al. (2001), et le site internet <u>http://euler.lmd.polytechnique.fr/chimere</u>) fournissent une documentation très complète du modèle CHIMERE. Par conséquent, nous nous contentons ici de rappeler les principales caractéristiques et modifications introduites dans cette étude.

- *Domaine de Modélisation* : le domaine pris en compte est compris entre -10 et 22° de longitude et 35° et $56,5^{\circ}$ N de latitude. La résolution en longitude et latitude est de $0,5^{\circ}$. La basse troposphère est décrite par 8 couches verticales, entre la surface et le niveau de pression 500 hPa (soit environ entre 0 et 5,5 km).

- *Advection* : l'advection des espèces lentes est calculée en utilisant la méthode PPM (pour ``Piecewise Parabolic Method"), plus précise qu'un simple schéma d'ordre un, utilisé pour les espèces très réactives. L'utilisation conjointe de ces deux méthodes permet l'évaluation rapide et précise du terme d'advection horizontale. Pour l'advection verticale, un schéma d'ordre un est utilisé pour toutes les espèces.

- *Entrainement vertical et mélange turbulent vertical : l*e terme de transport vertical est calculé pour équilibrer le bilan de conservation de la masse. Le mélange selon la verticale, sous l'effet de la turbulence, est estimé en calculant un coefficient de diffusion turbulente K(z) en fonction des flux de chaleurs et de quantité de mouvement. La hauteur de couche limite est calculée à partir du profil du nombre de Richardson.

- *Dépôt sec : l*e terme de dépôt sec est pris en compte dans la couche de surface du modèle, pour une quarantaine d'espèces. La vitesse de dépôt sec est paramétrée en utilisant l'approche des résistances.

- *Chimie* : le mécanisme chimique utilisé est MELCHIOR (Lattuati, 1997), développé à partir du mécanisme EMEP et qui décrit de manière réaliste la photochimie des photoxydants dans la troposphère, dans des conditions rurales ou polluées. Seule la chimie en phase gazeuse est prise en compte. En fait, le mécanisme original comprend environ 300 réactions entre 80 espèces. Une version réduite en a été dérivée, comprenant environ 45 espèces gazeuses et 120 réactions (Derognat, 2002), et a été utilisée dans cette étude pour les simulations longues. - *Emissions* : CHIMERE-continental prend en compte des émissions anthropiques pour les espèces suivantes : NO, NO₂, CO, SO₂ et les COVs modèles suivants: CH₄, C₂H₆, nC₄H₁₀, C₂H₄, C₃H₆, OXYL, HCHO, CH₃CHO, CH₃COE a partir des données EMEP pour 2000. A noter que les émissions liées aux véhicules agriculturales sont prises en compte dans ce cadastre. En ce qui concerne les émissions biogéniques de COV, l'alpha-pinène et l'isoprène ont été considérés.

- *Données météorologiques* : contrairement aux simulations présentées dans le rapport intermédiaire, les données météorologiques nécessaires pour faire les simulations sur CHIMERE sont issues de simulations avec le modèle à méso échelle MM5 et non plus du Centre Européen de Prévision Météorologique à Moyen Terme. Ce parti pris vient du fait que pour le nouveau modèle d'émissions de NO du sol, il faut des données fiables de température et d'humidité dans le sol. Le modèle MM5 (http://www.mmm.ucar.edu/mm5) a été mis en œuvre sur un domaine couvrant l'Europe et englobant le domaine de simulation de CHIMERE, avec une résolution horizontale de 36 km. Le modèle est contraint aux limites par les données météorologique assure l'interpolation des sorties de MM5 sur la grille de

CHIMERE et le calcul de données dérivées nécessaires pour les simulations. Les données suivantes sont utilisées comme entrées de CHIMERE : en 3D : vent (3 composantes), température, humidité, eau liquide. En 2D : précipitation, couverture nuageuse basse, moyenne et haute, atténuation du rayonnement, flux de chaleur sensible, flux de chaleur latente, flux de moment, hauteur de la couche limite, température à 2m, température et humidité dans le sol (couche 0 à 15 cm de profondeur).

- *Concentrations aux limites du domaine*: elles sont fixées pour chaque point de grille au bord du domaine de modélisation en utilisant des valeurs climatologiques (moyennes mensuelles) disponibles pour chaque mois (sorties du modèle global de chimie-transport MOZART (Hauglustaine et al., 1998). Les espèces suivantes sont advectées de l'extérieur du domaine : O₃, NO₂, CO, PAN, méthane, éthène , éthane, propène, butane, acétaldéhyde, formaldéhyde, acide nitrique et peroxyde d'hydrogène.

- *Résolution Numérique* : le schéma numérique utilisé s'inspire du schéma TWOSTEP (Verwer and Simpson, 1991) et utilise un pas de temps de 300 secondes.

*Extrapolation sur l'Europe : d*ans le cadre des simulations pour l'Europe, nous avons simplifiées ces données, en utilisant un profil moyen de $[NH_4]$ pour toute la France. Pour les autres pays Européens, nous avons adopté la même évolution saisonnière de $[NH_4]$ que pour la France, mais nous avons ajustées les valeurs absolues par les taux moyen d'épandage d'engrais azoté par surface arable du pays en 2000. Cette concentration de fond a été appliquée également aux autres pays Européens.

Surfaces: les types de végétations et d'utilisation des sols sont donnés par la base de données d'utilisation des sols du GLCF (University of Maryland) d'une résolution horizontale de 1 km. Les contributions dues à d'autres surfaces que les terres arables (prairies, forêts, etc...) ont été reprises à partir du modèle de Stohl et al. (1996).

3. Résultats

3.1. Distributions spatiale et temporelle des émissions biogéniques du NO

Dans ce chapitre, nous présentons la distribution spatiale et temporelle des émissions biogéniques du NO, obtenue avec les deux modèles. La figure 11a montre la distribution spatiale de l'utilisation des engrais azotés pondérée par la fraction de surface arable sur la surface totale. Cette carte montre des valeurs élevées (comprises entre 50 et 100 kgN ha⁻¹ an⁻¹ ¹) pour la France, l'Allemagne et la plaine du Pô, et des valeurs maximales (>150 kgN ha⁻¹ an⁻¹ ¹) pour le Benelux. Ces taux de fertilisation peuvent être interprétés comme des potentiels d'émission qui sont ensuite modulés par la température et l'humidité du sol. C'est pour cela que les émissions biogéniques de NO obtenues au mois de juin avec le modèle GICC (figure 11d), relativement élevées dans les zones France-Benelux-Allemagne-Italie de Nord, suivent une distribution spatiale légèrement différente de celles des fertilisations. Les maxima d'émissions sont localisés dans le centre de la France et dans la plaine du Pô, correspondant aux températures et humidités les plus favorables (figures 11b et c), en particulier si l'on compare avec l'Allemagne et le Benelux. Les émissions biogéniques sont également relativement fortes dans une partie des Balkans, de l'Espagne et du Maghreb, en relation avec des température de sol élevées, et donc des taux élevés de la nitrification de fond de l'ammonium des sols.

A titre de comparaison, la figure 11e montre la carte des émissions biogéniques de NO obtenues avec le modèle de Stohl et al. (1996). Les valeurs sont globalement plus élevées que pour le modèle GICC, principalement du fait que le maximum d'épandage d'engrais est supposé dans la période de mai à août dans le modèle de Stohl et al. (1996). Pour ce modèle, les émissions biogéniques suivent étroitement les taux de fertilisations de la figure 11a, car un

éventuel effet limitant de l'humidité du sol et la production d'ammonium par minéralisation étant négligés, seul l'effet de la température peuvent introduire une distorsion spatiale.

Les émissions industrielles des NOx (figure 11f) sont, en moyenne européenne, respectivement plus élevées d'un facteur 20 et 4 que les émissions biogéniques obtenues avec le modèle GICC et de Stohl et al. (1996), toujours pour le mois de juin (figure 12d). Les différences les moins fortes (facteur 2 à 3 pour le modèle GICC) apparaissent dans les parties agriculturales du Centre de la France, dans les Balkans, et dans le Maghreb, où les émissions des NO_x proviennent presque essentiellement des sols.

Fertilizer use kgN/ha in 2000 times arable land fraction





56

54





c)

Biogenic NO emis. [1.E+10 mol.cm-2s-1] 2003/06 STOHL









0.90

Biogenic NO emis. [1.E+10 mol.cm-2s-1] 2003/06 GICC





Industrial NOx emis. [1.E+10 mol.cm-2s-1] 2003/06 GICC





e)

Figures 11 : a : Répartition de l'utilisation des engrais azotés (année 2000) ; b : température du sol ; c : humidité du sol ; d : émissions de NO par le sol (modèle GICC), juin 2003 ; e : émissions de NO par le sol (modèle Stohl), juin 2003 ; f : émissions NO anthropiques, juin 2003.



Figures 12 : a : évolution temporelle moyenne des concentrations de NH_4 dans le sol (France) ; b : évolution temporelle moyenne de la température des sols (France) ; c : évolution temporelle moyenne de l'humidité des sols (France) ; d : évolution temporelle des émissions de NO du sol (modèles Stohl et GICC) et NOx anthropiques (France et moyenne européenne).

La figure 12 montre l'évolution saisonnière des concentrations de NH_4 dans le sol, de la température et de l'humidité du sol (toutes données pour la France) et des émissions biogéniques (France et Europe, modèles Stohl et GICC). Si la concentration de NH₄ est maximale en avril (due au maximum d'épandage au printemps), et se rapproche ensuite rapidement de sa valeur de fond, les émissions biogéniques de NO calculées par le modèle GICC montrent un maximum en juin. Ce décalage du maximum est liée à la température qui atteint son plafond plus tard dans l'année, au début de l'été (juin). La décroissance des émissions en juillet et août par rapport à juin est due à la décroissance de l'humidité pondérale, qui descend (en moyenne mensuelle sur la France) en dessous du plafond des valeurs optimales obtenues pour une humidité de 27%. Pour les mois d'octobre à janvier, non simulés ici, nous nous attendons à des émissions biogéniques décroissantes et faibles en raison de l'absence d'épandage d'engrais et des températures de sol de plus en plus froides durant cette période. Le modèle de Stohl et al. (1996) montre un fort maximum d'émissions entre mai et juillet lié à la période prise en compte pour l'épandage d'engrais. Pour la France et pour la totalité du domaine de simulation, le modèle de Stohl par comparaison avec le modèle GICC, montre des émissions plus basses pendant la période février à avril, des émissions d'un facteur 5 plus élevées pendant la période de mai à juillet, et des émissions comparables en août - septembre.

3.2. Effet des émissions biogéniques de NO sur les concentrations des NOx et de l'ozone

La figure 13 montre l'effet des émissions biogéniques de NO sur les concentrations de NO_2 moyennées sur la France et sur tout le domaine de simulation (Europe). Les concentrations de NO_2 sont ici analysées sachant que 80% des NOx se trouvent sous forme de NO_2 dans la couche limite continentale. Pour le modèle GICC, on note des augmentations moyennes de NO_2 assez faibles de 0.2 à 0.4 ppb pour la France et de 0.1 à 0.2 ppb pour l'Europe. La variation saisonnière de cette augmentation est beaucoup moins prononcée que celle des émissions biogéniques, car la durée de vie des NOx est plus élevée en hiver qu'en été. On note les augmentations de NOx les plus prononcées au-dessus de la France, de la plaine du Pô et des Balkans, en accord avec la distribution spatiale des émissions biogéniques (figures 14 et 15 pour avril et juin 2003). Les concentrations absolues en NO_2 sont données pour information en annexe (figure 16).



Figure 13 : a : variation saisonnière des concentrations de NO_2 et de O_3 additionnelles dues aux émissions de NO par les sols, comparaisons modèles Stohl et GICC (moyenne sur la France) ; b: idem pour l'Europe.



c)

E358Ê 0Ê 2Ê 4Ê 6Ê 8Ê 10Ê 12Ê 14Ê 16Ê 18Ê 20Ê 22Ê

d)

8Ê 0Ê 2Ê 4Ê 6Ê 8Ê 10Ê 12Ê 14Ê 16Ê 18Ê 20Ê 22Ê

Figures 14 : a: concentrations supplémentaires NO_2 (moyenne journalière) dues aux émissions de NO par le sol, simulations avec modèle GICC pour avril 2003; b: idem avec modèle Stohl; c: concentrations supplémentaires O_3 (maximum journalier) dues aux émissions de NO par le sol, simulations avec modèle GICC pour avril 2003; d: idem avec modèle Stohl.



Figures 15 : a, b, c et d: idem précédemment pour juin 2003

Avec le modèle de Stohl, les augmentations de NO_2 sont les plus élevées pour la période de mai à juillet. En dehors de cette période, les augmentations calculées avec les deux modèles sont similaires, voire plus faibles pour le modèle de Stohl que pour le modèle GICC. Les augmentations des concentrations doivent se traduire par une production photochimique renforcée, et se manifester dans des maxima journaliers d'ozone plus élevés. Ce comportement se vérifie surtout pour la période juin à août pendant laquelle une molécule de NO₂ (ou NO) supplémentaire crée environ trois à quatre molécules d'ozone supplémentaires (figure 13). Pendant cette période, les émissions biogéniques de NO (modèle GICC) engendrent donc une augmentation des maxima d'ozone de 0,7 ppb en moyenne sur l'Europe. Régionalement, cette augmentation peut atteindre 2 à 3 ppb, notamment dans le Centre et le Sud-Ouest de la France ou encore en Slovénie et Hongrie (figure 15, pour le mois de juin, quand l'effet sur l'ozone est maximal). Ces augmentations sont certes faibles, en accord avec la fraction relativement faible des émissions biogéniques par rapport aux émissions industrielles (environ 5%), mais néanmoins significatives. Le champ de concentration absolue en ozone est donné pour information en annexe (figure 17). Un effet plus significatif encore aurait pu être obtenu pour la période de canicule où les températures au sol sont plus élevées, et les conditions atmosphériques plus propices à la pollution photo-oxydante. Avec le modèle de Stohl, on obtient des augmentations plus élevées des maxima d'ozone, dépassant 7 ppb pour le centre de la France. En dehors de la période allant de juin à août, l'augmentation des maxima d'ozone est beaucoup plus faible, les émissions de NO par les sols peuvent même engendrer une baisse des maxima d'ozone en février-mars par effet de titration (condition COV-limitée). Les simulations avec le modèle de Stohl pour l'été 2003 présentées ici, et utilisant les données météorologiques issues de MM5, correspondent très bien à celles présentées dans le rapport intermédiaire et utilisant les données du CEP. Dans ce rapport, nous avions conclu à une bonne reproductibilité des résultats pour les trois étés simulés, à savoir 2001, 2002 et 2003.

4. Limitations

Le modèle d'émission a été ajusté à partir de mesures sur cultures céréalières qui couvrent la majorité de la surface agricole utile, notamment en France. Comme il a déjà été a fait mention, ce modèle est plus incertain pour d'autres cultures (arbres fruitiers, forêt, prairies, légumineuses). Les itinéraires techniques et donc les dates d'épandage des engrais ont été extrapolés de la France aux autres pays Européens, mais sont confirmés, au moins pour l'Allemagne, par des études spécifiques (Butterbach et Werner, communication personnelle). Pour les régions d'élevage intensif (Normandie, Bretagne), les émissions biogéniques de NO liées aux épandages d'engrais organiques ne sont pas pris en compte, et devront être évaluées dans un projet spécifique.

5. Conclusions

En conclusion, nous avons implanté dans CHIMERE, en plus du modèle d'émissions biogéniques "standard" de Stohl et al. (1996), celui plus détaillé élaboré dans le cadre de ce projet GICC. Les modèles diffèrent principalement par une restitution saisonnière moins marquée pour le modèle GICC par rapport au modèle de Stohl. Cette moindre variation est due à la superposition de trois facteurs indépendants lissant l'effet de la fertilisation dans le modèle GICC: les périodes d'épandage d'engrais se répartissent entre février et mai, les températures au sol sont maximales entre juin et août et l'humidité du sol est optimale entre février et juin. En revanche, le modèle de Stohl montre une forte variabilité saisonnière, avec des valeurs très élevées d'émissions biogéniques entre mai et juillet correspondant à la période supposée d'épandage d'engrais. Les statistiques de pratiques agricoles recueillies permettent tout d'abord de vérifier que les dates choisies par Stohl ne correspondent pas à la réalité, en tous cas pour la France et l'Allemagne. De plus, les taux d'émissions calculés par ce modèle pendant cette période sont parmi les plus élevés dans la littérature, et n'ont pas été confirmés par les mesures de flux effectuées in situ dans le cadre de ce projet, pour lesquelles les émissions mesurées sont d'un facteur 4 à 5 fois plus faibles. Avec le nouveau modèle d'émissions GICC, les émissions biogéniques de NOx sont presque partout largement minoritaires par rapport aux émissions industrielles, d'un facteur 20 en moyenne sur l'Europe et d'un facteur 10 sur la France. En conséquence, l'impact de ces émissions sur les maxima journaliers d'ozone est relativement limité, de 0,7 ppb en moyenne pour l'Europe au mois de juin, mais peut atteindre de 2 à 3 ppb dans certaines régions du centre de la France pour cette même période.

IV. Conclusion générale

Ce projet a porté sur l'élaboration d'un inventaire national des émissions de NO par le sol et sur l'étude de l'impact de ces émissions sur la chimie de l'atmosphère.

Pour réaliser cet inventaire, nous nous sommes appuyés sur des mesures in situ et en laboratoire des émissions. On a ainsi crée une base de données pour deux sites (Grignon-Auradé) et deux types de cultures (maïs et blé). Cette base de données comporte les valeurs des émissions de NO en continu sur des cycles culturaux complets, simultanément avec les paramètres du sol (température et humidité, texture, densité apparente, azote minéral), de la végétation (hauteur, LAI, biomasse...) et les itinéraire technique (date de semis, espèce, densité, traitements phytosanitaires et engrais...). Ces mesures ont permis d'étudier la phénologie des émissions. A titre d'exemple, on a ainsi pu déterminer les taux de minéralisation de l'azote, que celle-ci soit endogène (minéralisation de fond) ou exogène (minéralisation liée aux apports d'engrais). Des mesures en laboratoire ont complété les mesures in situ. Elles nous ont permis entre autres de lier les émissions dues à la nitrification avec les paramètres physique du sol (T, humidité) en conditions contrôlées.

Le projet a permis ensuite la mise au point d'une nouvelle méthodologie d'évaluation des émissions de NO par les sols. Cette méthodologie repose sur la base de données citée cidessus, et sur des statistiques agricoles. Elle a permis de répondre à un certain nombre de questions qui se posait à l'origine de ce projet, à savoir :

1. Quelle est la contribution des émissions de NO par les sols par rapport aux émissions totales (à l'échelle de la France) ?

On a pu évaluer que les émissions par les sols représenteraient en première approximation 5% des NO_x totaux. Ce pourcentage est relativement faible en moyenne, peut-être plus faible qu'attendu. Il faut cependant noter que cette moyenne nationale recouvre des situations contrastées d'une région à l'autre. Ainsi, dans les régions de grandes cultures (Centre, Midi-Pyrénées, Poitou-Charentes, Picardie, Bourgogne), ce pourcentage est compris entre 10 et 20%. On voit donc bien que les émissions ne sont pas négligeables pour les régions agricoles peu industrialisées et de cultures intensives. A contrario, ce pourcentage peut-être très faible (entre 0.1 et 2%) pour des régions industrialisées et densément peuplées (Ile-de-France, Rhône-alpes, PACA,) ou cultures permanentes (Corse, Languedoc-Roussillon).

2. Quel est le pourcentage de NO émis par les sols lié à l'utilisation d'engrais ?

On a trouvé en moyenne que 20% des émissions de NOx par les sols seraient lié à l'utilisation d'engrais minéraux. Ce pourcentage varie entre 11 et 25% selon les régions, mais ne suit pas la catégorisation obtenue dans le point précédent. En première analyse, ce pourcentage suit la donnée de quantité d'azote ammoniacal moyenne apportée par hectare, les valeurs les plus fortes étant obtenues dans les régions de plus forts apports (Ile-de-France, Picardie, Champagne-Ardenne, Alsace, Centre).

3. Quels sont les gisements de réduction ?

L'estimation des émissions à l'échelle régionale permet de montrer quelles sont les principales régions émettrices, et ce, en lien avec les pourcentages de SAU liée à un type de culture, et à un itinéraire technique donné. Un premier levier pour réduire les émissions

se situe au niveau des quantités d'azote minéral apporté en moyenne sur une région. Cela rejoint le point précédent, et on peut donc citer les régions d'Ile-de-France, Picardie, Champagne-Ardenne, Alsace, Centre comme étant celles où l'effort le plus important serait à réaliser. Cela reviendrait donc à réduire la part des émissions directement liée à l'utilisation d'engrais. En même temps, une région comme l'Alsace n'est qu'au 19° rang des émissions de NO en valeur absolue, alors que la région Centre est au premier rang. Un effort identique en terme de réduction des intrants à l'hectare aura donc des effets très contrastés pour ces deux régions. Le problème se pose plus ensuite en terme d'évolution des SAU dans les années à venir, et des types de cultures mises en place. On sait par exemple que les cultures comme le tournesol ou les protéagineux sont moins demandeurs en azote minéral. Cela peut constituer un deuxième levier de diminution des émissions à l'échelle régionale et nationale.

4. Quel est l'impact de ces émissions sur la chimie troposphérique ?

L'étude a montré que l'impact des émissions à l'échelle de la France était relativement limité puisqu'il représentait de l'ordre de 0.3 ppb de NO₂ pour une concentration moyenne de fond de l'ordre de 10 ppb, soit 3% en moyenne. L'effet est à peu prés identique pour l'ozone, puisque l'on a une augmentation moyenne de l'ordre du ppb, pour une concentration moyenne de fond autour de 50 ppb. Localement toutefois, l'effet peut atteindre entre 5 et 10% d'augmentation. Dans le cas du NO, ce qui est important du point de vue impact sur la chimie de l'atmosphère, ce n'est pas tant la valeur absolue de cette émission annuelle, mais, compte tenu de son implication dans la production de l'ozone troposphérique, c'est son évolution au cours du temps et dans l'espace. Une mole de NO produite en période estivale n'aura en effet pas le même impact sur la production d'ozone que celle produite en hiver. Ainsi, les émissions liées aux sols, de par leur prépondérance au printemps et en été, auront un plus grand impact sur la production photochimique d'ozone que les émissions de NO liés aux combustions qui sont plus importantes l'hiver. De même, une mole de NO produite en zone péri-urbaine ou rurale n'aura pas le même impact que celle produite en zone urbaine. En effet, on rappelle que l'impact des oxydes d'azote sur la production d'ozone est fonction de leur concentration, mais aussi et surtout, du rapport de leur concentrations avec celles des COV. Pour les zones urbaines, la production d'ozone est limitée par la concentration des hydrocarbures (COV) présent. C'est l'inverse en zone rurale où cette production est limitée la plupart du temps par les niveaux de NOx rencontrés. Comme on le voit, les émissions de NO par les sols auront une influence sur la production d'ozone principalement dans les zones d'émission où elles sont moins minoritaires par rapport aux émissions anthropiques. Dans ce contexte, cet inventaire pourra être un outil d'aide à l'aménagement du territoire. La disposition relative des sources anthropiques, agricoles et des sources forestières émettrices de COVB, pourra être étudiée à l'échelle relativement fine afin d'évaluer les politiques de développements des zones péri-urbaines en terme d'impact sur la production d'ozone.

Un certain nombre de développements sont encore nécessaires pour valider pleinement cet inventaire. Pour cela, il faut :

- Compléter les cultures prises en compte par les prairies permanentes et pâturées, les cultures maraîchères, les légumineuses et les cultures permanentes afin d'améliorer le pourcentage de SAU pris en compte, en particulier pour les régions PACA, Languedoc-Roussillon, Limousin, Auvergne et Corse;

- Considérer les écosystèmes naturels, et en particulier les zones humides (lien vers projet ECCO-CAZHU), et les forêts ;
- Prendre en compte les différents types d'engrais minéraux utilisés (ammoniaqués, dérivées du nitrate, NPK...) et les engrais organiques sous leurs différentes formes (lisier, fumier), et étudier spécifiquement leur effet sur les émissions ;
- Etudier plus en détail l'évolution annuelle de la minéralisation de fond;
- Prendre en compte l'effet du couvert (lien vers le projet BioPollAtm) afin d'estimer les émissions **nettes** depuis le sol vers l'atmosphère.

Une fois validé, l'inventaire plus complet permettra d'engager une deuxième phase de travail axée sur des études prospectives. Ces études doivent se baser sur des scénarios d'évolution des pratiques agricoles (en fonction de l'évolution climatique d'augmentation de la température et de baisse des précipitations), mais aussi en fonction de l'évolution de la Politique Agricole Commune-PAC, des surfaces cultivées (qui peuvent liées à la PAC), ainsi que des émissions anthropiques. Dans un contexte de réduction de ce dernier type d'émission, les émissions agricoles pourraient voir leur proportion augmenter. Les réductions des émissions, avec leur coût afférent, ne peuvent être évaluées qu'à partir de données socio-économiques qui dépassent le cadre du présent projet.

ANNEXES

Rapports, publications, thèses, conférences

- M.-J. Basset. Etude des facteurs environnementaux régulant les émission d'oxyde nitrique produit par les sols : participation à une campagne de mesures des flux dans le cadre du programme Escompte. Maîtrise de Biologie des Populations et des Ecosystèmes, Université du Havre. Septembre 2001.

- J. Cortinovis: "Etude expérimentale et modélisation des émissions d'écosystèmes naturels et aménagés : impact sur la chimie de l'atmosphère", thèse de l'Université Paul Sabatier, Ecole doctorale "Sciences de l'Univers, de l'environnement et de l'espace", Toulouse, soutenue le 10 novembre 2004.

- A. Fotiadi. "Echanges biosphère – atmosphère des oxydes d'azote et de l'isoprène en Région Méditerranéenne (programme Escompte)". Thèse de l'Université Paul Sabatier, Ecole doctorale "Sciences de l'Univers, de l'environnement et de l'espace", Toulouse, soutenue le 22 janvier 2003.

- J. Drevet : "Etudes des émissions d'oxydes d'azote par les sols agricoles en région toulousaine", DEA Océan- Atmosphère – Environnement, Ecole doctorale SDDU Toulouse, 2003.

- A- L. Palluis. Cadastre des émissions d'oxydes d'azote par les sols agricoles. Impacts sur la concentration des NOx et de l'ozone en France. Mémoire de Master Environnement et Développement durable, Université de Perpignan, UMR INRA INAPG Environnement et Grandes Cultures de Grignon, 35 p, 2004.

- P. Laville, C. Hénault, B. Gabrielle, D. Serça. Measurement and modelling of NO fluxes over maize and wheat crops during their growing seasons: effect of crop management, Nutrient Cycling in Agro-ecosystems, sous presse.

- P. Laville, Serça D., Hénault C., Gabrielle B., Beekmann B. Comparison of NO fluxes on maize and wheat crop during their growing seasons: validation of a NO emission model, 12th N Workshop, IGER, Exeter (GBR), 20-24/09/03, (poster), 2003.

- P. Laville, Beekmann, M.; Palluis, M.L.; Gabrielle, B.; Serça, D.; Hénault, C. Soil NO inventory from large scale farming in France: impact on atmospheric NO_2 and O_3 concentrations, European Geosciences Union, Vienne, 24-29/04/05, (Poster), 2005.

Bibliographie des laboratoires participants au projet

- Crassier V., K. Suhre, P. Tulet, and R. Rosset, Development of a reduced chemical scheme for use in mesoscale meteorological models, *Atm. Env.*, 34, 2633-2644, 2000.

- Derognat, C. (2002), Pollution photooxydante à l'échelle urbaine et interaction avec l'échelle régionale, *thèse de doctorat*, Université Paris 6, Avril 2002.

- Garrido F., C. Hénault, H. Gaillard, S. Perez, et J.C. Germon. N_2O and NO emissions by agricultural soils with low hydric potentials. Soil Biology and Biochemistry. 34, 559-575, 2002

- Jambert C., D. Serça, and R. Delmas, Quantification of N-losses as NH3, NO, N₂O and N₂ from fertilized maize fields in Southwestern France, *Nutrient cycling in agro-ecosystems*, 48, 91-104, 1997.

- Serça D., R. Delmas, C. Jambert, and L. Labroue, Emissions of nitrogen oxides from equatorial rain forest in central Africa: origin and regulation of NO emission from soils, *Tellus*, 46B, 243-254, 1994.

- Serça D., R. Delmas, X. Le Roux, D.A.B Parsons, M.C. Scholes, L. Abbadie, R. Lensi, O. Ronce, and L. Labroue, Comparison of nitrogen monoxide emissions from several African tropical ecosystems and influence of season and fire, *Global Biogeochem. Cycles*, 12, 637-651, 1998.

- Serça D., P. Laville, A. Fotiadi, et P. Cellier, Les émissions d'oxyde nitrique (NO_x) à partir d'écosystèmes naturels et d'agrosystèmes, Journée AFES, Sols et Gaz impliqués dans l'Effet de Serre, 30 novembre 2000, Paris

- Serça D., A. Guenther, L. Klinger, L. Vierling, P. Harley, A. Druilhet, J. Greenberg, B. Baker, G. Roberts, C. Bouka-Biona, and J. Loemba-Ndembi, EXPRESSO flux measurements at upland and lowland Congo tropical forest site, *Tellus*, 220-234, 53B, 2001

- Vautard, R., Beekmann, M., Roux, J., and D. Gombert (2001), Validation of a hybrid forecasting system for the ozone concentrations over the Paris area, *Atmos. Environ.* **35**, 2449-2461.

Bibliographie citée

- Hauglustaine, D.A., Brasseur, G.P., Walters, S., Rasch, P.J., Muller, J.-F., Emmons, L.K. and Carroll, M.A., MOZART : A global chemical transport model for ozone and related chemical tracers, 2. Model results and evaluation, *J. Geophys. Res.* 103, 28291-28336, 1998.

- Lattuati, M., Impact des émissions européennes sur le bilan de l'ozone troposphérique à l'interface de l'Europe et de l'Atlantique Nord : apport de la modélisation lagrangienne et des mesures en altitude, thèse de doctorat, Université Paris 6, 1997.

- Stohl A., E. Williams, G. Wotawa, and H. Kromp-Kolb, A European inventory of soil nitric oxide emissions and the effect of these emissions on the photochemical formation of ozone, *Atmos. Environ.* **30**, 3741-3755, 1996.

- William E.J., G.L. Hutchinson, and F.C. Fehsenfeld, NO_x and N_2O emissions from soils, *Global Biogeochem. Cycles*, 6, 351-388, 1992.

- Yienger J.J., and H. Levy, Empirical model of global soil-biogenic NO_x emissions, J. of Geophys. Res., 10, 11447-11464, 1995.

Disponibilité des données

Les données sont en cours d'enregistrement dans une base de données qui recueillera toutes les données d'émission de NO par les sols pour la France (projets GICC, ESCOMPTE, ECCO), pour l'Afrique (projet AMMA), et pour un certain nombre de campagnes de mesures aux USA. Ce travail fait partie d'un projet de recherche mené par Claire Delon (Laboratoire

d'Aérologie) visant à étudier et paramétrer les émissions de NO à l'aide des **Réseaux de Neurones Artificiels**, et intégrer ces paramétrisations dans des modèles physico-chimiques à l'échelle régionale (RegCM3) ou moyenne (Meso-NH).

Remerciements

Nous tenons à remercier M. Frater pour son accueil sur la propriété d'Em Bidon, à Auradé. Nous remercions par ailleurs Robert Vautard (LMD) pour l'utilisation des simulations de MM5 sur la période de février à septembre 2003.

Adaptation algorithme d'émission.

Nous ne reprenons ici que les modifications apportées pour la spatialisation à l'échelle régionale, et basées sur le travail réalisé à partir des données de Grignon. L'algorithme utilisé dans la modélisation des émissions, a été simplifié afin d'être spatialisé. On a considéré ici que la production de NO était une fonction simple de la vitesse de nitrification, avec un coefficient de proportionnalité de 2%, soit:

$$NO = 0.02 \times Ni$$

où NO est le flux d'oxyde nitrique et Ni la vitesse de nitrification (mgN kg⁻¹ sol j⁻¹). Cette formulation est plus simple que celle précédemment utilisées qui comportait trois coefficients (*a*, *b*, *x*₀), dont la détermination et l'extrapolation à l'échelle régionale aurait été difficilement réalisable. Le coefficient de 2% a été déterminé à partir de la régression entre les flux mesurés, et le taux de nitrification calculé à l'aide des trois fonctions N_T , Nw, N_{NH4} déjà mentionnées.

Comme précédemment, la vitesse de nitrification s'exprime à partir du produit de trois fonctions dépendantes de l'humidité, de la température du sol et de la teneur en ammonium:

$$Ni = Nw.N_T.N_{NH4}$$

On rappelle que N_w est exprimée en mgN kg⁻¹ sol j⁻¹ (comme *Ni*), et que les fonctions N_{NH4} et N_T sont sans dimension.

Pour l'humidité du sol, et dans la gamme d'humidité pondérale Wc de 9% à 27% (g eau g⁻¹ sol sec), la fonction linéaire Nw suivante a été paramétrée en laboratoire :

$$Nw = 0.8166$$
. Wc - 6.6868 avec r²= 0.96; n=5

Pour la température, la fonction N_T retenue est analogue à celle précédemment utilisée, à savoir une fonction exponentielle présentant un Q_{10} de 2,1 et normalisée pour T = 20°C:

$$N_T = \exp\left[\frac{(T-20).Ln(2,1)}{10}\right] = 0,227.\exp\left[\frac{T.Ln(2,1)}{10}\right]$$

Pour le stock d'ammonium, on reprend une fonction N_{NH4} de type Michaelis-Menten:

$$N_{NH4} = \frac{[NH_4^{+}]}{km + [NH_4^{+}]}$$

avec km la constante à demi-saturation. La valeur de cette constante a été déterminée expérimentalement à partir de l'évolution du stock d'ammonium dans le sol entre deux mesures consécutives. Pour cela, on se place pendant une période limitée de 2 à 3 semaines qui suit l'apport d'engrais. On suppose que sur cette période, l'engrais est entièrement disponible pour les microorganismes nitrificateurs du sol (engrais entièrement dissous, et pas de prélèvement par la végétation). On utilise les trois relations décrites ci-dessus pour calculer le taux de nitrification journalier entre deux mesures consécutives du stock d'ammonium du sol. La valeur de km est alors ajustée afin de reproduire le niveau d'azote ammoniacal mesuré dans le sol. La valeur de km = 50 mgN kg⁻¹sol est celle qui permet de mieux reproduire l'évolution observée in situ. Pour des concentrations $[NH_4^+] \ll km$, l'expression précédente se simplifie donc:

$$N_{NH4} = \frac{[NH_4^{+}]}{50}$$

Compte tenu de cette simplification, la vitesse de nitrification s'exprime sous la forme:

$$Ni = \frac{0.227}{50} .(0.8166.Wc - 6.6868) .\exp\left(\frac{Ln(2,1).T}{10}\right) .[NH_4]$$

=>
$$Ni = 4,54 \, 10^{-3} .(0,8166.Wc - 6,6868) . \exp\left(\frac{Ln(2,1).T}{10}\right) . [NH_4]$$

 $Ni = 0.092 \times [NH_4] \approx 0.1 \times [NH_4]$

où [NH₄] est exprimée en mgN kg⁻¹ sol, et Ni en mgN kg⁻¹ sol j^{-1} .

Effectuons le calcul pour une température de l'ordre de 10°C et une humidité pondérale de l'ordre de 20% (valeurs annuelles moyennes observées sur Grignon en 2002).

$$Ni = 4,54 \, 10^{-3} \cdot (0,8166.20 - 6,6868) \cdot \exp(Ln(2,1)) \cdot [NH_4]$$

Soit:

On trouve donc que la vitesse de nitrification par jour est de l'ordre de **10% de la concentration en ammonium.** Cette relation va être utilisée dans la suite (§ II.4.) de façon à pouvoir simuler l'évolution du stock d'azote ammoniacal après apport d'engrais.

Il y a ensuite un changement d'unité à effectuer pour passer de la vitesse de nitrification qui représente une production d'azote par kilogramme de sol (production volumique), à une émission de NO par mètre carré de sol (production surfacique). On fait alors l'hypothèse que la production de NO à lieu dans les 15 premiers centimètres du sol, et que pour cet horizon (h = 0,15m), la densité apparente *da* du sol est en moyenne de l'ordre de: da = 1,2 10³ kg sol m⁻³. On a alors:

$$h^*da = 0.15 \times 1.2 \ 10^3 = 1.8 \ 10^2 \text{ kg sol m}^{-2} = 1.8 \ 10^6 \text{ kg sol ha}^{-1}$$
.

On peut donc transformer l'unité de Nw:

$$Nw (gN ha^{-1} j^{-1}) = Nw (kgN kg^{-1} sol j^{-1}) \times h \times da (kg sol ha^{-1})/1000$$

Dans ces conditions, NO, flux de ce même composé, s'exprime de la façon suivante:

$$NO = 0,02.1,8.1000.(0,8166Wc - 6,6868).0,02275.\exp\left(\frac{Ln(2,1).T}{10}\right) \cdot \frac{[NH_4]}{[NH_4] + 50}$$

=> $NO = 0,02.1,8.1000.(0,8166Wc - 6,6868).0,02275.\exp\left(\frac{Ln(2,1).T}{10}\right) \cdot \frac{[NH_4]}{[NH_4] + 50}$

On se place là aussi dans l'hypothèse simplificatrice [NH₄] << 50:

$$NO = 0,02.1,8.1000.(0,8166Wc - 6,6868).0,02275.\exp\left(\frac{Ln(2,1).T}{10}\right) \cdot \frac{[NH_4]}{50}$$

et on convertit [NH₄] de la même façon:

=>
$$AF (kgN ha^{-1}) = [NH_4] (kgN kg^{-1} sol) \times h \times da (kg sol ha^{-1})/10^6$$

$$=>$$
 [*NH*₄] (mgN kg⁻¹ sol) = *AF* (kgN ha⁻¹)/1,8

où $[NH_4]$ est la quantité d'azote ammoniacal présente **dans le sol** en mgN kg⁻¹ sol, et AF est la quantité d'azote ammoniacal apporté par ha, une grandeur exprimée donc en kgN ha⁻¹, soit:

$$NO = 0.02.1.8.1000.(0.8166Wc - 6.6868).0.02275.\exp\left(\frac{Ln(2,1).T}{10}\right) \cdot \frac{[NH_4]}{50 \times 1.8}$$

=> $NO = 0.091.AF.(0.8166Wc - 6.6868).\exp\left(\frac{Ln(2,1).T}{10}\right)$

où *NO* est le flux d'oxyde nitrique exprimé en gN ha⁻¹ j⁻¹ (soit la même unité que Nw).

17K liede France	TTK llede France									11
								idf		
		Mov/BN	MARN MARA MARNA		MbvB			hadeculture		
	Avaine	100.0	20	35.0	65.0	0.0	09-29/02	11-31/03	0.0	1554
	Bédur	203.0	3.0	60.0	83.0	60.0	09-29/02	05-25/03	10-30/04	1855
	Bétendre	200.0	3.0	66.0	80.0	54.0	09-29/02	05-25/03	10-30/04	256217
	Maïs-grain et maïs-semence	167.0	20	80.0	87.0	0.0	10-30/04	(20-09)/05-06	0.0	41 721
	Oge et escourgeon	133.0	20	91.0	420	0.0	01-21/02	05-25/03	0.0	60350
	Seigle	110.0	20	40.0	70.0	0.0	09-29/02	11-31/03	0.0	687
Tarros ambles effectionnées	Sorgho-grain	100.0	20	45.0	55.0	0.0	01-20/05	09-29/06	0.0	27
	Triticale	110.0	20	40.0	70.0	0.0	09-29/02	11-31/03	0.0	428
	Autres céréales	125.0	20	50.0	75.0	0.0	01-21/02	01-21/03	0.0	126
	Betterave industrielle	133.0	20	107.0	26.0	0.0	11-31/03	10-30/04	0.0	41 989
	Cdzagrainet navette	1820	20	820	100.0	0.0	01-21/02	05-25/03	0.0	52307
	Tourresol	55.0	1.0	55.0	0.0	0.0	(15-05)/04-05	0.0	0.0	3812
	Autres déagineux	120.0	20	50.0	70.0	0.0	01-21/03	01-21/04	0.0	718
	Fourrages (total)	60	1	60	0	0	01-20/04	0	0	6625
									Superficie TAs	468416
	Rz	60	1	60	0	0	01-30/04	0	(0
Terres arables non séléctionnées	Outures industrielles	50	1	50	0	0	01-31/03	0		1797
	Pommes de terres	160	2	130	30	0	01-29/02	01-30/04		3503
	Légumes frais	80	2	40	40	0	01-29/02	01-29/08	0.01.74	5778
									Superiide IAns	110/8
	Jachères (total)	0	0	0	0	0	0	0	0	38928
Terres arables sans apport ne	Soja	0	0	0	0	0	0	0	(69
	Légumes secs et protéagineux (total)	0	0	0	0	0	0	0	(0 43 404
									Superficie Tasars	82401
	Fruits et plantes ornementales	100	2	50	50	0	01-29/02	01-30/04		478
OLTURES PERMANENTES	Vergers	100	2	50	50	0	01-29/02	01-30/04		120/
	Ny Es A itu res normanantes antratanues	- 30 - 70	2	35	35	0	01-20/03	01-20/04		1 2/9
		10	4	30	30	0	01-2000	01-20/04	Superficie CP.	2961
								l		
PRAIRIES et PF	Superficie toujours en herbe	80	2	40	40	0	01-20/03	01-20/04	0	16358
									Superficie P&PP	16358
60 H H										
SAUto										581 214

Tableau 1: Données Ile-de-France, avec:

- MoyB N: quantité moyenne d'azote apporté par culture en kgN.ha⁻¹;
- MoyB A: nombre moyen d'apports par région;
- MoyB N/A: quantité moyenne d'azote apporté lors de chaque apport ;
- MoyB: Période(s) de(s) apport(s);
- ha de culture: surface en hectares (par type de culture).

ITK_Midi Pyrénées										73
										MP
		Mby BN	MoyBA	N	byBN/	A		MbyB	}	hadeculture
	Avaine	100.0	20	40.0	60.0	0.0	09-29/02	11-31/03	0.0	8075
	Bédur	184.0	3.0	50.0	80.0	54.0	(15-04)/01-02	11-31/03	10-30/04	94677
	Bétendre	155.0	3.0	50.0	75.0	30.0	(15-04)/01-02	11-31/03	10-30/04	230361
	Maïs-grain et maïs-semence	110.0	20	52	58.0	0.0	01-21/04	11-31/05	0.0	224.427
	Oge et escourgeon	96.0	20	79.0	17.0	0.0	01-21/04	11-31/05	0.0	89281
	Seigle	100.0	20	45.0	55.0	0.0	09-29/02	11-31/03	0.0	1650
Torras ordalas adjusticasión	Sorgho-grain	100.0	20	45.0	55.0	0.0	01-21/05	09-29/06	0.0	30731
	Triticale	100.0	20	45.0	55.0	0.0	09-29/02	11-31/03	0.0	26957
	Autres céréales	125.0	20	50.0	75.0	0.0	01-21/02	01-21/03	0.0	13090
	Betterave industrielle	133.0	20	107.0	26.0	0.0	11-31/03	10-30/04	0.0	4
	Colza grain et navette	180.0	20	75.0	105.0	0.0	01-21/02	01-21/03	0.0	25424
	Tournesd	59.0	1.0	59.0	0.0	0.0	10-30/04	0.0	0.0	169654
	Autres déagineux	120.0	1.0	50.0	70.0	0.0	01-21/03	01-21/04	0.0	1902
	Fourrages (total)	40	1	40	0	0.0	01-20/04	0	0	499 886
									Superficie TAs	1 416 119
	Rz	60	1	60	0	0	01-30/04	0		00
Tarras arabas pos cálásticossás	Oultures industrielles	50	1	50	0	0	01-31/03	0		7583
	Pommes de terres	160	2	130	30	0	01-29/02	01-30/04		384
	Légumes frais	80	2	40	40	0	01-29/02	01-29/08		11 054
Superficie TAns 1902							19021			
Town order and and	Jachères (total)	0	0	0	0	0	0	0	0	125559
ierres arabies sans apport in	Sola	0	0	0	0	0	0	0		041684
	Legures secs et proteagreux (tota)	0	0	0	0	0	0	0	Quantizia Tanana	400.740
									Superiide Tasans	189718
	En its et clantes conservatales	100	2	50	50	0	01_20/02	01-30/04		226
	Veroers	100	2	50	50	0	01-29/02	01-30/04		15087
CULTURES PERMANENTE	Vignes	56	1	56	0	0	01-20/06			43430
	Outures permanentes entretenues	40	1	40	0	0	01-20/03	0		5984
									Superficie CP	64727
PRAIRIES et P	Superficie toujours en herbe	40	1	40	0	0	01-20/03	0	0	669 293
									Superioe P&HP	66928
CN H A		_	_							0 070 070
Jou										2000/0

Tableau 2: Données Midi-pyrénées, avec:

- MoyB N: quantité moyenne d'azote apporté par culture en kgN.ha⁻¹;
- MoyB A: nombre moyen d'apports par région;
- MoyB N/A: quantité moyenne d'azote apporté lors de chaque apport ;
- MoyB: Période(s) de(s) apport(s);
- ha de culture: surface en hectares (par type de culture).



Figure 16. Concentrations en NO₂ (ppb), mois de juin 2003



Figure 17: Concentrations en O_3 (ppb), mois de juin 2003