

Sommaire

Remerciements	3
I. Introduction générale.....	11
II. L'ammoniac de l'échelle locale à l'échelle régionale: analyse des processus et méthodes de modélisation	21
II.1. Les processus impliqués dans le cycle de l'ammoniac dans l'environnement.....	21
II.1.1.Les émissions d'ammoniac : processus et inventaires	21
II.1.2.La diffusion atmosphérique et le transport vertical.....	23
II.1.3.La dispersion et le transport horizontal	24
II.1.4.Le dépôt sec.....	25
II.1.5.Le dépôt humide.....	28
II.1.6.Réactions chimiques dans l'atmosphère	29
II.2. Modélisation de l'ammoniac à l'échelle régionale.....	29
II.3. Considérations de modélisation de la dispersion de NH ₃ sur des courtes distances .	32
II.3.1.Taille du domaine et processus inclus.....	33
II.3.2.Taux d'émissions de NH ₃	34
II.3.3.Caractéristiques de la source	35
II.3.4.Caractéristiques de la surface.....	35
II.3.5.Les conditions météorologiques.....	36
II.3.6.Localisation des récepteurs	37
II.4. Le concept de charge et de seuil critiques	37
II.5. Le problème de changement d'échelle dans la modélisation	42
II.5.1.Variabilité sous-maille et méthodes de changement d'échelle	42
II.5.2.Différentes méthodes de changement d'échelle	42
II.5.3.Méthodes dynamiques de changement d'échelle.....	43
II.5.4.Méthodes statistiques de réduction d'échelle.....	46
II.5.5.Considérations conclusives sur les méthodes de changement d'échelles	49
II.6. Précision des objectifs de la thèse	50
III. Matériels et méthodes.....	55
III.1. Le modèle CHIMERE.....	55
III.1.1.Présentation générale	55
III.1.2.Domains géométriques du modèle	57
III.1.3.Conditions aux limites et initiales.....	57
III.1.4.La hauteur de la couche limite et mélange turbulent	58

III.1.5.Le transport horizontal	58
III.1.6.Le dépôt sec	58
III.1.7.Météorologie	59
III.1.8.Les émissions	60
III.1.9.Occupation des sols.....	61
III.2. Le modèle OPS-ST	62
III.2.1.Calculs de base de la dispersion.....	64
III.2.2.La structure de la couche limite	65
III.2.3.Le profil de vent.....	66
III.2.4.L'élévation du panache	67
III.2.5.Caractéristiques de la source.....	67
III.2.6.Le dépôt sec	68
III.2.7.Les données d'entrée	68
III.3. Construction des cas d'étude pour les simulations.....	69
III.3.1.Le paysage	71
III.3.2.La météorologie	73
III.3.3.Les émissions	77
Résumé	83
IV. Comparison of dry ammonia deposition in a regional Eulerian chemistry and a landscape scale Gaussian plume model	85
IV.1. Introduction.....	85
IV.2. Materials and methods	87
IV.2.1.The models.....	87
IV.2.2.Input data	93
IV.2.3.Idealized scenarios.....	93
IV.3. Results and discussion	97
IV.3.1.Effect of grid cell size.....	97
IV.3.2.Vertical profiles of NH ₃ concentration and source height.....	101
IV.3.3.Effect of wind speed <i>ws</i> and canopy resistance <i>R_c</i>	103
IV.3.4.Effect of roughness length (<i>z</i> ₀)	107
IV.4. Conclusions.....	107
References	109
Résumé	115
V. Effect of the sub-grid variability and model grid cell size on ammonia deposition and critical load exceedance	117

V.1.	Introduction	117
V.2.	Materials and methods.....	120
	V.2.1.Models.....	120
	V.2.2.Study domain and land-use	121
	V.2.3.Meteorology	123
	V.2.4.Emissions	124
	V.2.5.Dry deposition.....	126
	V.2.6.Critical loads and impacts	127
V.3.	Results and Discussion	128
	V.3.1.Effect of grid cell size on dry deposition	128
	V.3.2.Day to day variability.....	130
	V.3.3.Effect of meteorological parameters (wind speed) on dry deposition	131
	V.3.4.Impact of the land-use.....	132
	V.3.5.Critical loads	134
V.4.	Conclusions	137
	References	139
VI.	Discussion générale.....	147
	VI.1. La résolution spatiale (verticale et horizontale).....	148
	VI.1.1.Effet de la distance entre sources et récepteurs avec OPS-ST.....	150
	VI.1.2.Effet de la hauteur de la source.....	151
	VI.2. Effet du type de couvert.....	152
	VI.3. Effet des conditions météorologiques.....	156
	VI.4. Evaluation des dépassements des charges critiques.....	158
	VI.5. Vers une paramétrisation sous-maille des dépôts secs	160
	Chapitre VII. Conclusion et perspectives.....	163
VII.	Conclusion et perspectives	165
	References	169
	Résumé :	191

Chapitre I: Introduction générale

I. Introduction générale

Vers la fin du XIX^{ème} siècle, l'agriculture européenne connaît des évolutions techniques majeures comme l'utilisation des machines agricoles et des engrais chimiques. Cette période représente aussi le début des techniques de sélection végétale ainsi que de protection chimique des récoltes contre les maladies et les prédateurs. Pour la France, cette révolution agricole a été retardée : ce n'est qu'au début du XX^{ème} siècle que la France a commencé à rattraper ce retard après le grand succès de l'exposition universelle de Paris (1889-1900), grâce aux échanges avec les producteurs des pays voisins. La même période (avant la première guerre mondiale) connaît une grave crise économique qui affecte essentiellement la production agricole de toute l'Europe. L'importation massive des produits agricoles des deux Amériques et même d'Asie (céréales, laine, viandes...), avec des prix très bas, vont concurrencer directement la production agricole traditionnelle. Durant cette période de crise, la fertilisation connaît une vraie évolution. Les recherches montrent l'efficacité des techniques utilisées, la législation est adaptée et les exploitations agricoles qui se développent fortement sont celles dont la conduite et les conditions de production sont les plus intensives.

Face à cette demande accrue, l'azote utilisé pour les engrais se raréfie pendant cette période. Le guano du Pérou, engrais très efficace obtenu à partir des excréments des oiseaux marins et des chauves-souris, s'épuise. Les nitrates du Chili (260 000 tonnes de produit), exportés vers l'Europe, sont des nitrates de soude qui ont permis pour un temps une fourniture limitée car les besoins industriels et militaires sont privilégiés par rapport à l'agriculture. L'industrie allemande se lance dans la production industrielle d'ammoniac (NH_3), synthétisé à partir du diazote atmosphérique (N_2) par le procédé Haber-Bosch. Des raisons militaires en retarderont ses applications civiles jusqu'après la fin de la première guerre mondiale. En parallèle en France en 1918, Georges Claude a réalisé la synthèse de l'ammoniac à la Grande Paroisse, commune située près de Montereau (Seine et Marne). A l'armistice de 1918, la France a reçu le brevet Haber-Bosch, en compensation des dommages de guerre et a créé à Toulouse l'Office National Industriel de l'Azote (ONIA) pour mettre en place une production industrielle. Néanmoins, dans la période entre les deux guerres, le manque d'azote minéral est un phénomène général et sensible. Si l'azote est abondant dans les sols sous forme organique, il est nécessaire que l'humus ou les effluents organiques soient dégradés par les micro-organismes pour transformer l'azote en une forme minérale (azote nitrique, NO_3^-) assimilable par les plantes. Le problème majeur avec ce processus naturel est que les quantités produites

dépendent fortement des facteurs climatiques (température, humidité...) et sont donc peu contrôlables.

Au début du XX^{ème} siècle, la production agricole était limitée, avec des rendements en blé d'hiver de 20 à 30 quintaux par hectare (qx/ha). Vers le milieu du XX^{ème} siècle, l'utilisation des engrais azotés de synthèse, dont la production à l'échelle industrielle est désormais possible, permet d'augmenter les rendements. Les agronomes de l'ONIA calculent, sur une base de production initiale de 30 qx/ha de blé d'hiver, que l'apport de 150 unités d'azote par hectare permettrait d'obtenir un rendement de 60 qx/ha. Dès la fin de la seconde guerre mondiale, l'usage des engrais azotés de synthèse se généralise et permet à l'agriculture française d'atteindre des niveaux de production élevés lui assurant son autosuffisance alimentaire et l'exportation de ses produits agricoles. En 1950, pour la première fois de son histoire, la France se met à produire plus de nourriture (e.g. 70 qx/ha de blé à la fin du XX^{ème} siècle) que n'en consomme sa population qui augmente de 40 millions d'habitants en 1950 à 60 millions à la fin du XX^{ème} siècle. Mais cette explosion de l'utilisation des engrais chimiques a mis en évidence des effets néfastes sur les sols et la végétation. La nitrification de l'azote ammoniacal (NH_4^+) dans les sols permet de produire des nitrates (NO_3^-) et contribue aussi à l'acidification des sols. Un autre effet néfaste corollaire est l'émission d'ammoniac dans l'atmosphère et son impact sur la végétation avoisinante et la qualité de l'air (formation de particules fines).

Depuis la fin du XIX^{ème} siècle, l'ammoniac atmosphérique provient principalement de l'élevage (Eriksson, 1952 ; Bouwman et al., 1997; Oudendag et Luesink, 1998; Dämmgen et Erisman, 2005). Les principales sources de NH_x (NH_3 et NH_4^+) sont les bâtiments d'élevage, ainsi que les aires de stockage et les épandages des effluents d'élevage (Jarvis et Pain, 1990; Générmon et Cellier, 1997 ; Bussink et Oenema, 1998; Pain et al., 1998 ; Döhler et al., 2002 ; Asman et al., 2004). Par conséquent, certaines sources d'émission d'ammoniac sont des « hot spots », c'est-à-dire des émissions intenses et groupées spatialement sur une petite surface émettrice (sources ponctuelles comme les bâtiments d'élevage ou les aires de stockage des effluents) ou sur des périodes temporellement très courtes, après l'épandage des engrais.

Une fois dans l'atmosphère, l'ammoniac émis est dispersé, transporté puis soit:

- déposé à sec sous forme d'ammoniac gazeux par absorption stomatique et par adsorption non stomatique sur la surface de la canopée (Sutton et al., 1993a,b, 1995a),

- déposé à sec sous forme d'ammonium particulaire (NH_4^+) après son passage dans la phase particulaire suite à sa neutralisation par des acides, essentiellement par diffusion brownienne (taille des particules < 100 nm) ou sédimentation (taille des particules > 1 μm),
- déposé par voie humide sous forme d'ion NH_4^+ , après son passage dans la phase aqueuse (gouttelettes de nuages) et sa neutralisation par des acides (Dlugi et al., 1997 ; Nemitz et al., 2002, 2004a,b ; Nemitz et Sutton, 2004).

Mais l'ammoniac peut également être émis par les plantes qui représentent donc à la fois un puits et une source d'ammoniac en fonction de leur teneur en azote et de la concentration en ammoniac atmosphérique (Farquhar et al., 1980 ; Sutton et al., 1995a,b, 2001 ; Schjoerring et al., 1998 ; Andersen et al., 1999 ; Milford et al., 2001 ; Hill et al., 2001). En outre, l'adsorption non-stomatique d'ammoniac est influencée par la charge de polluants acides à la surface (Erisman et Wyers, 1993 ; Sutton et al., 1993c ; Fléhard et al., 1999). Les processus d'émission et de dépôt conduisent à une distribution spatialement hétérogène à l'échelle d'un km^2 (Sutton et al., 1998 ; Dragosits et al., 1998, 2002 ; Hutchings et al., 2001), surtout à proximité des sources.

L'intérêt pour l'ammoniac en tant que polluant n'est pas récent. Les premiers signaux que l'ammoniac est une menace pour l'environnement ont déjà été mis en évidence au XIX^{ème} siècle quand, dans le voisinage direct des bâtiments d'élevage, des dommages à la végétation ont été observés. La présence d'ammoniac dans la pluie a été également observée et considérée par certains scientifiques comme « fertilisation gratuite par l'atmosphère ». Entre les années 1975 et 1990, divers programmes d'évaluation de l'acidification ont été lancés aux États-Unis et au Canada. Les plus complets de ces programmes étaient le « Memorandum of Intent (MOI) » initié en 1978, le rapport du bureau de l'évaluation des technologies (OTA) en 1984 et le programme national d'évaluation des pluies acides (NAPAP) en 1990. Mais la reconnaissance mondiale des problèmes posés par les émissions d'ammoniac, et de ce qu'elles représentent comme menace sur la nature à large échelle, a été provoquée par l'article « Soil acidification from atmospheric ammonium sulphate in forest canopy throughfall », publié par Van Breemen et al. (1982). Cette découverte a été non seulement d'une grande importance d'un point de vue écologique pour mieux comprendre la nutrition des plantes, mais aussi pour mieux cerner l'impact des sources d'émission d'ammoniac, essentiellement par les activités de production animale. Par la suite, le modèle RAINS (Alcamo et al., 1991) par exemple, basé sur la connaissance des émissions, du transport, de la diffusion, des réactions chimiques, du

dépôt, ainsi que des données technico-économiques, a été utilisé à des fins d'évaluation des efforts à fournir pour réduire les émissions d'ammoniac à l'échelle européenne et s'approcher d'un état de référence dans lequel toutes les zones sensibles seraient protégées (Tab. I.1).

Tableau I.1 : Evolution des émissions d'ammoniac (NH₃) entre 1980 et 2000.

[Alcamo et al., 1991]

Pays	Emissions de NH₃
République Tchèque, Hongrie, Pologne et Slovaquie	-46%
Autriche, Suisse et Allemagne	-23%
Estonie, Lettonie, Lituanie et Russie	-48%
Danemark, Finlande, Islande, Norvège et Suède	-10%
Belgique, Luxembourg, Pays-Bas, Irlande et Royaume-Uni	-13%
France, Grèce, Italie, Portugal et Espagne	+1%
Albanie, Arménie, Biélorussie, Bosnie-Herzégovine, Bulgarie, Croatie, Chypre, Géorgie, Kazakhstan, Moldavie, Roumanie, Slovénie, Macédoine, Turquie, Ukraine et Yougoslavie	-12%
Total Europe	-16%

Le protocole de Göteborg, signé le 1^{er} décembre 1999, représente la première tentative de réglementer les émissions d'ammoniac et de mettre en évidence les risques liés à son dépôt. Ce protocole, dit « multi-polluant – multi-effets », est fondé sur la notion des « charges critiques » qui déterminent le dépôt maximal d'ammoniac qui ne devrait pas être dépassé sur une région, ce qui permet de calculer une répartition des efforts à mener entre les pays émetteurs des composés concernés (Tab. I.2).

En 2000, une « directive du Parlement européen et du conseil portant sur l'adoption de plafonds nationaux d'émissions pour certains polluants » a été établie ; elle traduit en droit communautaire les décisions prises dans le cadre du protocole de Göteborg. Ce protocole n'a pas été signé par la commission européenne au motif que la protection de l'environnement qui en résulterait serait trop modeste. Le niveau des émissions retenu pour la France à Göteborg (777 kt/an de NH₃) est nettement au-dessus du niveau d'émissions qui permettrait, selon le modèle RAINS, de réduire de moitié la surface des écosystèmes naturels menacés (642 kt/an de NH₃).

Tableau I.2 : Evolution des émissions d'ammoniac (NH₃) suite au protocole de Göteborg entre 1990 et 2010. [Elichegaray et al., 2010]

	Emissions de NH ₃ en 1990	Objectif 2010	Objectif de réduction	Contribution aux émissions totales en 1990	Contribution aux émissions totales en 2010
Allemagne	764	550	-28 %	20,83 %	17,68 %
Autriche	81	66	-19 %	2,22 %	2,12 %
Belgique	107	74	-31 %	2,92 %	2,38 %
Danemark	122	69	-43 %	3,30 %	2,22 %
Espagne	351	353	1 %	9,53 %	11,35 %
Finlande	35	31	-11 %	0,95 %	1 %
France	814	780	-4 %	22,16 %	25,08 %
Grèce	80	73	-9 %	2,19 %	2,35 %
Irlande	126	116	-8 %	3,44 %	3,73 %
Italie	466	419	-10 %	12,70 %	13,47 %

Suite à des négociations difficiles, les objectifs chiffrés auxquels les différents pays se sont engagés ne sont finalement que faiblement inférieurs aux objectifs du protocole de Göteborg. Un rapport du CITEPA en 2016 (<https://www.citepa.org/fr/>) montre que les taux des émissions d'ammoniac en France entre 2000 et 2015 n'ont pas baissé considérablement, avec un minimum de 686 kt/an de NH₃ en 2004 et un maximum de 715 kt/an de NH₃ en 2000, ainsi qu'une estimation de 715 kt/an de NH₃ pour 2015 (Tab. I.3).

Tableau I.3 : Emissions de NH₃ entre 1990 et 2014 par l'agriculture en France métropolitaine. [CITEPA, 2016]

Minimum observé	679 kt en 1994
Maximum observé	716 kt en 1983
Emissions en 2014	708 kt
Evolution entre 2014 et 1990	+0.5%
Evolution 2014/maximum	-1.2%
Evolution 2014/minimum	+4.3%

L'ammoniac atmosphérique est en train de devenir le polluant atmosphérique clé qui contribuera aux impacts futurs de l'azote sur les écosystèmes terrestres en Europe, en particulier leur acidification. En même temps, l'ammoniac apporte une contribution croissante à la formation de particules secondaires, avec ses risques associés sur la santé humaine. D'ici 2020, on estime que l'ammoniac sera le plus grand contributeur à l'acidification, à

l'eutrophisation et à la production de particules secondaires en Europe (Ammann et al., 2005). Cette augmentation est particulièrement le reflet de la réussite des politiques européennes pour réduire les émissions de SO₂ et de NO_x. Un des défis majeurs pour l'avenir est donc de réduire les émissions d'ammoniac pour en limiter ses impacts sur l'environnement.

Les mesures de concentration en ammoniac par les programmes de surveillance, qui n'existent actuellement que partiellement, seraient essentielles pour fournir des informations sur les proportions et les charges réelles d'ammoniac dans l'environnement. Ces données pourraient, conjointement avec les données de campagnes de terrain, constituer une base de compréhension des processus physiques et chimiques qui régissent les flux d'ammoniac. Cependant, la modélisation des concentrations et des dépôts d'ammoniac permet d'étendre considérablement les possibilités de compréhension. Les mesures sont par la force des choses effectuées sur un nombre limité d'endroits. Les simulations des modèles complètent ces mesures pour obtenir des informations avec une résolution géographique plus élevée pour les estimations à des endroits non couverts par des réseaux de surveillance. Les modèles bien testés et validés sont par ailleurs très utiles dans l'interprétation des mesures. La modélisation permet notamment d'établir la relation de dépendance entre la source et le récepteur. Cela signifie qu'il est possible d'estimer la contribution des sources d'ammoniac, des secteurs économiques ou des pays aux concentrations d'ammoniac dans l'atmosphère et aux dépôts d'ammoniac sur les agroécosystèmes. La modélisation est donc un outil puissant pour réaliser des études de scénarios pour la gestion agro-environnementale de l'azote.

À ce jour, les politiques publiques se sont principalement basées sur des travaux de modélisation de la dispersion et du dépôt d'ammoniac aux échelles régionale et européenne (van Pul et al., 2009 ;Dore et al., 2015 ;Van Damme et al., 2014 ;Dentener et al., 2014), alors qu'elles ont peu pris en compte ceux sur la modélisation des flux d'ammoniac à proximité des sources (e.g. Loubet et al., 2001 ; Dragosits et al., 2002 ; Hicks et al., 2011). Cependant, les mesures et les modèles mettent en évidence de manière préoccupante l'impact des sources « hot-spots » d'ammoniac sur l'environnement, par exemple dans les zones naturelles de conservation situées à proximité de sources agricoles (Sutton et al., 2009 ; Hicks et al., 2011). La modélisation du transport, de la transformation et du dépôt d'ammoniac atmosphérique reste un défi en raison de la complexité des processus (Asman et al., 1998 ; Hertel et al., 2006). L'ammoniac est émis généralement à partir des sources situées à des hauteurs faibles : les émissions se font à partir des systèmes de ventilation des bâtiments d'élevage ou après l'épandage de fumier ou de lisier. Cela signifie que l'ammoniac, compte tenu de sa vitesse de dépôt rapide, est déposé largement à proximité de la source, et ces émissions et dépôts

représentent une forte hétérogénéité spatiale à l'échelle locale. À son tour, l'ammoniac déposé peut être réémis et se redéposer plus loin. En même temps, l'ammoniac réagit rapidement, à une échelle de temps de quelques minutes à quelques heures, avec des gaz acides et des particules dans l'atmosphère pour former des sels d'ammonium en aérosols. Les vitesses de dépôt étant bien plus faibles pour les aérosols que pour l'ammoniac, celui-ci peut ainsi être transporté vers des zones éloignées des zones d'émissions. Par ailleurs, une voie mineure de perte d'ammoniac est l'oxydation par le radical OH pour former à la suite de plusieurs réactions radicalaires des oxydes d'azote. L'échelle de temps de cette perte chimique est assez lente, de l'ordre de plusieurs jours.

La quantification des effets nocifs des dépôts d'ammoniac peut être identifiée par l'utilisation de la notion des charges critiques. C'est l'hypothèse d'un niveau de pollution qui dépasserait une charge (dépôt) ou un seuil (concentration) au-dessus duquel des effets nocifs peuvent se produire et en dessous duquel aucun effet nocif ne serait visible. Cette notion représente maintenant un indicateur important pour les stratégies de lutte contre les effets de la pollution. La création des cartes de dépassement de charges peuvent faciliter l'identification des zones où les écosystèmes sensibles doivent être protégés. Comme pour le calcul des dépôts secs et l'élaboration de cartes de charges critiques, la résolution spatiale des modèles peut engendrer de grandes incertitudes et ces cartes sont généralement assez grossières.

La transformation chimique, la dispersion et le dépôt ont des échelles de temps similaires. La modélisation du dépôt d'ammoniac sur les écosystèmes est moins simple, en raison de la possible réémission d'ammoniac par les écosystèmes qui sont riches en azote. Des concepts (e.g. point de compensation) et des paramétrisations spécifiques sont donc nécessaires pour modéliser les concentrations et les dépôts d'ammoniac. Différents types de modèles sont actuellement utilisés dans la recherche ainsi que dans la gestion de l'environnement dans le domaine de l'ammoniac. Les modèles diffèrent par la description des processus d'émission, de transformation chimique et de dépôt, leur formulation, leur mise en œuvre, ainsi que l'échelle spatiale simulée. L'analyse de leurs performances renseigne sur la validité des formulations et des paramétrisations utilisées pour des applications choisies.

Cette thèse s'intègre dans le cadre des activités de recherche du département « Environnement et Agronomie » de l'INRA. Les missions de ce département sont de développer des connaissances génériques pour gérer de façon durable les espaces cultivés. Ce travail a été réalisé dans l'Unité Mixte de Recherche « Écologie fonctionnelle et écotoxicologie des agroécosystèmes » (UMR 1402 ECOSYS) ayant pour tutelles l'INRA et AgroParisTech. Les

activités de cette unité se focalisent autour de la description et de la modélisation du fonctionnement des agroécosystèmes représentatifs des grandes cultures en interaction avec les facteurs abiotiques et biotiques de l'environnement (climat, sol, polluants, pathogènes...). Plus précisément, des outils métrologiques sont développés pour mesurer les flux de polluants et de gaz à effet de serre, ainsi que des modèles robustes pour décrire et prédire ces flux. Ce travail s'est également inscrit dans le projet intégré européen ECLAIRE, dont l'objectif était de mettre en évidence la façon avec laquelle le changement climatique peut modifier l'impact de la pollution atmosphérique sur les écosystèmes terrestres européens, y compris les sols, en se basant sur des observations de terrain, des données expérimentales et des modèles. Le projet a aussi permis de produire de nouvelles connaissances sur les flux, les concentrations et les impacts environnementaux, qui seront utilisées pour l'élaboration des futures politiques européennes. Une des composantes de ce projet s'est focalisée particulièrement sur la production des cartes de dépôt d'azote et d'impact de l'ozone (O₃) sur l'Europe pour les scénarios actuels et futurs, depuis des échelles locales jusqu'à des échelles globales, en associant des modèles écologiques, météorologiques, chimiques et atmosphériques. Le travail de thèse s'est aussi inscrit dans une thématique de recherche du « Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques » (UMR 7583 LISA, ayant pour tutelles le CNRS, l'Université Paris-Est Créteil et l'Université Paris Diderot) et visant à améliorer la modélisation à petite échelle de l'ammoniac dans le modèle de chimie et de transport régional CHIMERE.

L'objectif général de la thèse est d'évaluer la variabilité sous-maille d'un modèle de chimie, de transport et de dépôt d'ammoniac fonctionnant à l'échelle régionale à partir d'un modèle de transport et dépôt fonctionnant à l'échelle locale, ceci afin de comprendre les différences de prédictions entre les deux modèles et de proposer des pistes d'amélioration des modèles régionaux. D'un point de vue appliqué, ce travail vise à utiliser les résultats de comparaison obtenus à partir des deux modèles pour mieux évaluer les impacts des dépôts d'ammoniac sur les écosystèmes sensibles, en particulier dans des paysages hétérogènes en termes de localisation et d'intensité des sources (e.g. bâtiments d'élevage, aires de stockage des effluents) et des puits (e.g. zones sensibles) d'ammoniac.

Chapitre II : L'ammoniac de l'échelle locale à l'échelle régionale: analyse des processus et méthodes de modélisation

II. L'ammoniac de l'échelle locale à l'échelle régionale: analyse des processus et méthodes de modélisation

II.1. Les processus impliqués dans le cycle de l'ammoniac dans l'environnement

La grande variabilité spatiale des dépôts d'ammoniac (NH_3) à proximité des sources dépend essentiellement des caractéristiques de surface autour de la source (Klaassen, 1991 ; Draaijers et al., 1994 ; De Jong et Klaassen, 1997 ; Theobald et al., 2001 ; Loubet et al., 2006), des émissions de NH_3 à partir de la végétation (Schjoerring et al., 1998 ; Riedo et al., 2002), de la litière (Nemitz et al., 2000a,b), de la surface de sol (Génermont et Cellier, 1997), ainsi que des flux de NH_3 non stomatique (van Hove et al., 1989 ; Erisman et Wyers, 1993 ; Sutton et al., 1995a ; Flécharde et al., 1999 ; Loubet et al., 2001).

II.1.1. Les émissions d'ammoniac : processus et inventaires

Les principales sources d'émission d'ammoniac dans l'atmosphère proviennent de l'urée produite par les animaux d'élevage (urine, lisiers), de la fertilisation avec des engrais à base d'ammoniac et de quelques activités industrielles (Böttger et al., 1978 ; Bonis et al., 1980 ; Soderlund et Svensson, 1976 ; Cass et al., 1982). D'autres sources moins importantes peuvent émettre du NH_3 telles que les émissions provenant de la sueur humaine et de la respiration, les animaux domestiques, les opérations d'épuration, la combustion et la mise en décharge (Eggleston, 1992 ; Lee et Dollard, 1994 ; Sutton et al., 1995c). Les émissions naturelles d'ammoniac dans l'atmosphère sont très limitées (Fig. II.1).

L'agriculture représente la source principale d'ammoniac atmosphérique émis à partir des bâtiments d'élevage, des aires de stockage et des épandages des effluents et, dans une moindre mesure, après application d'engrais minéraux et par les animaux au pâturage (Ecetoc, 1994 ; Bouwman et al., 1997 ; CITEPA, 2016 ; Fig. II.1, Tab. II.1). Par conséquent, dans les régions d'agriculture intensive, la plupart des sources de NH_3 sont groupées dans des petites zones entourant les fermes, qui peuvent être définies comme des « hot-spots ». D'autres sources d'ammoniac sont les animaux en pâturage, les installations de stockage et la fertilisation des cultures qui sont plus diffuses (Skjøth et al., 2008).

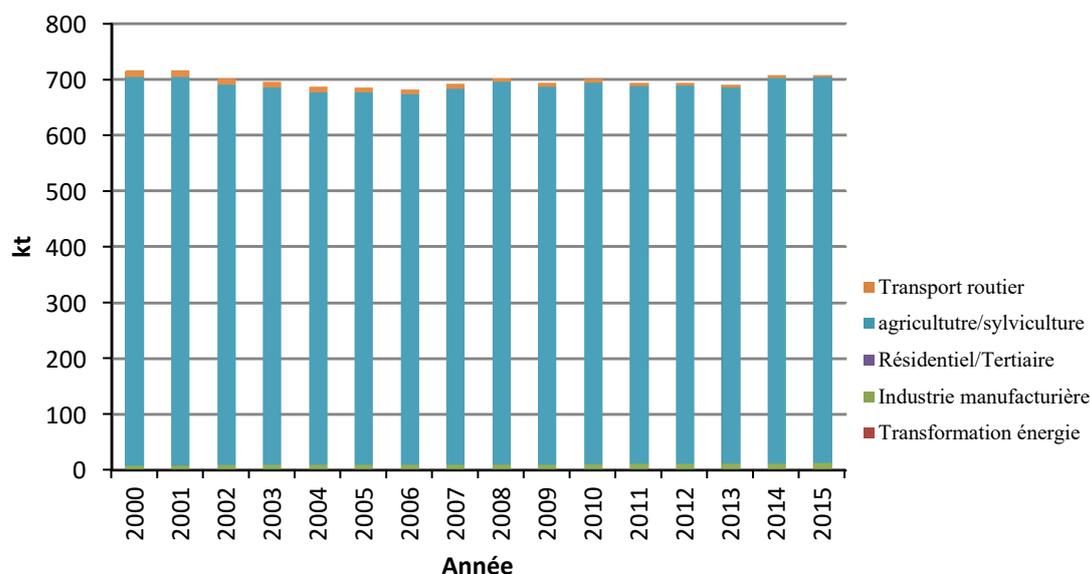


Figure II.1: Emissions de NH₃ dans l'air en France métropolitaine entre 2000 et 2015, seules sont visibles sur ce graphique les contributions de l'agriculture/sylviculture et du transport routier. [CITEPA, 2016]

Tableau II.1 : Classement des sous-secteurs les plus émetteurs de NH₃ en agriculture en 2014. [CITEPA, 2016]

Classement	Sous-secteur	Part du sous-secteur dans les émissions nationales de la France métropolitaine
1	Elevage dont :	64%
	Déjections animales	64%
2	Cultures dont :	34%
	Cultures avec engrais	33%
	Epandage des boues	0.1%
	Ecobuage	0.1%

Pour toutes les sources, il est courant que les émissions d'ammoniac dépendent largement des conditions environnementales. La concentration en NH₃ au-dessus d'une solution contenant du NH₄⁺ augmente de manière exponentielle avec la température et le pH de la solution (Génermont et Cellier, 1997). Par conséquent, l'émission totale d'ammoniac varie en fonction de l'heure de la journée, de la saison (Battye et al., 2003 ; Gilliland et al., 2006) et des types de sols. Les taux d'émission sont souvent calculés à partir d'une combinaison des données d'activité et du facteur d'émission correspondant à l'activité, facteur qui doit donc idéalement

tenir compte des conditions environnementales. Les émissions à partir des bâtiments d'élevage dépendent principalement de la ventilation (Seedorf et al., 1998) et de la température à l'intérieur du bâtiment (Wathes et al., 1998). L'émission de NH_3 après application de fertilisants au champ dépend du type d'engrais (fumier liquide ou solide, fertilisant minéral...), de la méthode d'application (Hutchings et al., 2001), du lieu et de la date d'application, des propriétés du sol (e.g. pH; Dai et al., 2013) et des conditions météorologiques (température et vitesse du vent; Riddick et al., 2016). La période de temps entre l'application, l'incorporation et les précipitations joue également un rôle dans les émissions de NH_3 (Génermont et Cellier, 1997; Huijsmans et al., 2003; Rosnoblet et al., 2007). Les émissions de NH_3 provenant des installations de stockage dépendent principalement du pH, de la température, de la vitesse du vent et de la présence d'une croûte à la surface des produits stockés pour les boues et les lisiers (Olesen et Sommer, 1993).

La plupart des inventaires à l'échelle nationale ou locale pour l'ammoniac sont présentés sous forme de valeurs moyennes annuelles pour des grilles de différentes résolutions (Bouwman et al., 1997; Dragosits et al., 1998; Sutton et al., 2000). Si ce procédé est utile pour l'aspect réglementaire de suivi des émissions annuelles par rapport aux seuils fixés, la résolution temporelle d'une année ne permet pas de tenir compte de la variabilité des émissions en fonction des conditions météorologiques. Ainsi, Hamaoui et al. (2014) ont couplé au modèle de chimie et de transport CHIMERE (Menut et al., 2014) un modèle explicite d'émissions de NH_3 (VOLT'AIR) (Génermont and Cellier, 1997; Garcia et al., 2011) pour prendre en compte la variabilité de ces émissions en fonction des dates d'épandage des engrais et des conditions météorologiques.

II.1.2. La diffusion atmosphérique et le transport vertical

Les substances rejetées dans l'atmosphère se dispersent à une vitesse qui dépend essentiellement de la vitesse du vent, de la turbulence et de la stabilité atmosphérique (Seinfeld et Pandis, 1998). Par ailleurs, le mélange vertical dans l'atmosphère peut être limité au-dessus d'une certaine hauteur, appelée hauteur de mélange. Cette hauteur de mélange est caractérisée par des variations diurnes ainsi que des variations saisonnières et dépend aussi de la turbulence et de la stabilité atmosphérique. Compte tenu du temps nécessaire pour le brassage de la couche de mélange (une à plusieurs heures), la hauteur de cette couche est déterminante pour le transport et la dispersion à l'échelle régionale. En revanche, à une distance proche des sources, c'est surtout le mélange dans la couche de surface, correspondant environ au dixième inférieur de la couche limite mélangée dans la journée, qui est déterminant. La turbulence et le champ de vent ne dépendent pas seulement des conditions

météorologiques, mais sont aussi influencés par la présence de bâtiments et par la rugosité de surface. La vitesse du vent augmentant avec la hauteur, les distances de transport et de dépôt sont d'autant plus grandes que le mélange vertical est favorisé. La déviation et la perturbation du champ de vent par une structure (réservoir de stockage, bâtiment d'élevage...) peuvent aussi avoir une influence sur la dispersion du polluant émis par cette structure (Bjerg et al., 2004). Si le polluant émis est très proche de la partie supérieure de la structure avec une vitesse d'émission faible, le polluant sera transporté vers le bas par un « rabatement » sur le côté du bâtiment sous le vent. C'est souvent le cas pour les bâtiments d'élevage avec des sorties sur le toit. Les dimensions de la structure (hauteur, largeur, orientation du vent, inclinaison du toit...) ont une influence sur le champ de vent. Par exemple, si la cheminée est relativement élevée, le polluant ne sera pas transporté vers le bas. L'influence des bâtiments sur le champ de vent (et donc sur le dépôt) peut être négligée à des distances de 5 à 10 fois la hauteur d'émission, ce qui correspond à une distance de 50 à 150 m sous le vent (Irvine et al., 1997 ; Flesch et al., 2005).

II.1.3. La dispersion et le transport horizontal

La dispersion de l'ammoniac émis dans l'atmosphère peut être classée en deux parties : une partie qui va se déposer à l'échelle locale (quelques mètres à quelques kilomètres) et une partie à une échelle plus large (quelques dizaines à quelques milliers de kilomètres). C'est le transport moyen de la pollution de l'air avec l'écoulement du vent moyen. Pour l'ammoniac, les émissions proviennent généralement des sources à faibles hauteurs, et la dispersion à l'échelle locale est particulièrement importante quand on veut mesurer ou simuler les flux d'ammoniac à une échelle de l'ordre de quelques kilomètres (Asman, 2001). La dispersion à l'échelle locale peut être calculée en utilisant des modèles « K-théorie » (Troen and Mahrt, 1986) dans des grilles ou par des solutions analytiques pour l'équation de diffusion/advection avec des profils verticaux continus en fonction de la hauteur (Gryning et al., 1987).

La modélisation du transport ou de l'advection pour la pollution de l'air est possible essentiellement grâce à deux types de modèles : les modèles de type lagrangien et les modèles de type eulérien.

- Dans les modèles lagrangiens, un volume d'air est représenté le long d'une trajectoire calculée à partir de la vitesse et de la direction du vent. Les trajectoires dans le modèle peuvent être utilisées dans un mode inverse pour décrire les polluants qui arrivent sur un récepteur donné et aussi dans un mode décrivant le transport de polluants à partir d'un certain nombre de sources dans le domaine de simulation.

- Dans les modèles eulériens, l'espace est discrétisé par un ensemble de mailles avec une résolution horizontale et verticale donnée. Les calculs peuvent être effectués simultanément pour plusieurs points récepteurs. Pour chacun de ces points récepteurs, le transport dans et hors des mailles du domaine est calculé.

Hormis le transport, tous les autres processus physiques et chimiques inclus dans les modèles peuvent en principe être identiques pour les deux types de modèles, lagrangien et eulérien. Il est généralement considéré que la description du transport est plus précise dans les modèles eulériens (Stohl, 1998). Les modèles eulériens sont généralement plus exigeants en ressources informatiques, surtout quand une résolution spatiale élevée est recherchée, ce qui est le cas pour les problèmes liés au dépôt d'ammoniac. Le formalisme des modèles lagrangiens permet des calculs plus rapides et ils sont mieux adaptés pour traiter des problèmes environnementaux à une résolution spatiale relativement élevée comme pour l'ammoniac.

II.1.4. Le dépôt sec

Le dépôt sec est le processus le plus important pour l'élimination de l'ammoniac de l'atmosphère, en particulier à proximité des sources, même si à l'échelle continentale (quelques milliers de km), le dépôt humide est généralement équivalent au dépôt sec (Asman, 1992). Le processus de dépôt sec dépend essentiellement de la concentration en ammoniac dans l'air, des échanges convectifs au niveau de la surface et des propriétés physiques, chimiques et biologiques de la surface de dépôt. Dans les modèles de chimie-transport, le dépôt sec de gaz et de particules est souvent décrit par une relation utilisant la vitesse de dépôt et la concentration de la substance à une hauteur de référence. Ce processus peut se décrire sous la forme d'un schéma de résistances (Wesely, 1989). Dans la plupart des schémas d'échanges, on suppose que la concentration du polluant dans l'air au niveau de la surface est nulle (Wesely, 1989). Pour l'ammoniac, ces conditions ne sont pas satisfaites, le processus de dépôt étant en principe le résultat net d'un processus d'échange bidirectionnel. Des formulations pour le calcul de la concentration en surface sont donc nécessaires. La concentration de l'ammoniac en surface est souvent désignée par le terme « point de compensation ». Des sous-modèles spécifiques des résistances de surface pour le calcul du dépôt sec, incluant la description d'un point de compensation de NH_3 , ont été développés et mis en œuvre (Farquhar et al., 1980 ; Flécharde et al., 2013). Le NH_3 est capable de se déposer sur quasiment toutes les surfaces et la répartition du dépôt sec est souvent déterminée par la résistance au dépôt au niveau de la surface (Asman, 1998). L'absorption par les stomates représente un des chemins privilégiés pour les dépôts secs de NH_3 sur les plantes. Une autre

voie de dépôt de NH_3 sur les plantes est l'adsorption du NH_3 lors d'épisodes de rosée grâce au mince film d'eau sur la surface de l'épiderme (Nemitz et al., 2004a,b). L'ammoniac peut aussi se déposer directement sur les sols nus ainsi que sur les surfaces d'eau, mais ce dépôt reste faible en raison de la grande résistance au dépôt de ces types de surface qui est due à la faible longueur de rugosité. Les processus de dépôt sec sont généralement représentés par des modèles de résistance ou par le produit de la concentration au niveau de la surface et la vitesse spécifique de dépôt à la surface. Néanmoins, les orientations récentes de l'agence de l'environnement en Angleterre et au Pays de Galles suggèrent que ces représentations peuvent sous-estimer les concentrations atmosphériques et les dépôts secs sous le vent en raison d'une surestimation des dépôts secs à proximité des sources. Cette surestimation est due au fait que la saturation des dépôts secs est négligée à des concentrations atmosphériques élevées, comme cela a été observé dans les études expérimentales (Sutton et al., 1993a,b ; Jones et al., 2007 ; Cape et al., 2009 ; Flécharde et al., 2013). La vitesse de dépôt sec v_d pour un composé gazeux est exprimée par la valeur inverse de la résistance totale au transport entre la hauteur de référence et la surface de dépôt (Fig. II.2) :

$$v_d = \frac{1}{R_a + R_b + R_c}$$

où R_a est la résistance aérodynamique liée au transfert turbulent dans les premiers mètres de l'atmosphère, R_b la résistance au transfert dans la couche limite quasi-laminaire proche de la surface et R_c la résistance de la surface. Les résistances R_a et R_b sont calculées à partir des paramètres météorologiques et de surface. La résistance R_c est exprimée par plusieurs résistances parallèles correspondant aux différentes voies de dépôt.

La résistance aérodynamique R_a traduit la diffusivité turbulente. Elle dépend de plusieurs paramètres turbulents tels que la longueur de Monin-Obukhov L , la vitesse de frottement u_* , la longueur de rugosité dynamique z_{om} et la hauteur de déplacement d . R_a est calculée au niveau de la surface et au niveau de la hauteur de référence z_{ref} , en fonction de la stabilité de la couche atmosphérique de surface (Wesely and Hicks, 1977 ; Hicks et al., 1987) :

$$R_a(z_{ref}) = \frac{1}{k u_*} \left[\ln \left(\frac{z_{ref} - d}{z_{om}} \right) - \psi_M \left(\frac{z_{ref} - d}{L} \right) + \psi_M \left(\frac{z_{om}}{L} \right) \right]$$

avec ψ_M la fonction de similarité qui tient compte de la stabilité de la couche atmosphérique de surface (Zhang et al., 2001).

La résistance de la couche limite quasi-laminaire de surface R_b est estimée par la diffusivité près du sol, dans la couche « laminaire » (Hicks et al., 1987) :

$$R_b = \frac{2}{k u_*} \left(\frac{Sc}{Pr} \right)^{2/3}$$

où k est le nombre de Karman ($k = 0,41$), Sc et Pr sont les nombres Schmidt et de Prandtl, respectivement. Le nombre de Prandtl est constant et fixé à 0,72. Le nombre de Schmidt pour le NH_3 est de 0.662.

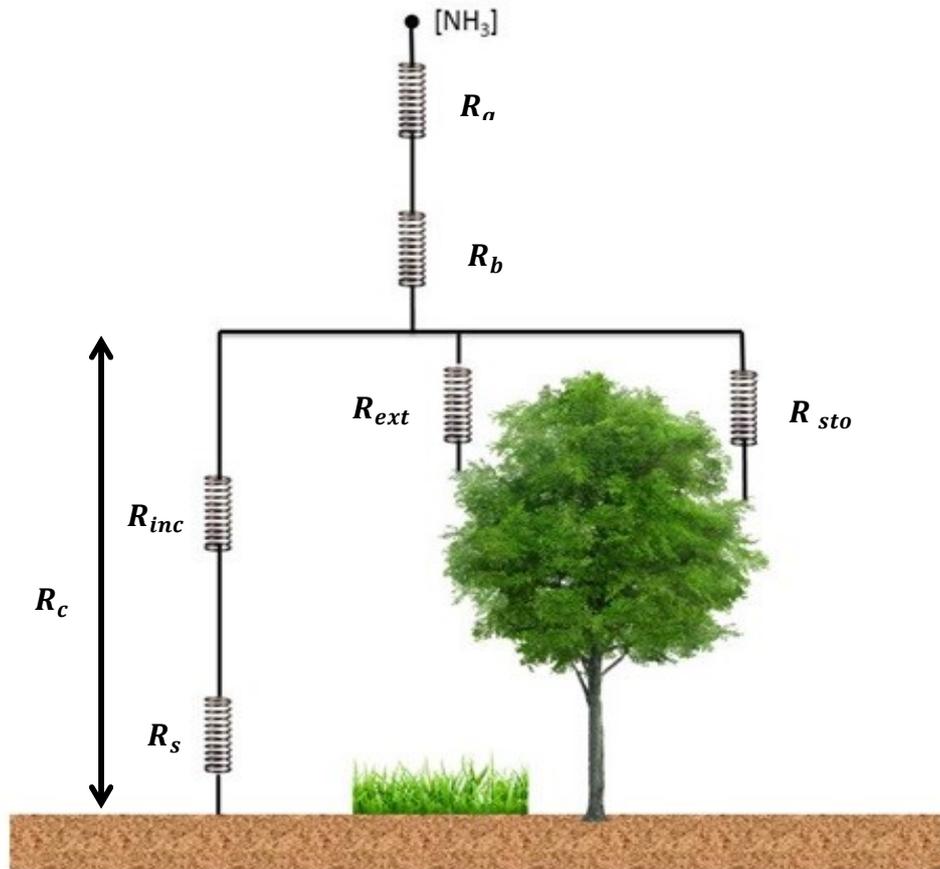


Figure II.2: Schéma conceptuel de dépôt sec pour les gaz.

La solubilité dans l'eau des espèces gazeuses doit être connue pour estimer la résistance de surface R_c (Erisman et al., 1994). Le calcul de R_c utilise un certain nombre d'autres résistances représentant principalement des processus stomatiques et de surface de la végétation qui sont essentiellement fonction de la saison et des occupations du sol. Cette résistance peut être considérée comme la résistance équivalente à quatre autres « sous résistances » (Erisman, 1992) :

$$R_c = \frac{1}{\frac{1}{R_{sto}} + \frac{1}{R_{inc} + R_s} + \frac{1}{R_{ext}}}$$

avec :

R_{sto} : Résistance stomatique

R_{ext} : Résistance cuticulaire

R_{inc} : Résistance de la végétation

R_s : Résistance du sol

Pour le calcul de R_c , la résistance stomatique R_{sto} dépend essentiellement des types d'occupations du sol et est estimée suivant le modèle d'Emberson et al. (2000) :

$$R_{sto} = (g_{max} * f_{phen} * f_{light} * \max(g_{min}, (f_{temp} * f_{VPD} * f_{SWP})))^{-1}$$

avec :

g_{max} : Conductance stomatique maximale

g_{min} : Conductance stomatique minimale

f_{phen} : Conductance relative déterminée par l'âge des feuilles

f_{light} : Conductance relative déterminée par le rayonnement

f_{temp} : Conductance relative déterminée par la température

f_{VPD} : Conductance relative déterminée la pression de vapeur d'eau saturante

f_{SWP} : Conductance relative déterminée par l'humidité de sol

Toutes les conductances relatives sont comprises entre 0 et 1.

Les conductances stomatiques g_{min} et g_{max} sont constantes et ne dépendent que du type de végétation.

II.1.5. Le dépôt humide

Les gouttes de pluie ou les gouttelettes des nuages sont habituellement acides. Lorsque le NH_3 est absorbé par les gouttes de pluie, il réagit avec l'ion H^+ pour former du NH_4^+ . Les NH_x (NH_3 et NH_4^+) contiennent des particules qui peuvent être éliminées par absorption dans les gouttelettes de nuages ou par balayage sous les nuages. L'absorption par les gouttelettes de nuages peut ne pas conduire au dépôt, puisque les nuages s'évaporent souvent sans produire de précipitation; En moyenne, un dixième des nuages rencontrés par une « parcelle d'air » précipitent (Raes et al., 1993). Il est généralement admis que les processus d'élimination dans

les nuages sont plus efficaces que ceux intervenant en dessous des nuages (Asman, 1995 ; Tomey , 1997). Cela est dû à la grande surface des gouttelettes d'eau de pluie dans le nuage par rapport à la surface des gouttelettes situées en dessous de la base des nuages. Le dépôt humide est toujours faible à côté des sources ponctuelles pour deux raisons :

- A faible distance de la source, le panache de NH_3 n'atteint pas les nuages et le piégeage de NH_3 par les nuages ne se produit pas ;
- La majeure partie du NH_3 n'a pas encore réagi avec les composés acides (H_2SO_4 dans les aérosols ou les gaz HNO_3 et HCl) à proximité de la source et, pour cette raison, la plupart du NH_x sera sous la forme de NH_3 .

Différentes études ont démontré à partir de résultats expérimentaux que le dépôt humide de NH_3 est corrélé avec la densité d'émission sur des grandes échelles, de l'ordre de 20 à 100 km (Asman et van Jaarsveld, 1992 ; Park et Lee 2002 ; Aneja et al., 2003). A côté des sources (0.5 à 1 km), le dépôt humide de NH_3 est beaucoup plus faible que le dépôt sec. Cela peut être expliqué par le fait que le panache n'a pas été mélangé à cette distance et que la concentration en NH_3 au niveau du sol reste relativement élevée. Le dépôt humide va être négligé pour la suite du travail de thèse.

II.1.6. Réactions chimiques dans l'atmosphère

Le NH_3 atmosphérique réagit principalement avec les acides, les réactions photochimiques restant très faibles (Loubet et al., 2009). La vitesse de réaction du NH_3 avec les acides dépend de la concentration des espèces acides présentes dans l'atmosphère, cette vitesse présente des variations temporelles et dépend également de la hauteur au-dessus du sol. En Europe, les acides sont généralement sous forme de SO_2 et de NO_x . Comme les émissions de NH_3 se produisent au niveau du sol ou à proximité, la fraction d'acide qui réagit avec le NH_3 diminue avec la hauteur (Erisman et al., 1988). Asman et van Jaarsveld (1992) et van Jaarsveld et al. (2000) ont montré que la vitesse de réaction est si faible qu'on peut supposer que le NH_3 émis réagit peu avec les acides (essentiellement SO_2) jusqu'à quelques kilomètres des sources (~ 10 km). En revanche, à des distances plus grandes, les réactions doivent être prises en compte. La chimie dans l'atmosphère va être négligée pour la suite de nos travaux.

II.2. Modélisation de l'ammoniac à l'échelle régionale

De nombreux modèles de transport et de dépôt par voie atmosphérique sont utilisés dans la recherche et comme supports à l'action publique pour calculer les différents flux d'ammoniac

atmosphérique et ainsi évaluer les problèmes environnementaux liés à l'émission et au dépôt d'ammoniac. A l'échelle régionale, les modèles utilisés peuvent être classés en trois types :

- Les modèles eulériens pour les simulations à l'échelle européenne : EMEP (Sandnes, 1993 ; Simpson, 2003), CHIMERE (Vautard et al., 2001 ; Schmidt et al., 2001 ; Bessagnet et al., 2009 ; Menut et al., 2014), MATCH (Persson et al., 2004), LOTOS-EUROS (Schaap et al., 2008), EMEP4UK (Vieno et al., 2005) ;
- Les modèles lagrangiens pour les simulations à l'échelle nationale : FRAME (Singles et al., 1998), HARM (Metcalf et al., 1995), TREND (Asman et van Jaarsveld, 1992) ;
- Les modèles imbriqués : DAMOS (Geels et al., 2012) qui couple un modèle eulérien DEHM (Christensen, 1997) avec un modèle gaussien OML-DEP (Operationelle Meteorologiske Luftkvalitetsmodeller ; Sommer et al., 2009).

Les différents modèles utilisés n'ont pas été conçus pour les mêmes objectifs et n'ont donc pas les mêmes formalismes et hypothèses de calcul. Les modèles FRAME et DAMOS ont été construits pour décrire les concentrations et les dépôts avec une résolution spatiale élevée, alors que les autres modèles ont été initialement conçus pour décrire le transport de la pollution à grande distance en général. Les différences principales entre les modèles régionaux peuvent être décrites selon trois axes, comme cela ressort des exercices d'intercomparaison (e.g. EURODELTA, Bessagnet et al., 2016) :

- La représentation du transport advectif (par un schéma d'advection) et de la turbulence verticale ; les différences de traitement de l'advection et du mélange peuvent entraîner des différences dans la dispersion des polluants ;
- La chimie en phase gazeuse et la physico-chimie des transferts entre phases gazeuse et particulaire ;
- Le calcul des dépôts sec et humide par l'utilisation des schémas différents ou aussi par des estimations très différentes de quelques paramètres de dépôt (hauteur de la couche de mélange, coefficient de diffusivité...).

Il est important de mentionner que grâce à l'amélioration des moyens de calcul, les modèles lagrangiens utilisés principalement dans les années 90 à cause de leur faible temps de calcul ont été remplacés progressivement par les modèles eulériens à partir des années 2000.

Les modèles eulériens des flux d'ammoniac à une échelle spatiale large (~ 1000 km) sont aussi caractérisés par une résolution verticale relativement faible, et notamment la résolution de la première couche au-dessus de la surface (épaisseur de 25 à 100 m ; van Pul et al., 2009).

Les émissions proches de la surface sont alors immédiatement diluées dans cette couche, ce qui tend à conduire à une sous-estimation des concentrations de surface et donc des dépôts secs, en particulier à proximité des sources, alors que les modèles avec une meilleure résolution spatiale (horizontale et verticale) montrent un bon accord avec les mesures d'ammoniac (van Pul et al., 2009).

Les paysages agricoles, correspondant à des échelles de quelques km² à quelques dizaines de km², représentent une échelle pertinente pour la modélisation des flux d'ammoniac par voie atmosphérique. C'est en effet à cette échelle qu'il est possible d'agir sur l'hétérogénéité des sources d'ammoniac (e.g. bâtiments d'élevage, aires de stockage des effluents) en modifiant leur localisation géographique et leur position relative par rapport aux écosystèmes sensibles (e.g. forêts, zones humides, réserves de biodiversité), ainsi que l'intensité de ces sources. Les modèles de chimie-transport (CTM, chemical-transport models) (Kukkonen et al., 2012), lorsqu'ils sont utilisés à des résolutions spatiales de plus en plus grandes, peuvent sortir du domaine de validité de leurs hypothèses et conduire à des sous-estimations ou des surestimations des flux simulés, notamment les dépôts de NH₃. La résolution spatiale des modèles régionaux est limitée par différents facteurs : la résolution des données d'entrée (en particulier les conditions météorologiques, les lieux et intensités des émissions, les occupations des sols), les ressources informatiques (temps de calcul) et la résolution pour laquelle les différents paramètres sont calculés.

La grande différence entre les simulations et les mesures pour les modèles à l'échelle régionale est due principalement à la résolution spatiale des modèles ainsi qu'à la paramétrisation des processus au niveau de la surface. Cette large échelle spatiale peut engendrer des comparaisons non objectives entre les simulations et les stations de mesures, qui ne sont représentatives que de sites ponctuels et ne représentent pas l'ensemble du domaine de simulation. Cette grande variabilité spatiale des mesures pour l'ammoniac ne peut évidemment pas être capturée par les modèles eulériens avec une résolution spatiale de 50 km x 50 km¹.

Le modèle EMEP (European Monitoring and Evaluation Program ; Simpson et al., 2003 ; <http://www.emep.int>) est utilisé généralement pour des résolutions de 50 x 50 km² et peut aussi calculer raisonnablement des flux de NH₃ jusqu'à une échelle de 5 x 5 km², sachant qu'il existe une limitation générale pour la modélisation eulérienne de l'ordre de 1 x 1 km² (van Pul

¹ Résolution typique dans la littérature des deux dernières décennies ; aujourd'hui la résolution typique des modèles à l'échelle de l'Europe est davantage de 10 km à ¼ de degré.

et al., 2009), due à la non prise en compte de la turbulence dans les dimensions horizontales. Même avec une grande résolution spatiale, les modèles eulériens ne parviennent pas à résoudre tous les processus locaux (à côté des sources), ce qui aboutit à une sous-estimation des concentrations à proximité des sources ponctuelles. L'augmentation de la résolution des modèles est donc souhaitable et même nécessaire, mais elle implique de disposer d'une plus grande quantité de données sur les facteurs d'entrée, qui dépendent aussi du domaine d'application et la finalité d'utilisation des modèles (pollution et santé humaine, projections et scénarios,...). Par exemple, le modèle EMEP4UK (Vieno et al., 2009) est une version d'EMEP avec une résolution spatiale plus grande qui a permis d'améliorer nettement la capacité du modèle EMEP à prédire les flux de NH_3 à l'échelle de la Grande Bretagne, à partir de la description des processus de dépôt dans des mailles de $5 \times 5 \text{ km}^2$. D'autres modèles ont aussi été utilisés avec des résolutions plus grandes, comme le modèle CHIMERE (Menut et al., 2014) où la résolution spatiale a été augmentée de $100 \times 100 \text{ km}^2$ à $10 \text{ km} \times 10 \text{ km}^2$ pour des simulations à l'échelle d'un domaine européen (Terrenoire et al., 2015). Toutefois, ces modèles ne permettent pas d'utiliser des résolutions spatiales supérieures à $1 \times 1 \text{ km}^2$, voire $5 \times 5 \text{ km}^2$, et donc de représenter la variabilité des dépôts de NH_3 dans des paysages hétérogènes du point de vue des flux d' NH_3 (e.g. régions d'élevage ou de polyculture-élevage). Dans ces derniers cas, les modèles permettant d'utiliser des résolutions plus grandes (de quelques dizaines à quelques centaines de mètres) peuvent s'avérer plus pertinents.

II.3. Considérations de modélisation de la dispersion de NH_3 sur des courtes distances

Les résultats de simulations obtenus aux échelles nationales et régionales ne permettent pas de proposer des mesures et des stratégies adaptées à des problématiques locales de protection des écosystèmes sensibles aux dépôts de NH_3 , notamment en raison de la forte variabilité spatiale des émissions de NH_3 , de la diminution rapide de la concentration atmosphérique en NH_3 en fonction de la distance aux sources, ou encore de la dépendance des dépôts aux caractéristiques de surface. Pour une meilleure représentation de cette variabilité spatiale, il est nécessaire d'utiliser des approches à des échelles plus fines, adaptées aux zones d'émissions (hot-spots) qui sont généralement les zones où l'impact environnemental des émissions de NH_3 est le plus important. Une représentation spatiale fine des paramètres, des données d'entrée et des processus est nécessaire pour quantifier les différents flux de NH_3 à proximité des sources. Les propriétés de la surface (végétation, sol, eau) très proches des « hot-spots » déterminent le dépôt sec local. Ce dépôt influence ainsi la fraction restante dans l'atmosphère pour le transport à longue distance et peut varier entre 10 et 60% (Loubet

et al., 2001, Cellier et al., 2009). Différents modèles ont été utilisés pour calculer les différents flux de NH_3 à l'échelle locale comme le modèle ADMS (Carruthers et al., 1994), ainsi que le modèle AERMOD (Cimorelli et al., 2002) qui est un modèle de qualité de l'air développé par l'EPA (US Environmental Protection Agency) et utilisé aux Etats-Unis. Ces modèles de dispersion utilisent essentiellement les équations gaussiennes pour le calcul du panache en tenant compte des profils verticaux, des paramètres de la couche limite et des fonctions continues de stabilité. D'autres modèles ont été développés et sont utilisés dans différents pays : le modèle OML-DEP au Danemark (Sommer et al., 2009), le modèle OPS-ST aux Pays-Bas (van Jaarsveld, 2004 ; van Pul et al., 2008 ; Sauter et al., 2015), le modèle lagrangien AUSTAL2000 en Allemagne (Bahmann et Schmonsees, 2004), le modèle de dispersion et de dépôt LADD au Royaume-Uni (Hill, 1998 ; Dragosits et al., 2002 ; Theobald et al., 2004). La modélisation de la dispersion atmosphérique à l'échelle locale utilise des informations sur les émissions, les types de source, les caractéristiques de la surface du domaine et les conditions météorologiques pour prévoir les concentrations atmosphériques et les flux d'une espèce atmosphérique (gaz ou particule) dans des zones proches des sources. Pour l'utilisation de modèles de dispersion des émissions de NH_3 provenant de sources agricoles, les considérations détaillées dans les sections suivantes doivent être prises en compte.

II.3.1. Taille du domaine et processus inclus

L'évaluation de la modélisation des impacts de la dispersion d'une source de NH_3 sur des sites sensibles spécifiques considère généralement une distance de quelques kilomètres entre la source et le récepteur. La dispersion turbulente et les processus de dépôt sec font baisser rapidement les concentrations du panache dans les quelques premières centaines de mètres à premiers kilomètres, réduisant le potentiel des impacts environnementaux à plus grande distance. Les réactions chimiques de NH_3 sont suffisamment lentes pour que la transformation chimique soit négligeable au cours de cette dispersion à « courte distance ». De plus, à proximité des sources, les concentrations atmosphériques de NH_3 sont nettement plus élevées que celles des acides (voir section VI pour une discussion plus approfondie), si bien que seulement une petite fraction du NH_3 est transférée dans la phase particulaire. Ces réactions chimiques peuvent donc être ignorées (Asman et al., 1992 ; Loubet et al., 2009). Les dépôts humides sont également faibles lorsqu'on s'intéresse à la dispersion à courte distance, le panache n'ayant alors pas atteint une altitude suffisante pour être piégé dans les nuages. De plus, la probabilité d'une pluie pendant la courte période de dispersion est très faible (Loubet

et al., 2009). Le dépôt sec prédomine pendant la dispersion à courte distance puisque le panache est proche de la surface, et le processus est continu.

Pour ces raisons, la modélisation de la dispersion à courte distance de NH_3 ignore généralement les conversions chimiques et les dépôts humides, mais inclut les processus de dépôt sec. Toutefois, si une évaluation du niveau critique ou de dépassement de la charge critique est nécessaire, il faut ajouter aux estimations des concentrations ou des dépôts secs par le modèle à courte distance, une estimation du niveau de fond de la concentration en NH_3 ou des dépôts de NH_3 (humides et secs) provenant de sources lointaines. Ces estimations de fond peuvent être obtenues à partir de modèles nationaux ou régionaux ou de mesures sur le terrain.

II.3.2. Taux d'émissions de NH_3

Le taux d'émissions de NH_3 par les sources agricoles dépend des caractéristiques de la source (e.g. types et densités d'animaux, gestion de l'élevage, conception des bâtiments d'élevage, types de stockage des effluents) et des conditions environnementales (e.g. vitesse du vent, température de l'air, humidité relative, rayonnement solaire). L'augmentation de la température à la surface du sol entraîne une augmentation de la température de l'engrais minéral ou organique, ce qui favorise sa volatilisation (Brunke et al., 1988 ; Sommer et al., 1991 ; Moal et al., 1995 ; Rohde et Johansson, 1996 ; Braschkat et al., 1997 ; Sommer et al., 1997 ; Sommer et al., 2003). Cela peut entraîner des dynamiques d'émission complexes avec des cycles à la fois diurnes et saisonniers. Les études d'évaluation des impacts de NH_3 à partir de modèles ont rarement accès à des données d'émission détaillées, et doivent compter sur des facteurs d'émission qui estiment le taux d'émission en fonction de caractéristiques globales de la source (e.g. type d'animal, type de bâtiments d'élevage, zone de stockage des effluents, apport d'engrais). En Europe, les facteurs d'émission sont généralement pris à partir des références utilisées par les organismes (e.g. EMEP/EEA air pollutant emission inventory guidebook, 2016) qui réalisent les inventaires des émissions de polluants atmosphériques à l'échelle continentale, sauf si des valeurs fiables propres à chaque pays sont disponibles.

Dans l'approche des facteurs d'émission, le taux d'émission est souvent considéré comme constant dans le temps, ce qui n'est pas réaliste, bien que ces facteurs d'émission puissent être modulés par des cycles temporels comme dans les modèles gaussiens (e.g. OPS-ST ; van Jaarsveld, 2004 ; Sauter et al., 2015) et de chimie-transport (e.g. CHIMERE ; Menut et al., 2014) ou comme dans les modèles d'émissions (e.g. Gyldenkaerne et al., 2005). Etant donné que les niveaux et les charges critiques se réfèrent à des valeurs de concentrations et de taux

de dépôt à long terme (> 1 an), les évaluations d'impact utilisent également des estimations des concentrations moyennes et des taux de dépôt sur des périodes de temps similaires. Au cours de ces périodes, les variations des prédictions journalières ou saisonnières des concentrations et des taux de dépôt, dues à la variabilité des émissions, peuvent s'équilibrer et donner à long terme des concentrations et des taux de dépôt similaires à partir de taux d'émission constants.

II.3.3. Caractéristiques de la source

Les sources agricoles d'ammoniac sont généralement représentées dans les modèles de dispersion comme des sources en forme de point, de ligne, de surface ou de volume (Tab. II.2). De nombreux modèles permettent d'attribuer des vitesses d'émission et des températures de sortie (source point ou ligne) des sources de l'ammoniac et de simuler l'inertie et la flottabilité de l'ammoniac émis dans le cas où les sources sont des cheminées ou des systèmes de ventilation mécanique. Les effets de la nature ou de la structure de la source ou encore les effets turbulents dus aux obstacles à proximité (e.g. bâtiments) sont également pris en compte dans certains modèles.

Tableau II.2 : Types de sources d'ammoniac.

Type de sources	Exemples
Point	Points de ventilation mécanique ou naturelle des petites surfaces des bâtiments d'élevage
Ligne	Ventilation linéaire dans les bâtiments d'élevage à ventilation naturelle ou ligne de points de ventilation rapprochés
Surface	Stockage de fumier ou de lisier, fertilisation au champ
Volume	Bâtiment d'élevage ventilé naturellement

II.3.4. Caractéristiques de la surface

La surface sur laquelle la dispersion d'ammoniac s'effectue affecte les concentrations et les taux de dépôt sous le vent d'une source et peut varier sous l'influence de deux processus. Le premier est la turbulence générée par le frottement de l'air en mouvement sur la surface. Ce processus complexe est fonction de la taille et de la distribution spatiale des caractéristiques de surface des plantes, des arbres ou des bâtiments, ou de la stabilité atmosphérique. La turbulence générée peut être approximée en première approche à partir d'une estimation de la longueur de rugosité aérodynamique (z_0) de la surface. Par exemple, une forêt aura une longueur de rugosité plus grande qu'une prairie et va donc générer davantage de turbulence. Le second processus est le processus de dépôt sec, dans la mesure où une augmentation des

taux de dépôt sec à proximité des sources se traduira par une diminution des concentrations et des dépôts secs plus loin en aval.

II.3.5. Les conditions météorologiques

La dispersion à courte distance des polluants provenant des sources proches du sol telles que les sources agricoles de NH_3 a lieu principalement au sein de la couche limite atmosphérique (CLA). La CLA est la partie de l'atmosphère directement influencée par la surface et a généralement une épaisseur de 100 m à 3 km (Stull, 1988). A l'interface avec la surface, la CLA comprend une sous-couche de rugosité qui s'étend jusqu'à environ 2-3 fois la hauteur des éléments de surface (e.g. plantes, arbres). Cette sous-couche de rugosité peut atteindre même $1/10^{\text{ème}}$ de la hauteur totale de la couche limite atmosphérique.

Dans la CLA, la dispersion atmosphérique dépend principalement de la vitesse du vent, et de la turbulence atmosphérique. L'ammoniac émis par une source est transporté (ou advecté) par le vent horizontal à partir de la source dans la direction des vents dominants. Pendant le processus d'advection, le panache de l'ammoniac est mélangé à l'air environnant par le mouvement turbulent. A la composante mécanique de la turbulence provoquée par l'interaction entre l'écoulement d'air et la rugosité de surface, s'ajoute le cas échéant une composante convective qui est le résultat d'instabilités thermiques telles que celles causées par l'échauffement et la montée de l'air près du sol.

La CLA est généralement à sa plus petite hauteur la nuit quand il y a peu ou pas de mouvement de convection, en raison de la stabilité thermique de l'atmosphère provoquée par le refroidissement du sol qui inhibe les mouvements verticaux. Le chauffage de la surface par le soleil le matin déclenche le processus de convection, ce qui rend l'atmosphère plus instable, augmentant les mouvements verticaux, et par conséquent la CLA s'épaissit. De nombreux modèles de dispersion caractérisent ces changements dans la stabilité atmosphérique en utilisant la théorie de similitude de Monin-Obukhov (MOST). Celle-ci propose que les profils verticaux de la vitesse du vent et de la température dans une couche de surface turbulente stationnaire ($\sim 1/10$ CLA) soient décrits avec des fonctions universelles (φ) qui dépendent de paramètres d'échelle adimensionnés (Monin et Obukhov, 1954). Les équations de profil sont :

$$\frac{kz}{u_*} \frac{du}{dz} = \varphi_m \left(\frac{z}{L} \right)$$

$$\frac{kz}{T_*} \frac{dT}{dz} = \varphi_h \left(\frac{z}{L} \right)$$

avec k la constante de Von Kármán, z est la hauteur au-dessus du sol, u_* est la vitesse de frottement, u la vitesse du vent horizontal, T la température de l'air, φ_m et φ_h les fonctions universelles pour la dynamique et la chaleur, T_* un paramètre d'échelle de la température et L la longueur de Monin-Obukhov :

$$L = - \frac{T \rho_a c_p u_*^3}{g H_0 K}$$

avec g l'accélération de la pesanteur, c_p la chaleur spécifique de l'air, ρ_a la densité de l'air, H_0 le flux de chaleur sensible à la surface. La longueur de Monin-Obukhov L (m) établit une relation entre les processus dynamiques et de flottabilité. Myrup et Ranzieri (1976) ont établi une relation entre la longueur de Monin-Obukhov et la longueur de rugosité pour différentes classes dites de Pasquill (1974). Cette longueur de rugosité ainsi que celle de Monin-Obukhov agissent principalement sur la turbulence, donc sur le mélange et les échanges à proximité des sources, et par conséquent sur les proportions qui vont se déposer localement et celles qui vont être transportées d'une zone plus concentrée vers une zone moins concentrée.

II.3.6. Localisation des récepteurs

Une évaluation de l'impact des émissions de NH_3 nécessite la définition d'un ou plusieurs récepteurs où les impacts sont évalués. C'est typiquement l'emplacement du point le plus proche de la source. Une grille de récepteurs peut également être utilisée pour évaluer l'impact moyen sur le domaine étudié ou la proportion des surfaces où les charges critiques sont dépassées. Puisque les concentrations de NH_3 varient généralement avec la hauteur, il est important de spécifier la hauteur du récepteur lors de l'évaluation du dépassement de charge critique. Il n'y a pas de hauteur standard pour la détermination du dépassement du charge critique mais une hauteur de 1.5 m au-dessus du sol est la hauteur habituellement utilisée pour déterminer les charges critiques pour la végétation basse (Cape et al., 2009).

II.4. Le concept de charge et de seuil critiques

La base de l'approche des charges et des seuils critiques est l'hypothèse d'un niveau de pollution qui dépasserait une charge (dépôt) ou un seuil (concentration) au-dessus duquel des effets nocifs peuvent se produire. En dessous de ce seuil, aucun effet nocif ne serait visible. Lorsque la pollution dépasse les charges/seuils critiques, des stratégies de réduction des émissions doivent être mises en œuvre pour réduire ou supprimer les dépassements et protéger

les zones sensibles. L'idée de définir un niveau au-dessus duquel des effets nocifs peuvent se produire n'est pas nouvelle. En effet, les premières références d'études qui s'intéressaient à l'utilisation excessive d'engrais et de ses conséquences néfastes remonte au XVIII^{ème} siècle (Anon, 1756). À ce moment, l'azote sous forme de gaz n'a pas encore été découvert et l'élément N ne sera nommé que soixante ans plus tard. Beaucoup plus tard, dans les années 1970, Schindler et Fee (1974) ont identifié un seuil critique d'eutrophisation pour le phosphore dans les lacs canadiens. Les toxicologues ont longtemps utilisé une approche similaire pour la définition des niveaux acceptables pour des produits chimiques qui agissent sur les organismes vivants (Tab. II.3). Les objectifs et les lignes directrices des conventions sur la qualité de l'air sont souvent basés sur des données toxicologiques (e.g. OMS, Organisation Mondiale de la Santé, 1987 ; WHO, 1987). Brydges (1991) a discuté l'utilisation des objectifs classiques de la qualité de l'air et leurs différences avec les charges critiques.

L'acidification des sols est un très bon exemple d'un effet environnemental qui peut être appréhendé par l'approche des charges critiques. L'acidification de fond due au CO₂ atmosphérique (Johnston et al., 1986) peut être fortement aggravée par les activités humaines (e.g. engrais, pollution atmosphérique). La chimie de l'acidification conduit à des changements chimiques rapides à tel point que la capacité tampon des sols est épuisée, fournissant une indication claire du dépassement. L'acidification rend les sols plus vulnérables à l'érosion, et de nombreux polluants y sont plus actifs, car davantage bio-disponibles (Barak et al., 1997).

Tableau II.3 : Différences entre les objectifs environnementaux classiques et le calcul des charges critiques. [Brydges, 1991]

Objectifs classiques	Charges critiques
Les effets sont généralement connus au niveau de l'organisme	Les effets sont connus au niveau de l'écosystème
Les objectifs sont établis sur la base des études en laboratoire	Les études sur des écosystèmes sont nécessaires pour établir des valeurs
Les effets physiologiques et le taux de létalité sont les critères utilisés dans la définition des objectifs	Les effets écosystémiques résultent de mécanismes directs (effet chimique) ou de mécanismes indirects (modifications de la chaîne alimentaire)
Les composés sont considérés comme non vitaux	Les éléments ou composés sont des éléments essentiels pour la vie
Les objectifs environnementaux sont fixés bien en dessous des seuils connus pour fournir une certaine marge de sécurité	Les objectifs sont fixés en fonction des seuils
Aucun des effets bénéfiques n'est susceptible de se produire dans l'environnement	Des changements peuvent se produire et être jugés utiles (comme l'augmentation de la

	productivité), bien que ces effets puissent être très subjectifs
Les problèmes environnementaux suite aux dépassements sont habituellement observés pour un court laps de temps	Les problèmes environnementaux suite aux dépassements peuvent se produire sur une longue période (années-décennies) et peuvent être cumulatifs

Bien que la répartition de la charge critique d'acidité soit difficile à justifier scientifiquement, elle a été jugée nécessaire pour estimer les réductions des émissions de composés soufrés (S). Une telle approche est basée sur la comparaison directe des cartes de charges critiques avec des cartes de dépôt de soufre. Cela a été fait en utilisant des estimations des dépôts de soufre à l'aide du modèle de transport à longue distance EMEP (Tuovinen et al., 1994). Pour l'azote, une forte variation de la sensibilité aux dépôts d'ammoniac a été observée entre les différents écosystèmes naturels et semi-naturels (Bobbink et al., 1988, 2010) et notamment selon les caractéristiques des sols. La gravité des impacts des dépôts d'ammoniac dépend d'un certain nombre de facteurs, dont les plus importants sont :

- La durée et la quantité totale des apports atmosphériques ;
- La forme physique de l'azote dans l'atmosphère ;
- La sensibilité intrinsèque des espèces animales et végétales présentes ;
- Les conditions abiotiques, y compris le climat ;
- La gestion des sols ainsi que leurs utilisations actuelles et antérieures ;
- La capacité des sols à neutraliser les acides ;
- La disponibilité des éléments nutritifs du sol.

En conséquence, les différents écosystèmes montrent une grande variabilité de la sensibilité aux dépôts atmosphériques d'ammoniac (Bobbink et al., 2010). Même pour un écosystème donné, les valeurs seuils peuvent varier, mais il est possible de généraliser certains types d'impacts (Tab. II.4).

A un stade précoce dans le développement du concept des charges critiques, il a été reconnu qu'il y avait des avantages considérables à établir une cartographie des charges critiques (Gregor et Bull, 1988). La comparaison des données cartographiées de pollution donne une image immédiate des zones où les valeurs critiques sont dépassées. Il en résulte une simple soustraction à une estimation quantitative de l'ampleur de cet excès, ce qui donne la valeur de dépassement. Ceci est une étape très importante pour établir des stratégies de réduction et de contrôle des sources de pollution. Les charges de dépôt sont liées à des émissions de polluants ailleurs, ce qui donne la possibilité d'un contrôle ou d'une réduction des émissions pour prévenir les dépassements de niveau critique.

Tableau II.4 : Exemple de charges critiques et symptômes de dépassement de seuil [Bobbink et al., 2010]

Ecosystème	Charge critique (kg N / ha / an)	Symptômes de dépassement de seuil
Forêts de feuillus et de conifères	15-20	Modification du ratios N/macro nutriments, une diminution de P, K, Mg et l'augmentation de la concentration de N dans les tissus foliaires
Forêts tempérées	15-20	Augmentation de la sensibilité aux agents pathogènes et ravageurs
Toundra	5-10	Variations de la biomasse, des effets physiologiques, diminution des lichens
Landes sèches	10-20	Transformation des landes en pâturage, diminution des lichens
Prairies sur dune siliceuse	10-20	Diminution des lichens, augmentation de la biomasse, augmentation de la vitesse de succession
Prairies alpines et subalpines	10-15	Augmentation des graminoides nitrophiles, changement de la biodiversité
Lacs d'eau douce	5-10	Effet négatif sur l'espèce des isoètes
Bassins d'eau stagnante	10-20	Diminution des lichens, augmentation de la biomasse, augmentation de la vitesse de succession

Une approche basée sur les effets est intéressante pour le décideur, en fournissant un moyen pour l'élaboration des politiques de réduction des émissions d'une manière objective. Cette approche peut également indiquer le niveau des dégâts environnementaux résultant de l'excès de pollution ainsi que les avantages environnementaux, qui peuvent être obtenus dans les années à venir après la mise en œuvre des politiques de réduction des émissions. L'utilisation du concept de charges critiques dans une telle politique est également considérée comme compatible avec la viabilité de l'environnement (Murlis, 1995). Cependant, elle peut être considérée comme limitante pour les options politiques et économiques tout en attirant l'attention sur les problèmes environnementaux d'une manière relativement simpliste. Bien qu'un certain nombre de pays aient adopté le concept de charges critiques pour déterminer les politiques nationales de réduction des émissions, ce sont les accords internationaux, en particulier ceux en Europe, qui ont obtenu la plus forte publicité en raison de leurs conséquences considérables sur l'environnement. Néanmoins, le travail effectué aux niveaux local et national fournit les bases pour établir une approche au niveau européen.

En Europe, les approches fondées sur les charges critiques ont joué un rôle majeur dans les discussions de l'Union Européenne, en vertu de la Convention sur la pollution atmosphérique

transfrontière (LRTAP, 1979). Elles ont été vues comme une partie importante de l'évolution des stratégies de lutte contre les effets de la pollution. Une carte européenne des charges critiques a été développée à partir de données européennes et, pour les états membres, à partir de données nationales plus détaillées. Par exemple, les méthodes utilisées pour le calcul des charges critiques pour l'acidité ont été recommandées lors d'ateliers de l'Union Européenne et approuvées par un groupe de travail CEE-ONU sur la cartographie (UBA, 1993). Les cartes européennes pour l'acidité ont été rassemblées par un centre de coordination sur les effets (CCE, 1991; CCE, 1993). Pour des discussions sur le protocole concernant le soufre, il a été nécessaire de définir une carte de charges critiques spécifique pour le soufre (Hettelingh et al., 1991). Avec l'utilisation des modèles de transport à longue distance et la possibilité de les adapter à la simulation des émissions de chaque pays à travers l'Europe, il est possible de créer des cartes de dépassement de seuil, de définir des scénarios de dépôt pour toute combinaison des émissions nationales et de déterminer leurs effets pour le dépassement des charges critiques. Pour les délibérations de l'Union Européenne, tous ces facteurs (charges critiques, émissions, dépôts modélisés, réductions des coûts) ont été incorporés dans l'évaluation intégrée des modèles (Hordijk, 1995). Ceux-ci ont cherché à réduire les dépôts en appliquant des réductions des émissions dans les zones géographiques les plus efficaces et à moindre coût global. Pour calculer les dépassements, les cartes de charges critiques sont mieux définies pour les zones avec des tailles de mailles conformes à celles utilisées pour les cartes de sources de pollution, ceci afin de détecter toutes les sources ponctuelles. Toutefois, ces cartes sont généralement assez grossières. Une solution simple pour le calcul des dépassements de seuil serait de cartographier les charges critiques en utilisant le plus faible seuil critique pour tout le domaine d'étude, permettant ainsi d'identifier tous les écosystèmes sensibles. Mais cette approche est impossible à mettre en œuvre pour les domaines de grande taille, en raison notamment des temps de calcul qui seraient trop élevés. Il est donc difficile de détecter les zones de dépassement des seuils critiques dans des domaines très étendus, et donc d'évaluer correctement les zones sensibles à protéger. D'autres statistiques peuvent être utilisées telles que les moyennes ou les modalités qui fournissent des résumés utiles, mais elles ne permettent de protéger que la moitié des récepteurs seulement (Duan et al., 2014 ; Hettelingh et al., 2014).

II.5. Le problème de changement d'échelle dans la modélisation

II.5.1. Variabilité sous-maille et méthodes de changement d'échelle

L'échelle bien représentée d'un modèle ne peut pas être supérieure à celle des données d'entrée qui lui sont fournies, sans ajout d'informations supplémentaires. Ainsi, la description de l'occupation des sols et /ou de l'orographie, se présente en général sous la forme de données sous-maille dont la diminution de la résolution horizontale et/ou verticale lors de l'utilisation d'un modèle eulérien entraîne une perte d'information liée à la variabilité sous-maille. L'erreur de représentativité vient de la mauvaise représentation des processus à une échelle inférieure à celle de la maille, comme par exemple la non-prise en compte de la turbulence à l'échelle horizontale ou la traduction d'obstacles par une hauteur de rugosité moyenne. Cela a pour effet corollaire qu'une observation à une station donnée est seulement représentative d'une fraction de la maille dans laquelle elle se trouve. On peut également dire qu'elle n'est qu'une réalisation particulière d'une variable aléatoire qui peut être représentée par une densité de probabilité. D'une manière générale, les méthodes numériques basées sur la diminution de la taille des mailles sont toujours confrontées aux limites des modèles utilisés et généralement, les processus sous-maille restent mal représentés puisqu'il est difficile de descendre jusqu'à l'échelle à laquelle il est possible de décrire ce processus de manière explicite. Ainsi, les hypothèses utilisées dans les modèles ne sont pas valables pour toutes les échelles.

II.5.2. Différentes méthodes de changement d'échelle

Nous présentons ici plusieurs méthodes pour améliorer la capacité d'un modèle donné à prendre en compte explicitement ou à représenter de manière plus synthétique les processus mis en œuvre à des échelles inférieures à celle du modèle.

Le premier type de méthodes, appelées méthodes dynamiques, consiste à utiliser localement dans des zones à forte variabilité, un modèle décrivant les processus de manière plus explicite, soit en diminuant la taille des mailles du modèle eulérien, soit en le couplant avec un modèle fonctionnant à l'échelle locale.

Le deuxième type de méthodes, appelées méthodes de réduction d'échelle, consiste à utiliser des paramétrisations sous-maille. Ces méthodes sont moins coûteuses en temps de calcul que les méthodes précédentes. Elles sont généralement issues de simulations réalisées avec des modèles à petite échelle (LES, Large Eddy Simulation pour mieux simuler la turbulence, par exemple), très coûteux en temps de calcul, ou encore déterminées de manière empirique. Il

s'agit de modifier le modèle de façon à mieux représenter les effets sous-maille d'un processus donné, comme la turbulence ou la prise en compte des émissions. Il existe également des méthodes stochastiques qui consistent à représenter la variabilité sous-maille des concentrations et/ou d'un processus physique par une densité de probabilité. Une variante est de déterminer des relations statistiques entre les concentrations à l'échelle de la maille et les concentrations aux stations, pour tenir compte de l'erreur de représentativité spatiale commise par les modèles.

II.5.3. Méthodes dynamiques de changement d'échelle

II.5.3.1. Le nesting ou « maillage imbriqué » :

Pour mieux représenter les variations sous-maille et réduire le nombre de phénomènes mal représentés, l'approche la plus simple est d'augmenter la résolution d'un modèle. Le problème de cette approche est qu'elle est très coûteuse en temps de calcul. La technique la plus utilisée est l'utilisation de différents maillages imbriqués les uns dans les autres, avec des tailles de mailles de plus en plus fines lorsqu'on s'approche de la zone d'intérêt (Fig. II.3). L'imbrication des modèles peut être dans un seul sens (« one way nesting » dans lequel le grand domaine fournit les conditions aux limites du petit domaine) ou dans les deux sens (« two way nesting » avec une prise en compte des rétroactions du petit domaine vers le grand domaine).

Lors du nesting, les données issues du modèle à grande échelle sont soit interpolées, soit recalculées sur le nouveau maillage. Généralement les résultats sont meilleurs par rapport à un maillage plus grossier qui dilue les émissions sur toute la surface de la maille. Une diminution supplémentaire de la taille des mailles autour des sources a cependant des limites pour l'identification des emplacements des sources ponctuelles (Wang et al., 2004).

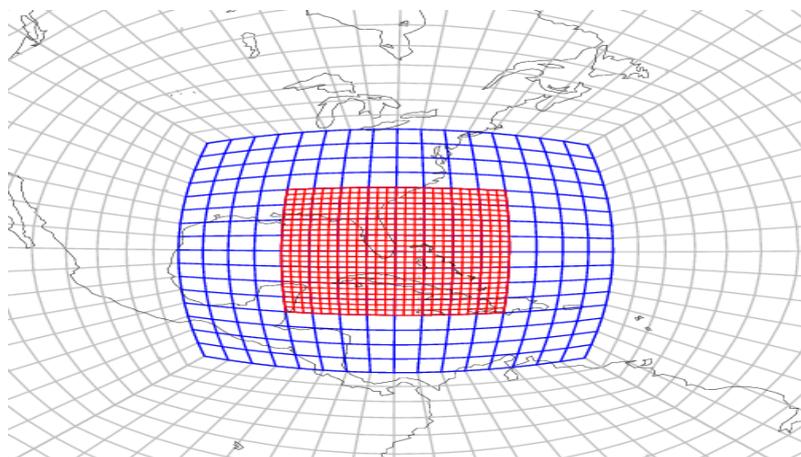


Figure II.3: Exemple de maillages imbriqués « nesting ».

II.5.3.2. Le maillage adaptatif

Le maillage adaptatif ou « gridding » est une technique qui permet de simuler des processus à une échelle spatiale grossière. En fonction des résultats obtenus, l'utilisateur peut identifier les zones nécessitant une résolution plus grande par un paramètre caractérisant le processus simulé. Des résolutions de plus en plus grandes sont ajoutées de manière récursive jusqu'à l'atteinte d'une résolution maximale ou jusqu'à ce que l'erreur locale des simulations soit inférieure à un niveau défini. Le maillage adaptatif est généralement moins coûteux en temps de calcul que l'utilisation d'un modèle plus fin parce que l'augmentation de la taille des mailles se fait seulement autour des zones à forte variabilité (Fig. II.4). Il peut être dynamique, c'est-à-dire que des variables telles que les caractéristiques des sources ou les conditions météorologiques peuvent évoluer dans le temps. Le résultat de ce maillage, comparé avec un maillage uniforme plus fin, donne presque les mêmes résultats mais avec un temps de calcul beaucoup plus faible. Pour cette méthode, il faut bien déterminer les critères permettant de déterminer les zones sur lesquelles le maillage doit être plus fin. Les critères sont déterminés en fonction de l'espèce chimique à modéliser (Constantinescu et al., 2008).

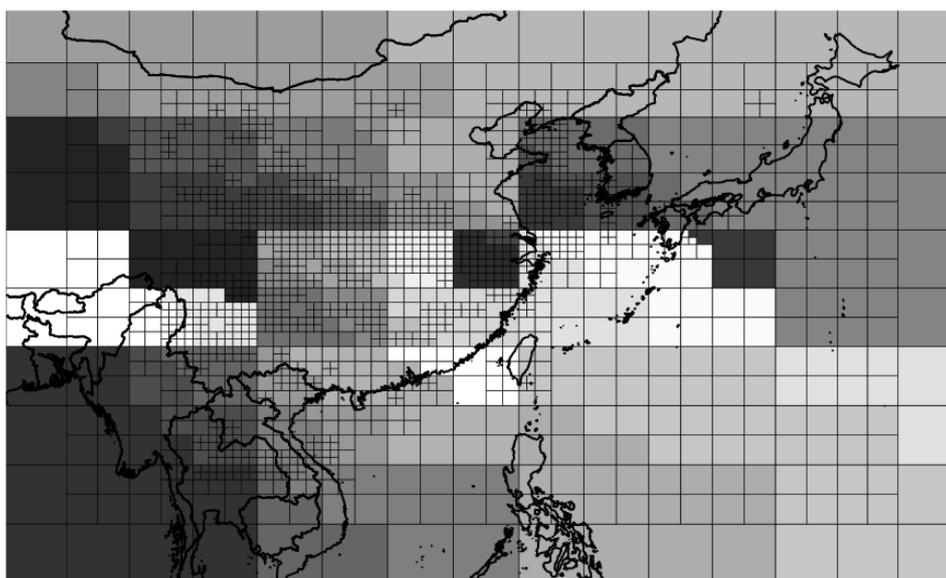


Figure II.4: Exemple de maillage adaptatif dans lequel quatre classes de maillage sont utilisées.
[Constantinescu et al., 2008]

II.5.3.3. Les modèles de panache sous-maille

Le couplage entre deux modèles consiste à utiliser les résultats de simulation ou les conditions aux limites d'un modèle comme données d'entrée pour un autre modèle. Pour un couplage de type panache sous-maille, il s'agit d'un couplage entre un modèle local de type gaussien autour des sources ponctuelles (panache ou bouffées) et un modèle eulérien. Lorsque le

panache n'est plus modélisé correctement par le modèle gaussien ou que l'erreur commise par le modèle eulérien est suffisamment faible, le panache est transféré dans le modèle eulérien. Le modèle eulérien est utilisé pour estimer les espèces de fond alors que le modèle gaussien est utilisé pour interpoler *a posteriori* les résultats en donnant une meilleure répartition des concentrations près des sources (Isakov et al., 2009). Comme le modèle gaussien traite les composés chimiques pendant une durée de temps relativement courte après leurs émissions (de l'ordre de l'heure), les processus chimiques peuvent être négligés. Ce type de modèle est généralement plus adapté aux sources ponctuelles. Le temps de calcul peut être très important si de nombreuses sources réactives sont traitées en sous-maille.

D'autres couplages sont possibles, en utilisant différents types de modèles. Ainsi, Soulhac et al. (2003) proposent une imbrication (« one-way nesting ») de plusieurs modèles :

- Un modèle eulérien de chimie-transport pour l'échelle régionale (domaine de 208 km x 208 km) ;
- Un modèle eulérien de CFD (Computational Fluid Dynamics) à l'échelle urbaine (domaine de 32 km x 32 km) ;
- Un modèle de réseau routier à l'échelle locale (domaine de 500 m x 500 m) ;
- Un modèle gaussien pour les sources ponctuelles.

Une telle approche permet une amélioration significative des performances des récepteurs situés à proximité des sources. Cependant, elle nécessite de disposer de données d'entrée détaillées pour les émissions et de la topographie à l'échelle locale.

II.5.3.4. **Prise en compte explicite de la variabilité sous-maille**

La modification des équations et des paramètres utilisés dans les équations d'advection-diffusion permet de mieux représenter l'effet de certains processus sous-maille. Les paramètres sont calculés à partir des modèles à petite échelle ou des relations empiriques basées sur des observations.

Par exemple, pour les émissions par des sources ponctuelles, l'avantage de cette méthode est d'éviter de représenter explicitement les sources ponctuelles avec un modèle de panache sous-maille, et d'utiliser une émission équivalente corrigée pour représenter la perturbation globale due à la dilution plus lente du panache. Cette émission serait immédiatement diluée dans la maille eulérienne, mais elle donnerait des résultats proches de ceux obtenus avec le modèle de panache sous-maille (Esler, 2003).

Les émissions pour l'espèce modélisée s'écrivent alors :

$$E_i = \langle E_i \rangle + E'_i$$

Il s'agit de modéliser l'apport des fluctuations d'émissions E'_i sur les fluctuations de concentration. Galmarini et al. (2008) font l'hypothèse que les émissions moyennes $\langle E_i \rangle$ contribuent à la concentration moyenne $\langle c_i \rangle$, en tant que terme source de l'équation d'advection-diffusion, et que les fluctuations des émissions sont un terme source des fluctuations des concentrations.

Un terme supplémentaire correspondant aux fluctuations du terme source, de la forme $2\langle c'_i E'_i \rangle$, doit être paramétré pour fermer l'équation. On remarque que l'hypothèse faite ici ne tient pas compte des non-linéarités et néglige l'apport des fluctuations d'émissions à des espèces secondaires *via* la chimie et la turbulence. La fermeture du terme de covariance concentration-émission peut s'écrire :

$$\langle c'_i E'_i \rangle = r \sigma_E \sigma_c = r (\langle E_i'^2 \rangle \langle c_i'^2 \rangle)^{1/2}$$

avec r un coefficient de corrélation qu'il convient de déterminer. Enfin, les fluctuations d'émission (et donc la moyenne et l'écart-type) sont définis en découpant une maille de surface A en N petites surfaces élémentaires a_k ayant chacune un taux d'émission E_k . On a alors une émission moyenne donnée par la moyenne des émissions surfaciques « élémentaires » :

$$\langle E \rangle = \frac{1}{A} \sum_{k=1}^N a_k E_k$$

et un écart-type donné par :

$$\sigma_E^2 = \frac{1}{A} \sum_{i=1}^N a_k (\langle E \rangle - E_k)^2$$

Cette modélisation revient à supposer que les concentrations dans une maille ont une distribution gaussienne autour de la moyenne. De plus, la détermination des paramètres de cette gaussienne suppose de disposer d'un inventaire suffisamment fin (Galmarini et al., 2008).

II.5.4. Méthodes statistiques de réduction d'échelle

II.5.4.1. Réduction de l'échelle statistique

C'est l'ensemble des méthodes qui permettent de faire le lien entre l'état d'une variable à une grande échelle, et l'état d'une autre variable représentant une échelle beaucoup plus petite. Il existe principalement deux types de méthodes utilisées à cette fin :

- Les méthodes de « nesting », consistant à utiliser un modèle de large échelle pour fournir les conditions aux limites d'un modèle à une échelle plus fine, appelées « dynamical downscaling » (voir section 5.3.2) ;
- Les méthodes statistiques, appelées « statistical downscaling » ou « empirical downscaling », ou encore ESD pour « empirical-statistical downscaling ».

Ces deux méthodes ont été comparées dans le contexte du climat et donnent des résultats globalement similaires, les méthodes statistiques ayant l'avantage d'un moindre coût de calcul (Murphy, 1999).

L'observation dans une maille est une réalisation particulière d'une variable aléatoire et diffère de la concentration donnée par le modèle à cause de l'erreur de représentativité. Cette approche n'est plus utilisée explicitement car on considère simplement les relations statistiques entre une variable à grande échelle, donnée par le modèle, et une variable à petite échelle, donnée par les observations au point de mesure. La variable à grande échelle peut être la concentration dans une maille, voire dans plusieurs mailles adjacentes, par exemple. La relation est calculée *via* des méthodes statistiques, de régression notamment, sur un temps suffisamment long pour représenter une erreur systématique attribuée à l'erreur de représentativité. L'avantage de cette technique est, d'une part, son faible coût de calcul car il s'agit d'un post-traitement, et d'autre part la prise en compte de l'ensemble de l'erreur de représentativité. Cependant, elle ne permet pas de distinguer l'apport de la variabilité des différents processus dans l'erreur de représentativité, ni de distinguer celle-ci par rapport à l'erreur modèle ou l'erreur dans les observations (Chai et al., 2007 ; Constantinescu et al., 2007).

Les méthodes statistiques de réduction d'échelle consistent à décrire une variable locale y (le « prédictant »), comme une fonction d'une ou plusieurs caractéristiques globales x_j (les P « Prédicteurs »). Cela peut s'écrire sous la forme générique $\hat{y} = f(x_1, \dots, x_P)$.

La fonction f est une relation empirique entre les variables, calibrée sur un ensemble de données d'observation (période d'apprentissage).

Le but de l'ESD « empirical-statistical downscaling » est de déterminer une relation statistique entre une variable locale et une variable globale. Une interprétation définit la notion d'« échelle bien représentée » comme étant l'échelle des phénomènes qui sont correctement simulés par un modèle donné. En définissant l'échelle minimale comme la distance entre deux centres de maille, l'échelle bien représentée est alors supérieure ou égale à N fois l'échelle minimale. Dans ce contexte, la variable locale est une variable dont l'échelle caractéristique est inférieure à cette distance, et l'ESD est alors définie comme l'ensemble des

techniques statistiques permettant de passer d'une échelle bien représentée à une échelle plus fine.

Plusieurs conditions sont indispensables à la bonne utilisation de l'ESD :

- Que la relation f entre prédicteurs et prédicteand soit stationnaire pour qu'elle puisse être calibrée sur le passé et utilisée en prédiction de façon pertinente ;
- Qu'il y ait une relation physique forte entre le ou les prédicteur(s) et le prédicteand ;
- Que le modèle représente correctement les variables à grande échelle utilisées comme prédicteurs.

Pour l'emploi de la méthode statistique, il faut s'assurer que les variables prédicteur(s) et prédicteand ont un lien physique entre elles, faute de quoi une relation statistique pourra être calculée mais n'aura aucun sens. La variable à grande échelle (prédicteur) est par exemple en climatologie la pression au niveau de la mer ou la circulation à l'échelle synoptique, et la variable locale (prédicteand) peut être les précipitations, le vent ou encore la température en une ou plusieurs stations. L'un des problèmes rencontrés dans l'application au climat est donc de choisir correctement les prédicteurs : en plus du lien physique avec le prédicteand, il faut que les prédicteurs « expliquent » une grande partie de la variable locale. De même, il faut que les prédicteurs soient pris sur un domaine spatial suffisamment grand pour contenir toute l'information nécessaire, sans englober des variables non corrélées à la variable locale.

Généralement, c'est ce qui est fait dans le domaine de la qualité de l'air : par exemple, les concentrations en ozone mesurées en une station donnée seront reconstruites à partir des concentrations fournies par le modèle à l'échelle de la maille contenant la station. Dans ce cas, le lien physique entre le(s) prédicteur(s) et le prédicteand est évident. Il reste en revanche la question du domaine spatial dans lequel la valeur du(des) prédicteur(s) doit être calculée : une seule maille ou différentes mailles autour d'une station, par exemple. Il peut alors être intéressant de calculer les corrélations entre les concentrations modélisées dans différentes mailles avec une station donnée pour avoir une idée de la taille représentative du domaine pour lequel les concentrations sont corrélées avec celles de la station. Une régression peut d'abord être effectuée entre les concentrations d'ozone mesurées et modélisées, puis le résidu est à son tour soumis à une régression avec des paramètres tels que le vent et les précipitations. Dans ce cas, le problème de la pertinence physique du choix des prédicteurs se pose également (Guillas et al., 2008).

II.5.4.2. Réduction d'échelle et assimilation

L'application d'une méthode statistique sur une seule maille d'un modèle (i.e. l'échelle minimale) pour reconstituer le comportement à une station à l'intérieur de cette maille n'est

pas considérée comme une réduction d'échelle, mais plutôt un ajustement ou de l'assimilation de données. En effet, les méthodes statistiques de réduction d'échelle peuvent être considérées comme une façon parmi d'autres de corriger les sorties d'un modèle en fonction des observations. En assimilation également, les données simulées sont corrigées par apport d'information fournie par les observations. En ESD, on utilise une méthode statistique pour obtenir une relation reflétant le lien systématique entre les deux variables. On suppose que la relation statistique obtenue reflètera alors principalement l'erreur de représentativité, donc liée au changement d'échelle, ce qui justifie alors bien l'utilisation du terme « ESD ». De plus, un intérêt supplémentaire de l'ESD est de prendre en compte la variabilité locale qui n'est jamais déterminée complètement par les variables à plus grande échelle (Benestad et al., 2008).

II.5.5. Considérations conclusives sur les méthodes de changement d'échelles

Une bonne représentation de la répartition spatiale des émissions, notamment des valeurs maximales, est essentielle pour estimer correctement les dépôts secs. Plus les sources sont fragmentées, c'est-à-dire plus les zones sources (e.g. élevages) et les zones cibles (e.g. écosystèmes semi-naturels) sont imbriquées et proches, plus le dépôt sec proche des sources d'émissions est potentiellement élevé (e.g. Asman, 1998). C'est précisément dans l'optique d'améliorer les estimations des dépôts secs que les émissions d'ammoniac font l'objet de cartographies de plus en plus précises. Au Royaume-Uni, une méthode d'estimation des sources avec des mailles de 5 km de côté a été développée (Dragosits et al., 1998). Plusieurs études ont été menées pour quantifier la variabilité des dépôts secs d'ammoniac. Par exemple, Sutton et al. (1998) montrent qu'avec l'utilisation d'un modèle de dispersion local ainsi que des données détaillées d'émission et de concentration pour différentes mailles de 5 x 5 km², les dépôts et les concentrations en NH₃ varient jusqu'à un facteur 100 d'une maille à l'autre. D'autres études montrent aussi que les dépôts secs à deux kilomètres d'une source peuvent varier de 50% pour une même quantité d'NH₃ émise (Asman, 1998 ; Fowler et al., 1998 ; Loubet et al., 2009).

La bibliographie propose différentes méthodes pour améliorer la résolution des modèles ou mieux prendre en compte la variabilité spatiale des flux de NH₃. La mise en œuvre des différentes méthodes présentées dans cette section consiste essentiellement en une modification du corps des modèles par l'intégration de nouvelles équations ou processus, ce qui peut être très coûteux en ressources informatiques. Le couplage entre deux modèles différents, généralement eulérien et gaussien, est aussi une solution, mais les couplages

nécessitent généralement une base de données beaucoup plus conséquente, spécifique pour le NH_3 , ce qui est très difficile à obtenir.

Pour cela, une intercomparaison des modèles à l'échelle locale et régionale est pertinente pour identifier les différences entre les modèles, leurs formalismes, la résolution spatiale et leurs capacités à simuler les processus qui déterminent les flux de NH_3 en utilisant des cas d'étude permettant une analyse de sensibilité des différents facteurs et leurs effets sur les résultats de simulations. Une telle intercomparaison permettrait aussi l'identification et la quantification des différents mécanismes et interactions possibles à différentes échelles spatiales entre les sources et les récepteurs (puits). Pour mieux identifier ces mécanismes, des cas d'étude de modélisation à l'échelle locale peuvent être proposés pour fournir des bases de comparaison objectives entre les modèles locaux et les modèles régionaux. Ces cas d'étude peuvent être basés sur la variabilité spatiale des sources et des puits comme par exemple les occupations de sol et le positionnement des sources.

II.6. Précision des objectifs de la thèse

Nous avons vu dans l'introduction que les dépôts locaux d'ammoniac sur les agroécosystèmes constituent à plusieurs titres un problème environnemental majeur. La modélisation représente un outil très utile pour mieux comprendre les facteurs qui influencent les dépôts, mais la grande variabilité spatiale des émissions et des dépôts représente un défi majeur pour produire des cartes précises de dépôt. Actuellement, la modélisation de la dispersion et des dépôts de NH_3 est orientée sur des échelles régionale et européenne. L'intérêt porté pour les zones sources « hot-spot » reste encore très limité bien que les études d'impacts environnementaux confirment qu'il est nécessaire de connaître la fraction d'ammoniac émis qui est déposée sous forme de dépôt sec près de la source, compte tenu du fait qu'à l'échelle locale, le dépôt sec représente le processus majeur d'élimination de l'ammoniac atmosphérique (Asman, 1992).

Dans les modèles de transport à grande échelle, cette fraction d'émission est calculée en fonction des caractéristiques de la surface au niveau de la maille. Elle ne prend donc pas en compte le maximum d'informations « sous-maille », en particulier dans les zones sous le vent des sources de NH_3 . La quantification du dépôt sec sur les écosystèmes sensibles dans une maille d'un modèle fonctionnant à l'échelle régionale est basée sur une concentration moyenne pour toute la surface de la maille. Ceci peut conduire à une sous-estimation du dépôt sec à proximité de sources et donc favoriser le transport et surestimer le dépôt sec dans des zones éloignées des sources. Il est donc indispensable, pour une meilleure quantification du dépôt sec, d'utiliser des informations spatialement détaillées pour la maille. Pour améliorer les

simulations des modèles, il est important que la résolution spatiale de ces modèles soit au moins celle des occupations de sol. Pour cela, il est important d'utiliser des modèles plus simples à une échelle spatiale plus fine, pour identifier les différences de dépôts secs entre les différentes occupations de sol. Cette amélioration de la résolution peut aussi améliorer la capacité des modèles à prédire les cartes de charges critiques.

Devant la complexité des méthodes proposées par la bibliographie (amélioration de la résolution des modèles régionaux, couplage entre les modèles...), une comparaison entre les modèles peut permettre, à partir de cas d'étude idéalisés ou proches de la réalité dans une première approche, d'identifier, établir et proposer des relations entre les modèles à l'échelle locale et les modèles à l'échelle régionale. Cette intercomparaison entre modèles doit prendre en considération tous les paramètres d'entrée qui peuvent influencer le calcul des flux de NH_3 . Pour cela, différents cas d'étude doivent être évalués pour chaque modèle en prenant en compte les principaux processus d'émission, de dispersion, de transport et de dépôt et les variations des facteurs d'entrée. Cela nécessite une précision non seulement de la dispersion, mais aussi des sources (taux d'émission et emplacement), car le calcul des dépôts nécessite une description très précise des caractéristiques de la surface (sol et végétation), du type d'occupation des sols et de la météorologie à la surface. Les cas d'étude proposés vont alors dépendre du modèle, des processus simulés et des facteurs d'entrée à étudier.

Dans ce cadre, l'objectif de la thèse est de développer une méthode de comparaison de modèles permettant de quantifier ces concentrations et dépôts secs de NH_3 et leur variabilité en fonction de la résolution spatiale, du type de modèle, de l'occupation des sols et des conditions météorologiques, en se basant sur trois axes :

- Evaluer les différentes hypothèses et méthodologies formalisées dans le modèle local OPS-ST et le modèle régional CHIMERE pour simuler les concentrations et dépôts secs de NH_3 à proximité des sources ;
- Identifier, à partir du modèle local, dans quelle mesure l'impact environnemental des « hot-spots » d'émissions à proximité des sources est sous-estimé ou surestimé dans le modèle régional fonctionnant à de faibles résolutions spatiales ;
- Proposer des améliorations des méthodes d'évaluation des dépôts secs de NH_3 à proximité des sources à partir des résultats de comparaison des deux modèles.

Pour cela, la suite du manuscrit est organisée en quatre chapitres :

- Le chapitre III traite des modèles et des cas d'étude utilisés ainsi que de la méthodologie de travail. Le modèle de chimie-transport eulérien CHIMERE est d'abord présenté, ainsi que ses différentes paramétrisations et données d'entrée. Puis sont détaillés le modèle de dispersion à panache gaussien OPS-ST et enfin la méthodologie utilisée pour comparer les deux modèles. Les deux cas d'étude sont ensuite présentés, le premier purement théorique et idéalisé pour mieux mettre en évidence les différences liées aux modèles, et le second plus réaliste et en même temps plus complexe ;
- Le chapitre IV présente les résultats d'une première comparaison entre les deux modèles, avec des cas d'étude idéalisés très contrastés. Cette comparaison vise à comparer l'effet des formalismes des modèles, ainsi que de la résolution spatiale sur les variations spatiales de dépôts secs ; ce chapitre correspond à un article soumis à la revue « Environmental Pollution ».
- Le chapitre V détaille la variabilité des dépôts secs avec l'utilisation de données issues d'enquêtes agricoles et de bases de données globales pour la production de cartes de seuils à l'aide des méthodes décrites au chapitre III et en se basant sur les résultats du chapitre IV ; ce chapitre correspond à un article qui va être soumis à « Atmospheric Environment ou Biogeosciences »
- Enfin, le chapitre VI est une discussion générale des résultats et des effets des facteurs d'entrée aux modèles (résolution spatiale, occupation des sols, météorologie) sur les dépôts secs locaux.

Chapitre III : Matériels et méthodes

III. Matériels et méthodes

La simulation des dépôts secs d'ammoniac à différentes échelles (locales et régionales) est basée sur différents types de modèles en fonction de l'échelle de simulation. Les modèles de dispersion de type gaussien ou lagrangien sont généralement utilisés à l'échelle locale, alors que les modèles de chimie-transport de type eulérien sont généralement utilisés à l'échelle régionale. Dans cette étude, nous avons utilisé un modèle local à panache gaussien (OPS-ST) et un modèle régional eulérien (CHIMERE) pour comparer les dépôts secs de NH₃ simulés avec les deux modèles. La comparaison entre les sorties des deux modèles a été menée en deux étapes :

- Une première étape avec l'utilisation d'un cas d'étude idéalisé pour comparer l'effet des formalismes des modèles sur les résultats de simulation ; les paramètres des modèles ainsi que les données d'entrée ont été modifiés pour être dans les mêmes conditions de simulation ;
- Une deuxième étape avec l'utilisation d'un cas d'étude semi-réel, en se basant sur les résultats précédents ; cette étape vise à mettre en évidence l'effet de la variation des paramètres d'entrée sur les résultats de simulation (occupation des sols, météorologie...).

Dans un premier temps, nous décrivons les deux modèles mis en œuvre au cours de ce travail de thèse, puis les cas d'étude utilisés et les méthodes d'application des différents modèles.

III.1. Le modèle CHIMERE

III.1.1. Présentation générale

Le modèle CHIMERE (version 2013b) est un modèle eulérien de chimie-transport (CTM) de type « off-line » (Vautard et al., 2001 ; Schmidt et al., 2001 ; Bessagnet et al., 2009 ; Menut et al., 2014). Des forçages externes sont nécessaires pour exécuter une simulation : les champs météorologiques, les émissions de polluants et les conditions aux limites chimiques. En utilisant ces données d'entrée, CHIMERE calcule et fournit les concentrations atmosphériques de dizaines à centaines d'espèces en phase gazeuse et d'aérosols sur différentes échelles locales à continentales (de 1 km à 1 degré). Le modèle de chimie-transport proprement dit, mais aussi de nombreuses routines pré-traitement, servant à préparer la simulation, ainsi qu'une documentation, sont disponibles sur le site <http://www.lmd.polytechnique.fr/chimere/>.

Les processus clés affectant les concentrations chimiques et représentés dans CHIMERE sont les émissions, le transport (advection et mélange), la chimie et le dépôt (Fig. III.1). Le

développement de CHIMERE a été guidé par l'objectif de maintenir une structure modulaire pour permettre les mises à jour du code par les développeurs et aussi tous les utilisateurs intéressés, ainsi que par la recherche d'efficacité en temps de calcul pour permettre des simulations à long terme, des études climatologiques (Lacressonnière et al., 2016) et la prévision opérationnelle (Honoré et al., 2008). Le modèle est maintenant utilisé pour l'analyse des événements de pollution, des études de scénarios et plus récemment, des études d'impact de la pollution sur la santé (Valari et Menut, 2010) et la végétation (Anav et al., 2011). La première version du modèle a été publiée en 1997, il s'agissait d'un modèle de boîte couvrant la région parisienne et le modèle ne comprenait que la chimie en phase gazeuse (Honoré et Vautard, 2000 ; Vautard et al., 2001.). Le modèle a été appliqué principalement en Europe, et plus récemment en Afrique (pour des poussières), en Amérique centrale (pour des aérosols organiques) et aux États-Unis, puis en Asie et en Russie (Hodzic et al., 2007 ; Konovalov et al., 2011 ; Menut et al., 2013).

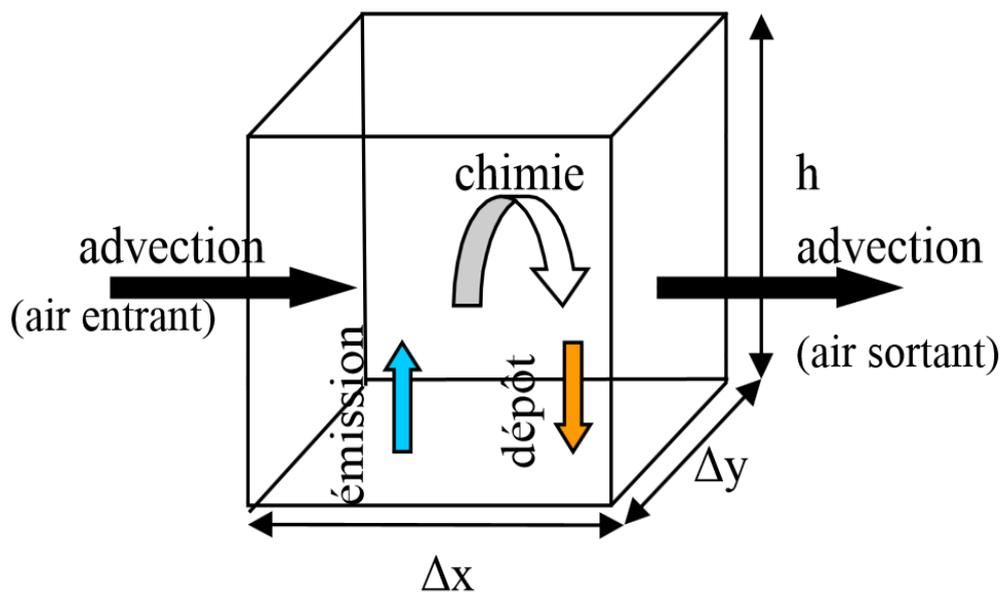


Figure III.1: Boîte eulérienne et équation de conservation de la masse :

$$\frac{dC_i}{dt} = \frac{q_i}{h} + R_i - \frac{v_d}{h} C_i + \frac{u}{\Delta x} (C_i^0 - C_i)$$

avec :

q_i : quantité émise par unité de temps et de surface

R_i : sources et pertes chimiques

v_d : vitesse de dépôt

- U : vitesse de vent
 C_i : concentration à l'intérieur de la boîte
 C_i^0 : concentration à l'extérieur de la boîte

III.1.2. Domaines géométriques du modèle

Les domaines du modèle sont définis par des domaines de simulation contrôlés par l'utilisateur par un simple fichier ASCII contenant la longitude et la latitude des points, en degrés décimaux qui correspondent aux centres des mailles. Les champs météorologiques d'entrée sont automatiquement interpolés sur la grille CHIMERE. Chaque paire de coordonnées représente le centre d'une cellule de la grille, décrite d'ouest en est, puis du sud au nord. Dans la définition d'un nouveau domaine CHIMERE, l'utilisateur doit vérifier si le domaine est quasi-rectangulaire.

Les domaines d'application de CHIMERE correspondent à l'échelle de l'hémisphère pour la simulation du transport à grande distance des poussières avec une résolution horizontale typiquement de $1^\circ \times 1^\circ$ (Menut et al., 2009), à l'échelle de la France pour des prévisions de qualité de l'air avec une résolution de $0.15^\circ \times 0.1^\circ$ (Rouil et al., 2009), à l'échelle de l'aire urbaine avec une résolution d'environ 5 km x 5 km (Valari et al., 2011 ; Menut et al., 2013). Le plus souvent, la discrétisation verticale utilisée se compose de huit niveaux verticaux indépendants de la résolution horizontale, mais la grille verticale peut être fixée librement par l'utilisateur.

III.1.3. Conditions aux limites et initiales

En tant que modèle à domaine limité, CHIMERE nécessite des conditions initiales et des conditions aux limites chimiques. Les conditions aux limites sont des champs tridimensionnels fournis sur toute la période de simulation. Ces domaines correspondent aux concentrations d'espèces chimiques (sous forme gazeuse et particulaire) au niveau des couches latérales et supérieures du domaine de simulation CHIMERE. Pour assurer la meilleure qualité possible de simulation, une pratique courante consiste à utiliser l'option d'imbrication « Nesting » de CHIMERE, avec un domaine grossier qui fournit les conditions aux limites les plus cohérentes pour les domaines imbriqués plus petits. Des outils de prétraitement ont été mis en œuvre pour construire des conditions aux limites d'une variété de modèles globaux. Le plus utilisé est LMDz-INCA (Folberth et al., 2006), pour lequel une climatologie (champs de moyenne mensuelle) est disponible sur le site de CHIMERE. La version actuelle du modèle inclut dans sa liste de noms une série d'indicateurs afin de définir

le modèle qui doit être utilisé pour les trois groupes d'espèces suivants : gaz, aérosols poussières et aérosols non poussières. Pour chacun d'entre eux, des champs soit climatologiques, soit variables dans le temps peuvent être utilisés.

III.1.4. La hauteur de la couche limite et mélange turbulent

La hauteur de la couche limite (h) est calculée en fonction de la stabilité statique atmosphérique (longueur de Monin-Obukhov L). Lorsque l'atmosphère est stable, c'est-à-dire lorsque $L > 0$, h est estimé comme étant l'altitude lorsque le nombre de Richardson atteint une valeur critique, le nombre choisi est $R_{ic} = 0.5$ (Troen et Mahrt, 1986). Pour les situations instables (convectives, $L < 0$), h est calculé en utilisant une hauteur de couche limite convective (Cheinet et Teixeira, 2003). Une fois que la hauteur de la couche limite est calculée, le mélange turbulent vertical peut être calculé suivant la paramétrisation de Troen et Mahrt (1986).

III.1.5. Le transport horizontal

Dans les directions horizontales, il est supposé que la taille de la maille ne varie pas sensiblement d'une maille à une autre voisine. Comme dans le modèle CHIMERE, les concentrations des espèces et les variables météorologiques sont représentées dans la même maille du domaine, la vitesse du vent au niveau des interfaces est interpolée linéairement à partir des vitesses du vent au niveau des centres des deux mailles du domaine, séparés par l'interface entre les deux mailles. La vitesse du vent à l'interface est notée $u_{n\pm\frac{1}{2}}(t)$ et est supposée constante au cours de chaque intervalle de temps. La définition de la vitesse du vent à l'interface entre deux mailles est indépendante du système utilisé, de sorte que la définition des flux au niveau des interfaces ne dépend que de l'évaluation de la concentration à l'interface. Trois schémas d'advection sont disponibles dans le modèle pour traiter le transport horizontal, d'ordre et de précisions différentes. Toutes les simulations ont été effectuées suivant le schéma de van Leer (1979) qui a été choisi pour sa bonne précision et son faible temps de calcul pour simuler le transport de concentrations élevées dans les panaches.

III.1.6. Le dépôt sec

Le processus de dépôt sec est généralement décrit par une analogie de résistance (Wesely, 1989). Le processus de dépôt sec est un puits et agit uniquement sur une concentration c au niveau de la maille « source » et ensuite sur les mailles adjacentes à la surface le long d'un axe vertical :

$$\Delta c = \frac{\partial}{\partial z}(v_d c)$$

avec v_d , la vitesse de dépôt sec qui est définie par :

$$v_d = \frac{1}{R_a + R_b + R_c}$$

III.1.7. Météorologie

Le modèle CHIMERE est un modèle de chimie-transport « off-line » forcé par des champs météorologiques, par exemple à partir d'un modèle de prévision météorologique, comme WRF (Skamarock et al., 2007) ou MM5 (Dudhia et al., 2005). CHIMERE contient un préprocesseur météorologique qui prépare les variables météorologiques standard pour être lues par le noyau du modèle lors des simulations (Tab. III.1).

Tableau III.1 : Variables météorologiques principales de CHIMERE.

Variables	Signification	Dimension	Unités
winz	Composante zonale du vent	3D	m/s
winm	Composante méridionale du vent	3D	m/s
temp	Température	3D	K
sphu	Humidité spécifique	3D	kg/kg
pres	Pression	3D	Pa
swrd	Rayonnement à courte longueur d'onde	2D	W/m ²
lwrd	Rayonnement à large longueur d'onde	2D	W/m ²
psfc	Pression de surface pressure	2D	Pa
tem2	Température à 2m	2D	K
rh2m	Humidité relative à 2m	2D	0 – 1
usta	Vitesse de friction	2D	m/s ¹
hght	Hauteur de la couche limite	2D	M

Les données d'entrée météorologiques sont traitées en deux étapes. CHIMERE peut utiliser comme données extérieures uniquement des variables météorologiques de base (vitesse du vent, température, humidité et pression). Dans un tel cas, une suite complète d'outils de diagnostic pour toutes les autres variables obligatoires peut être utilisée (couverture nuageuse, flux de surfaces...). Si le modèle météorologique fournit toutes les variables météorologiques nécessaires, l'interface météorologique interpole les données sur la grille CHIMERE, avec un pas de temps horaire, tout en respectant un certain nombre de lois physiques (par exemple la conservation de la masse). Dans la version actuelle de CHIMERE, les interfaces météorologiques sont fournies pour les modèles ECMWF (ERAINTERIM, IFS), WRF et MM5. Si toutes les données pour les domaines requis sont fournies, un préprocesseur est alors utilisé. Il prend les variables météorologiques et les transforme en variables nécessaires pour

le CHIMERE. Ces variables sont l'atténuation du rayonnement, la hauteur de la couche limite, la vitesse de frottement u_* , la résistance aérodynamique R_a , le flux de chaleur sensible Q_0 , la longueur de Monin-Obukhov L et la vitesse de convection w_* .

III.1.8. Les émissions

Les émissions de polluants sont d'origines diverses et comprennent un certain nombre d'espèces (gazeuses et d'aérosols), chimiquement inertes ou non. Les sources peuvent être situées à la surface (trafic, biogénique) ou le long des profils verticaux (émissions industrielles, combustion de la biomasse). Dans CHIMERE, ces émissions sont divisées en plusieurs familles représentant leur origine :

- Les émissions anthropiques comprennent toutes les activités humaines (trafic, industries, agriculture...). Elles peuvent être très spécifiques et les inventaires des émissions sont souvent dédiés au domaine de la simulation à l'échelle locale. Pour la région parisienne, CHIMERE utilise l'inventaire du réseau de la qualité de l'air AIRPARIF (Valari et Menut, 2008, 2010). Pour les études européennes, les inventaires habituellement utilisés sont EMEP ou TNO (Organisation néerlandaise pour la recherche scientifique appliquée, Kuenen et al., 2014) ;
- Les émissions biogéniques représentent les activités liées à la végétation. Ces émissions sont calculées en utilisant l'inventaire global MEGAN (Modèle des Emissions de Gaz et Aérosols provenant de la Nature, Guenther et al., 2006). Le taux d'émissions pour les COV (isoprène, terpènes...) dépend fortement de l'activité photosynthétique de la végétation et donc du rayonnement et de la température. Il peut être altéré par des conditions de stress hydrique ;
- Les émissions de poussières minérales représentent l'autre partie des émissions "naturelles», mais pour des particules terrigènes soulevées par le vent, surtout en régions désertiques (Marticorena et al. 1995 ; Menut et al., 2009) ;
- Les émissions par les feux de forêt calculées à partir de données sur les surfaces brûlées, le type de végétation, et des facteurs d'émissions (Turquety et al., 2014).

Les émissions anthropiques sont préparées de manière « bottom-up », en utilisant un certain nombre de données d'entrée. Ces différentes informations d'entrée sont généralement fournies pour un nombre réduit de classes et d'espèces chimiques dans les classifications par secteur d'activité, souvent d'après la « nomenclature sélectionnée pour les polluants atmosphériques » (SNAP). Pour une simulation réaliste, ces émissions doivent être fournies au pas de temps

horaire, en appliquant des profils temporels d'activité. A partir des données brutes annuelles, des prétraitements sont nécessaires pour avoir les données requises pour une simulation spécifique. Une procédure standard est proposée dans CHIMERE en deux étapes distinctes :

- Étape 1: Créer une base de données maillée annuelle par secteur d'activité adaptée à la grille de simulation horizontale. En utilisant des facteurs saisonniers (fournis seulement pour l'Europe), ceci permet alors la création de flux mensuels d'espèces émises, déjà projetés sur la grille de simulation horizontale. Cette étape est effectuée une seule fois lorsqu'un nouveau nom de domaine est utilisé pour une simulation. La gamme complète de programmes est fournie à l'utilisateur dans le format EMEP, mais elle peut être adaptée à d'autres formats ;
- Étape 2: Désagréger les émissions mensuelles dans des émissions horaires en appliquant des facteurs journaliers et hebdomadaires, puis produire une série chronologique des émissions horaires pour chaque espèce adaptée à la période spécifique de simulation et à la grille verticale du modèle. Cette étape est effectuée pour chaque simulation.

III.1.9. Occupation des sols

Les différents types d'occupation des sols sont requis pour CHIMERE afin de calculer un certain nombre de processus tels que le dépôt, les émissions biogéniques, et le transfert de chaleur. Il y a actuellement neuf types d'occupation des sols dans CHIMERE. La version du code source est livrée avec des données d'occupation des sols pour deux bases de données: le Global Land Cover Facility (GLCF) et la GlobCover Land Cover (LC). GLCF est une base de données de l'Université du Maryland, avec une résolution de 1 km x 1 km et suivant la méthode de Hansen et Reed (2000). Cette classification mondiale de la couverture terrestre est basée sur les images satellitaires AVHRR analysées de manière à distinguer 15 types d'occupation des sols. Le LC GlobCover est une carte de la couverture terrestre mondiale à une résolution de 10 secondes d'arc (300 m) (Bicheron et al., 2011). Il contient 23 types d'occupation des sols définis par l'UN Land Cover Classification System (LCCS). L'utilisateur peut choisir entre les deux bases de données en sélectionnant un flag dans CHIMERE. Pour que les différentes bases de données soient utilisées par CHIMERE, une matrice d'agrégation contenant les 15 classes GLCF et les 23 classes GlobCover, respectivement, permet de faire correspondre les différentes classes avec les 9 types d'occupation des sols utilisées par le modèle CHIMERE (Tab. III.2). Les différents types

d'occupation des sols sont projetée sur ceux, moins nombreux, utilisés en interne dans CHIMERE.

Tableau III.2 : Les différents types d'occupation des sols requis par CHIMERE.

#	Description	#	Description
1	Terres agricoles / cultures	6	Arbustes
2	Prairies	7	Forêts de Conifères
3	Sol nu	8	Forêt dense
4	Eaux intérieures	9	Océan
5	Urbain		

III.2. Le modèle OPS-ST

A l'échelle locale, différents modèles permettent de simuler la dispersion et le transport de NH₃ et sont présentés dans le tableau III.3. Parmi ces modèles, le choix du modèle OPS-ST pour ce travail a été motivé par différentes raisons :

- L'évaluation du modèle et son utilisation aux Pays-Bas avec un inventaire des émissions très détaillé (3 x 3 km) pendant plus d'un an avec le projet VELD (van Pul et al., 2008) qui a permis de valider l'inventaire des émissions en comparant les concentrations en NH₃ modélisées avec les concentrations mesurées ;
- La coopération entre les différents laboratoires (RIVM et ECOSYS) dans le cadre du projet ECLAIRE (www.eclair-fp7.eu), permettant d'obtenir ce modèle et son code source ;
- Des travaux d'intercomparaison des modèles à l'échelle locale qui permettent d'évaluer les simulations de OPS-ST (Theobald et al., 2012).

Tableau III.3 : Liste non exhaustive des modèles atmosphériques de transport et de dispersion de NH₃ à l'échelle locale. [Loubet et al., 2009]

Modèles	Description	Paramètres calculés	Avantages	Inconvénients	Echelle (km)	Big-leaf multi-couches	Référence
FIDES	Solution analytique de l'équation de diffusion couplée avec un modèle de résistance à l'échelle de la canopée en 2D	z_0 , d , u^* , L , taille de la source, R_s , R_w , C_s	Processus rapides Quelques paramètres d'entrée nécessaires	Seulement 2D, z_0 constant, pas de flux latéraux	0.001-5000	Big-leaf	Loubet et al. 2001
DAMOS	Combinaison entre un modèle eulérien (DEHM-REGINA) et un modèle local de panache gaussien (OML-DEP)	u^* , z_0 , L , position de la source, réaction chimique de premier ordre, occupation des sols	résolution temporelle et spatiale élevée description du transport	Temps de calcul long	0.4-1000	Big leaf	Geels et al., 2012 ; Hertel et al., 2006 ; Frohn et al., 2001
DEPO1	Modèle de panache gaussien 3D couplé avec un modèle de résistance de surface avec point de compensation, simule aussi le dépôt sec de NH ₄ ⁺ et le dépôt humide de NH ₃ et de NH ₄ ⁺	u^* , z_0 , L , position de source, R_s , R_w , C_s , intensité de pluie, réaction chimique premier ordre	Point de compensation, sources ponctuelles, sources surfaciques, simulation sur une large surface et pour des longues périodes	Météo et z_0 constant	0.01-500	Big-leaf	Asman et al., 2004 ; Asman, 1998
MODDAAS	Modèle lagrangien stochastique de dispersion couplé avec un modèle de résistance de surface en 2D	$u(z_{ref})$, $L(z_{ref})$, position des sources, R_s , R_w , C_s	Processus multi-sources, transfert au niveau de la canopée	Seulement en 2D, nombre important de paramètres pour la turbulence	0.001-2000	Multi-couches	Loubet et al., 2006
LADD	Modèle hybride lagrangien, colonne verticale pour calculer les flux et la diffusion verticale, couplé avec un modèle d'échange de surface	u^* , z_0 , d , L , position des sources, R_s , R_w	3D, classes d'occupation des sols, C_s et R_s sont utilisés, calcule un point de compensation	Pas de transfert dans la canopée	0.001-2000	Big-leaf	Hill, 1998
DDR	3D, modèle gaussien, réactions chimiques premier ordre	Fréquence de distribution des vitesses de vent, classes de Pasquill	Peut couvrir des larges surfaces, sources surfaciques et ponctuelles, large période de simulation	Météorologie, z_0 et v_d sont constants, chimie non détaillée	0.01-500	Vitesse de dépôt	Asman et al., 1989
OPS-ST	3D, modèle gaussien avec appauvrissement de source, réactions chimiques de premier ordre	u^* représentative, L , classes de stabilité, statistique pour la direction du vent	Sources ponctuelles et surfaciques, z_0 et R_c variables, classes d'occupation des sols, longue période de simulation	Même météorologie sur tout le domaine de simulation	0.01-1	Vitesse de dépôt	Asman and van Jaarsveld, 1992 ; van Pul et al., 2008 ; Suater et al., 2015

d: hauteur de déplacement, R_w et R_s sont les résistances de surface humide et stomatique

Le modèle OPS-ST est la version à court terme du modèle OPS² (Operational Priority Substances), qui est un modèle réglementaire utilisé pour calculer les concentrations et les taux de dépôt de polluants atmosphériques (spécialement acidifiants) à l'échelle locale et nationale aux Pays-Bas (van Jaarsveld, 2004). Dans OPS, il existe un module pour calculer la contribution de sources locales aux récepteurs à l'aide de l'approche de panache gaussien, dont OPS-ST est une version adaptée. Le modèle OPS peut être considéré comme un modèle de trajectoire climatologique à long terme qui traite les impacts des sources sur un récepteur d'une façon indépendante. Le modèle OPS fonctionne avec trois groupes de substances:

- Les substances acidifiantes et eutrophisantes (SO₂, NO_x, NH₃ et produits secondaires) ;
- Les substances non acidifiantes (gazeuses) ;
- Les substances « particules bornées ».

Contrairement au modèle OPS, qui a une résolution spatiale de 5 km x 5 km, OPS-ST a été développé pour une utilisation avec des tailles de mailles beaucoup plus fines (van Pul et al., 2008 ; Sauter et al., 2015).

III.2.1. Calculs de base de la dispersion

Le modèle OPS-ST est un modèle qui décrit les relations entre les sources les récepteurs individuels par des panaches gaussiens, avec des réflexions sur le sol et le sommet de la CLA, pour calculer les concentrations atmosphériques à l'emplacement des récepteurs spécifiés par l'utilisateur. Le coefficient de dispersion du vent de travers (σ_y) est calculé selon Hanna et Chang (1992) et le coefficient de dispersion verticale (σ_z) est calculé en utilisant la théorie de similitude de Monin-Obukhov (MOST) et un profil vertical de la diffusivité de Businger (1973). On suppose que le panache à des grandes distances de la source est distribué verticalement de manière homogène sur l'ensemble de la couche limite, mis à part une atténuation près de la surface du sol en raison de dépôts secs. La dispersion horizontale dans la direction du vent est négligée. Le modèle calcule les différentes valeurs de concentration et de dépôt pour un certain nombre de situations typiques (classes) et la valeur à long terme est obtenue par la sommation de ces valeurs pondérées par leurs fréquences relatives d'occurrence. Le modèle OPS-ST est utilisé sur une base horaire, il calcule les concentrations et les dépôts horaires pour une surface limitée (0 - 50 km). Toutes les équations qui régissent les processus de transport et de dépôt sont résolues analytiquement, permettant l'utilisation de récepteurs et de sources non spatialisés avec des tailles de mailles variables (Fig. III.2).

² Aucune spécification n'a été publiée en anglais pour OPS et, par conséquent, la description suivante a été prise à partir de la documentation originale de OPS et une interprétation du code source du modèle.

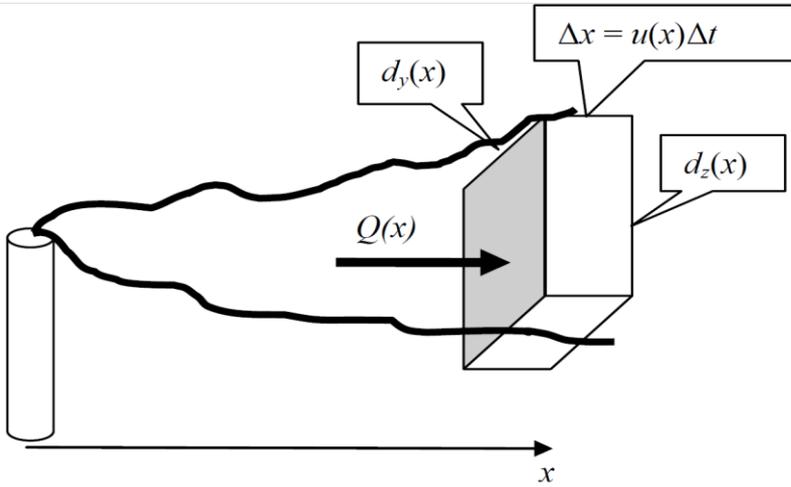


Figure III.2: Dispersion et mélange dans le panache à la distance x , avec $Q(x)$ le flux de masse, $u(x)$ la vitesse de vent, Δx , $d_y(x)$ et $d_z(x)$ les dimensions du panache (Sauter et al., 2015).

La concentration C dans le panache à une distance x est calculée en divisant la masse $M(x) = Q(x) \cdot \Delta t$ par le volume de panache de dimension $\Delta x = u(x) \cdot \Delta t$, $d_y(x)$, $d_z(x)$

$$C(x) = \frac{Q(x)}{u(x)} D_y(x) D_z(x)$$

avec $D_y(x)$ et $D_z(x)$ les facteurs de dispersion horizontale et verticale respectivement. $D_y(x) = \frac{1}{d_y(x)}$ et $D_z(x) = \frac{1}{d_z(x)}$.

III.2.2. La structure de la couche limite

Le préprocesseur météorologique de OPS-ST calcule d'abord la vitesse de frottement (u^*), la longueur de Monin-Obukhov (L) et le flux de chaleur sensible (H), à partir des valeurs mesurées du rayonnement solaire, de la vitesse du vent, de la température de l'air et une estimation de la couverture nuageuse en utilisant la théorie de similitude de Monin-Obukhov (MOST). A partir de ces paramètres, le modèle calcule le profil de la vitesse verticale du vent en supposant un profil en loi puissance au-dessus de la hauteur de mesure de la vitesse du vent, z_1 (généralement 10 m) :

$$u(z) = u(z_1) \left(\frac{z}{z_1} \right)^P$$

avec le coefficient P calculé à partir de la longueur de rugosité et de la longueur Monin-Obukhov. Pour des hauteurs inférieures à 10 mètres, un profil logarithmique de vent est utilisé à partir de la théorie MOST. La hauteur de la couche limite atmosphérique (CLA) dans des conditions stables est calculée par:

$$h = c_1 \frac{u_*}{f}$$

où c_1 est une constante prise à 0.008 et f est le paramètre de Coriolis.

Pour les conditions instables, la hauteur de la CLA est calculée en utilisant les équations de taux de Tennekes (1973).

III.2.3. Le profil de vent

Les polluants sont émis à différentes hauteurs dans l'atmosphère et la hauteur effective de transport d'un polluant peut changer dans le temps en raison du mélange turbulent. Le transport horizontal d'un polluant dépend donc fortement du profil vertical du vent. Les données relatives à la vitesse de vent sont habituellement disponibles pour un ou deux niveaux d'observation. Il est donc nécessaire de recourir à des formules théoriques ou semi-empiriques pour décrire la relation entre la vitesse de vent et la hauteur. Pour une hauteur inférieure à la hauteur de la couche de surface (i.e. hauteur de la partie inférieure de la couche limite atmosphérique), il est possible d'utiliser la théorie de la similitude de Monin-Obukhov pour calculer le profil de vent vertical.

$$u(z) = u(z_1) \frac{\left[\ln\left(\frac{z}{z_0}\right) - \psi_m\left(\frac{z}{L}\right) + \psi_m\left(\frac{z_0}{L}\right) \right]}{\left[\ln\left(\frac{z_1}{z_0}\right) - \psi_m\left(\frac{z_0}{L}\right) + \psi_m\left(\frac{z_0}{L}\right) \right]}$$

La fonction ψ_m est initialement calculée pour des hauteurs inférieures à L . Différents auteurs proposent une fonction corrigée qui décrit la variation de la vitesse du vent en fonction de l'altitude, et qui est valable pour des altitudes équivalentes à la hauteur de la couche de mélange et pour différentes conditions de stabilité (Carson et Richards, 1978 ; Garratt et al., 1982 ; Holstlag, 1984 ; van Ulden and Holstlag, 1985) :

$$\psi_m\left(\frac{z}{L}\right) = 2 \ln\left(\frac{1+x}{2}\right) + \ln\left(\frac{1+x^2}{2}\right) - 2 \arctan(x) + \frac{\pi}{2} \quad \text{pour } L \leq 0$$

$$\text{avec } x = \left(1 - 15 \frac{z}{L}\right)^{1/4},$$

$$\psi_m\left(\frac{z}{L}\right) = -17 \left[1 - \exp\left(-0.29 \frac{z}{L}\right)\right] \quad \text{pour } L > 0$$

III.2.4. L'élévation du panache

Dans des conditions instables ou neutres, l'élévation du panache des émissions dynamiques est calculée selon Briggs (1971 et 1975) :

$$\Delta h = 38.8 \frac{F_b^{3/5}}{u_{st}} \quad \text{pour } F_b > 5 \text{ et}$$

$$\Delta h = 21.3 \frac{F_b^{3/4}}{u_{st}} \quad \text{pour } F_b \leq 5$$

avec u_{st} la vitesse du vent à la hauteur de la source et $F_b = 8.8 Q_h$, où Q_h est le flux de chaleur de la source en MW (mégawatts).

Dans des conditions stables, on a :

$$\Delta h = 2.6 \left(\frac{F_b}{s u_{st}} \right)^{1/3} \quad \text{avec } s = \frac{g}{T} \frac{\partial \theta}{\partial z}$$

avec g est l'accélération de pesanteur et $\frac{\partial \theta}{\partial z}$ est le gradient de température potentielle à la hauteur de la source d'émission (considéré comme étant 0.006 K/m).

III.2.5. Caractéristiques de la source

Les sources d'émissions sont traitées différemment en fonction de leurs caractéristiques. Dans le cas des émissions de NH_3 , une distinction est faite entre les sources au niveau du sol et les sources élevées. Si la hauteur de source est précisée comme étant inférieure à 2 mètres, la source est supposée être l'épandage d'engrais et le facteur de correction d'émission suivant est appliqué :

$$EC_{spread} = 1 + 1.55 \cdot 10^{-5} \left[\left(\frac{100}{R_a} \right)^{0.8} (T + 23)^{2.3} \right]^{1.25}$$

où R_a est la résistance aérodynamique et T la température de l'air en degré Celsius. Les valeurs du facteur de correction varient entre 0.07 dans les conditions très stables jusqu'à 1.8 pour des conditions très instables. Si la hauteur de la source d'émission est supérieure à 2 mètres, la source est considérée comme un bâtiment d'élevage et un autre facteur de correction est appliqué :

$$EC_{housing} = \left(1 + 0.03(T - T_{avg}) \right) \left(1 + 0.1(u - 3.5) \right)$$

avec T et T_{avg} la température et la température moyenne (généralement 10 °C) de l'air respectivement, et u la vitesse du vent. Pour une nuit froide calme, le facteur de correction peut descendre jusqu'à 0.2, alors que pour une journée chaude avec beaucoup de vent le facteur peut dépasser 2.5. Les surfaces d'émission sont simulées comme un ensemble de sources ponctuelles.

III.2.6. Le dépôt sec

Le dépôt sec de NH_3 est modélisé en utilisant un simple modèle de résistance, la vitesse de dépôt est calculée selon :

$$v_d = \frac{1}{R_a + R_b + R_c}$$

avec R_a , R_b et R_c les résistances liées au transfert turbulent, à la couche limite quasi-laminaire et à la surface respectivement. R_a et R_b sont calculées à partir des paramètres météorologiques et de surface. La résistance au niveau de la surface R_c peut être fournie par l'utilisateur ou calculée à partir d'une version simplifiée du modèle DEPAC (Erisman et al., 1994) avec l'équation :

$$R_c = \frac{1}{\frac{1}{R_{stom} + R_{mes}} + \frac{1}{R_{inc} + R_{soil}} + \frac{1}{R_{ext}}}$$

où R_{stom} , R_{mes} , R_{inc} , R_{soil} et R_{ext} sont la résistance stomatique, la résistance de mésophile, la résistance au transport dans la végétation, la résistance du sol et la résistance au dépôt de la surface mouillée de la végétation.

Deux types d'occupations des sols (prairies et forêts) sont utilisés dans OPS-ST pour simuler les dépôts secs de NH_3 . Le choix du type d'occupation du sol est basé sur la valeur de la longueur de rugosité : si $z_0 > 0.5\text{m}$, la paramétrisation utilisée est celle de la forêt, sinon c'est celle de la prairie. La diminution de la concentration du panache à la suite du dépôt sec est calculée en utilisant un modèle de réduction de la puissance de la source :

$$Q(x) = Q_0 e^{\left[-\int_0^x \frac{v_d}{u} \bar{D}(x) dx\right]}$$

où Q_0 est l'intensité du panache non appauvri de la source et \bar{D} est la fonction de diffusion intégrée du vent de travers. La forme du profil vertical est également ajustée par le modèle, pour tenir compte du fait que les dépôts secs se produisent uniquement lorsque le panache est au niveau de la surface.

III.2.7. Les données d'entrée

Le modèle OPS-ST nécessite des données météorologiques horaires pour la vitesse du vent, la direction du vent, le rayonnement global et la température de l'air (Tab. III.4). Si les processus de dépôt humide doivent être inclus, les informations sur les événements de précipitation sont également nécessaires (intensité et durée). Les taux d'émission des sources peuvent être spécifiés

soit avec des valeurs horaires soit comme une valeur constante avec les paramètres suivants : emplacement, hauteur, diamètre, taux d'émission, contenu en chaleur, propagation initiale verticale des espèces polluantes et leur variation diurne. Les emplacements des récepteurs sont spécifiés sous la forme d'une maille ou individuellement par leur emplacement, leur hauteur, la longueur de rugosité à l'intérieur du domaine de modélisation. La longueur de rugosité est déterminée comme une valeur constante ou fournie par une carte de rugosité. Le dépôt sec est paramétré soit en spécifiant directement la valeur de la résistance de surface ou en sélectionnant le sous-modèle DEPAC (Erisman et al., 1994). D'autres options moins applicables à la dispersion de NH₃ à partir des sources agricoles, telles que les distributions de la taille des particules, sont également disponibles.

Tableau III.4 : Paramètres météorologiques principaux pour le modèle OPS-ST.

Paramètres	Echelle	Hauteur de mesure	Unités
Date (heure locale)			jj/mm/aaaa
Couverture neigeuse	régional		0=no 1=yes
Longueur des événements de pluie	régional		0.1 h
Intensité des précipitations	local		0.1 mm/h
Rayonnement global	régional	1.5 m	J/cm ²
Température	régional	1.5 m	0.1 °C
Durée des précipitations	local	1.5 m	0.1 h
Direction du vent	régional	200 m	degré
Direction du vent	local	10 m	degré
Vitesse du vent	local	10 m	0.1 m/s
Humidité relative	régional	1.5 m	%

III.3. Construction des cas d'étude pour les simulations

Les mécanismes intervenant dans le calcul des flux de NH₃ étant très complexes, nous avons construit des cas d'étude relativement simples et contrastés pour comparer le comportement des deux modèles et identifier les facteurs qui ont les effets les plus marqués sur les variations spatiales des flux de NH₃ (Fig. III.3). Les deux modèles retenus dans le travail de thèse (CHIMERE et OPS-ST) sont différents des points de vue conceptuel et informatique, avec des formalismes différents, des échelles spatiales différentes, des paramétrisations des processus

souvent globalement similaires mais différentes dans les détails (occupations des sols, paramètres de surface...). Les cas d'étude construits ont permis de contrôler les conditions de simulation, et ainsi d'interpréter plus aisément les différences de résultats obtenues à partir des formalismes différents des deux modèles. Des bases de données ont été construites pour chacun des deux cas d'étude et pour les deux modèles (Tab. III.5).

Le choix de la taille du domaine résulte d'un compromis entre la représentativité des processus de transport et de dépôt dans le domaine et la réduction des temps de simulation, notamment pour le modèle OPS-ST. Le domaine choisi pour les deux cas d'étude est représentatif de la Bretagne où les émissions d'ammoniac sont élevées, de l'ordre de 140 000 tonnes par an (CITEPA, 2016). Elles proviennent à 98% des déjections animales : 60% des bâtiments et des aires de stockage, 30% des épandages et 10% des animaux au pâturage. Avec seulement 5% du territoire français, la Bretagne est la première région française pour la production d'ammoniac. Elle contribue pour environ 18% aux émissions nationales.

Il faut savoir que la résolution minimale de CHIMERE est de l'ordre de 1 km x 1 km et celle de OPS-ST est de 25 m x 25 m (van Pul et al., 2008). Les domaines étudiés ont une taille qui varie entre quelques dizaines de km² et quelques centaines de km². Néanmoins, si les variables d'entrée pour le cas idéalisé s'inspirent de conditions rencontrées en Bretagne, le cas idéalisé n'a pas de localisation précise.

Tableau III.5 : Paramètres météorologiques modifiés dans CHIMERE et dans OPS-ST.

Symbole	Significations	CHIMERE	OPS-ST
		Unité	
R_a	Résistance aérodynamique	s/cm	s/m
R_b	Résistance de la couche limite laminaire	s/cm	s/m
R_c	Résistance de surface	s/cm	s/m
ws	Vitesse du vent	m/s	m/s
wd	Direction du vent	meridional/zonal	°
R	Résolution	°	m
E	Taux d'émission	molecule/cm ² /s	g/s
nE	Nombre de sources	-	
z₀	Longueur de rugosité	Cm	m
A	Surface du domaine de simulation	km ²	km ²
nB	Nombre de pixels	-	
P	Précipitations	cm/h	0.1 mm/h
Rg	Rayonnement global	J/cm ²	J/cm ²
Rh	Humidité relative	%	%
E_i	Émission surfacique ou ponctuelle	-	
Z_h	Hauteur des sources	1 ^{ère} couche	3 m
v_d	Vitesse du dépôt	cm/s	m/s

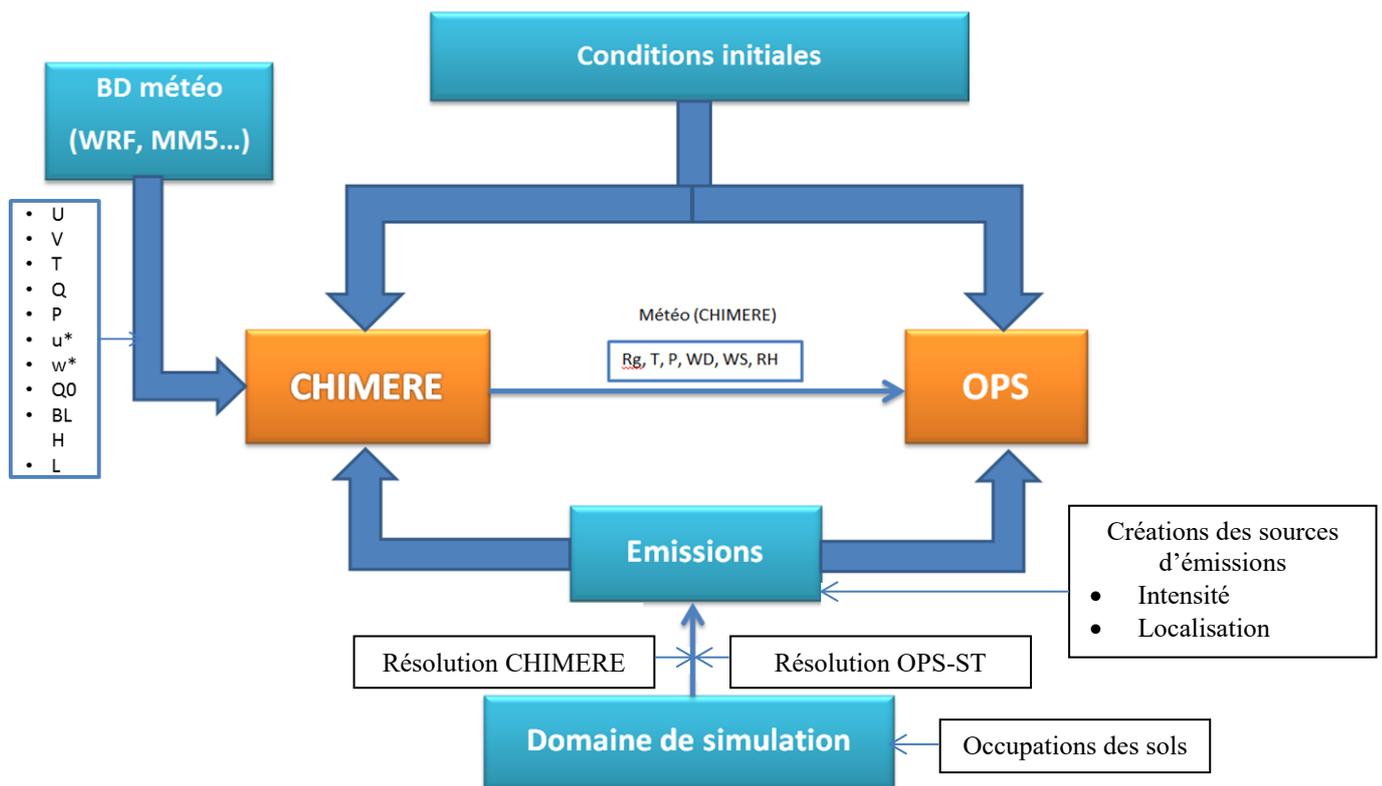


Figure III.3: Schéma de synthèse pour la construction des cas d'étude.

III.3.1. Le paysage

Le dépôt sec à la surface dépend fortement de l'occupation des sols qui se caractérise pour les modèles par des paramètres tels que la résistance de surface et la longueur de rugosité. Les différentes classes d'occupation des sols sont nécessaires aux deux modèles pour simuler les divers processus tels que le dépôt sec. Nous avons utilisé les neuf classes d'occupation des sols requises par CHIMERE (terres agricoles/cultures, prairies, forêts...) qui ont été agrégées à partir des deux bases de données d'utilisation globale des terres GLCF (Hansen et Reed, 2000) et GlobCover (Bicheron et al., 2011). Neuf classes d'occupation des sols sont également requises par OPS-ST (terres arables, cultures permanentes, forêts...). Les deux classifications sont similaires pour les deux modèles, mais les paramètres phénologiques diffèrent en fonction des modèles.

III.3.1.1. Cas d'étude idéalisé

L'utilisation de plusieurs tailles de mailles et de deux modèles différents constitue une difficulté pour déterminer les caractéristiques et les paramètres de surface des différentes classes d'occupation des sols et pour calculer la résistance de surface R_c associée à chaque classe. Pour

éviter ce problème, toutes les résistances de surface ont été fixées à des valeurs constantes ($R_c = 25, 50$ et 100 s/m) sur l'ensemble du domaine. Le modèle OPS-ST permet de définir une valeur constante pour R_c comme paramètre du modèle, mais pour CHIMERE, il a été nécessaire d'adapter le code pour fixer une valeur de R_c constante. La longueur de rugosité z_0 , qui est l'un des paramètres de surface qui influencent le plus fortement le dépôt sec à la surface, dépend principalement des classes d'occupation des sols. La valeur de z_0 a été également considérée comme constante dans les deux modèles ($z_0 = 0.2$ m).

Le modèle OPS-ST permet de calculer un point de compensation et donc la possibilité de calculer un flux bidirectionnel, ce qui n'est pas le cas pour CHIMERE. Pour simplifier la comparaison entre les modèles, le point de compensation calculé par OPS-ST est désactivé (remis à 0).

III.3.1.2. Cas « semi-réel »

Pour générer les classes d'occupation des sols, nous avons aussi utilisé des typologies paysagères (Lazrak et al., 2014). Les classes ont été établies en fonction de divers critères de classification (type de culture, rotation annuelle...). Ces données nous fournissent des cartes d'occupation des sols avec une résolution élevée, adaptée à notre domaine d'étude pour différentes saisons et années. Nous avons ensuite transformé et simplifié les cartes d'occupation des sols pour qu'elles soient exploitables par les deux modèles. Une carte d'utilisation des sols a été établie à partir des typologies paysagères pour le domaine de simulation dans le cas du bassin versant du Blavet en Bretagne. La taille des mailles de cette carte est de 25 m x 25 m avec des classes qui correspondent à celles requises par les deux modèles. Cette carte a été ensuite adaptée aux formats de chaque modèle (Fig. III.4). Pour calculer les résistances de surface, les deux modèles utilisent aussi les paramètres de surface fournis par la carte d'occupation des sols (classes d'occupation, longueur de rugosité...). Les résistances de surface sont calculées par une moyenne pondérée qui dépend de la résolution de la carte et des deux modèles. Cette méthodologie est la même pour les deux modèles et elle permet de calculer une résistance moyenne pondérée par les surfaces des différentes classes d'occupation des sols.

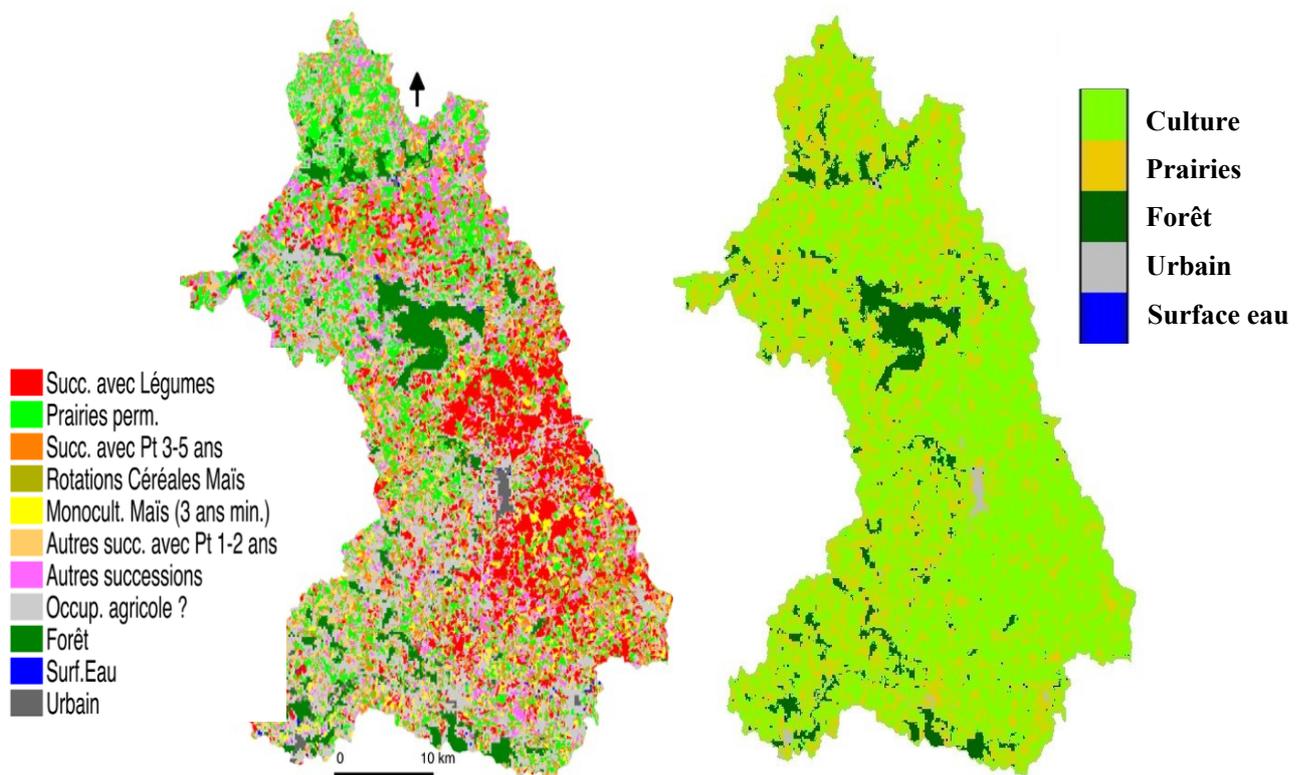


Figure III.4: Adaptation des typologies paysagères pour leur utilisation par les modèles atmosphériques : (a) Typologie paysagère d'origine (Lazrak et al., 2014), (b) Typologie paysagère adaptée pour le cas semi-réel.

III.3.2. La météorologie

Pour le modèle CHIMERE, les données météorologiques sont calculées à partir des modèles régionaux, tels que WRF (Skamarock et al., 2007) et MM5 (Dudhia, 1993). Pour utiliser ces données météorologiques disponibles dans divers formats avec différentes résolutions spatiales, CHIMERE contient plusieurs préprocesseurs pour homogénéiser et mettre en forme ces données, afin de fournir un fichier météorologique standard lisible par le modèle. Pour tous les travaux présentés, nous avons utilisé la base de données des simulations WRF pour générer des données météorologiques et construire nos cas d'étude. Ce choix a été effectué pour fournir des données météorologiques réalistes et correspondant au format d'entrée de CHIMERE. Pour le modèle OPS-ST, les données météorologiques requises sont moins nombreuses, il s'agit de données horaires pour la vitesse du vent, la direction du vent, le rayonnement global et la température de l'air. Si les processus de dépôt humide doivent être inclus, les informations sur les événements de précipitations sont également nécessaires (intensité et durée). Les données météorologiques du modèle WRF sont utilisées pour les deux modèles. Le choix de cet ensemble de données a été effectué parce qu'il est utilisé dans le modèle CHIMERE, qu'il est aisé à modifier pour réaliser

différents tests, et parce qu'il couvre toute l'Europe. Les données météorologiques utilisées pour les deux modèles représentent des données horaires fournies par le modèle WRF pour la Bretagne.

III.3.2.1. Cas d'étude idéalisé

Pour construire les données météorologiques pour le cas d'étude idéalisé, nous avons à prendre en compte deux contraintes :

- disposer de vents définis, unidirectionnels et de vitesse définie, afin de faciliter l'interprétation des expériences,
- disposer de profils de température cohérents, ainsi que d'une valeur pour le rayonnement UV/VIS incident,
- enfin, pouvoir en déduire de coefficients de mélange verticaux et de résistance turbulente.

Pour répondre à ces contraintes, nous avons fixé la vitesse de vent à 10 m de hauteur à des valeurs distinctes entre 1 et 8 m s⁻¹. Le calcul du profil de vent n'a pas été modifié pour OPS-ST (voir section III.2.3). Pour CHIMERE, le profil de vent est calculé comme pour OPS-ST avec une formulation logarithmique. Cette approche nécessite de définir des classes de stabilité similaires aux classes de Pasquill en fonction des paramètres de stabilité (longueurs de Monin Obukov L) indiquées dans le tableau III.6, ce qui fournit les profils logarithmiques de vent indiqués dans la figure III.5. Notons que le choix d'un des quatre profils de vent impactent peu les résultats, probablement parce que les concentrations d'ammoniac restent concentrées proche de la surface. La figure III.6 montre aussi que les résultats obtenus, que nous anticipons ici, ne dépendent que peu du profil du vent choisi. Nous avons ainsi retenu le profil de vent intermédiaire neutre N1 pour le cas d'étude.

Nous ne disposons pas de profils de températures complètement cohérentes avec les vitesses de vent (plutôt conditions anticycloniques pour les vents faibles, régime de vent océanique pour les vents plus forts). Nous avons ainsi choisi les profils de température, d'humidité et le rayonnement pour 5 jours au mois de juin (1-5 juin 2013) au-dessus de la Bretagne avec des conditions de vent contrastés. Au moins, cette démarche nous permet-elle de disposer de profils de température auto-cohérents.

Les profils de vent et de température ainsi obtenus permettent ensuite au préprocesseur météorologique de CHIMERE de calculer les paramètres de turbulence (u_* , kz , R_a).

Pour CHIMERE, ces données météorologiques sont interpolées pour chaque maille du domaine ainsi que pour chaque couche verticale. Pour OPS-ST, les données météorologiques sont

moyennées et donc homogènes sur tout le domaine de simulation, ce qui génère un problème de comparaison objective des dépôts avec des données météorologiques différentes entre les deux modèles.

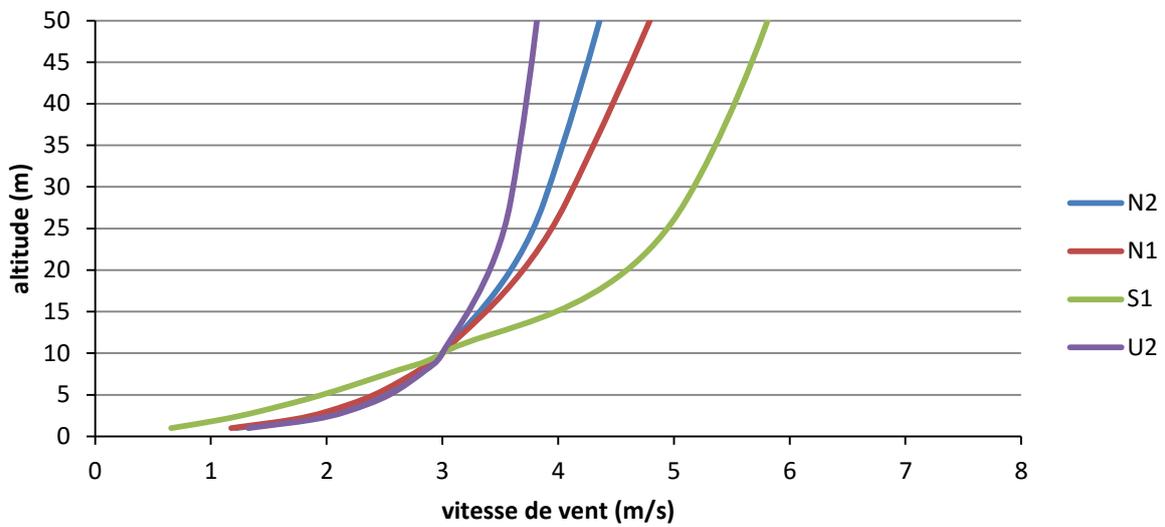


Figure III.5 : Profil vertical de vent pour différentes classes de stabilité utilisées dans OPS-ST. $z_0 = 0.2$ m, $u(z_1) = 3$ m/s, u_* et L sont calculés à partir du tableau III.6.

Tableau III.6 : Quelques paramètres météorologiques calculés en fonction des classes de stabilité (U : instable ; N : neutre ; S : stable). [Sauter et al., 2015]

	Unité	U1	U2	N1	S1
L	m	- 47	- 64	196	6

Différentes vitesses de vent ont été utilisées pour quantifier l'effet des conditions météorologiques sur les dépôts secs de NH_3 . Les précipitations en entrée des deux modèles sont nulles.

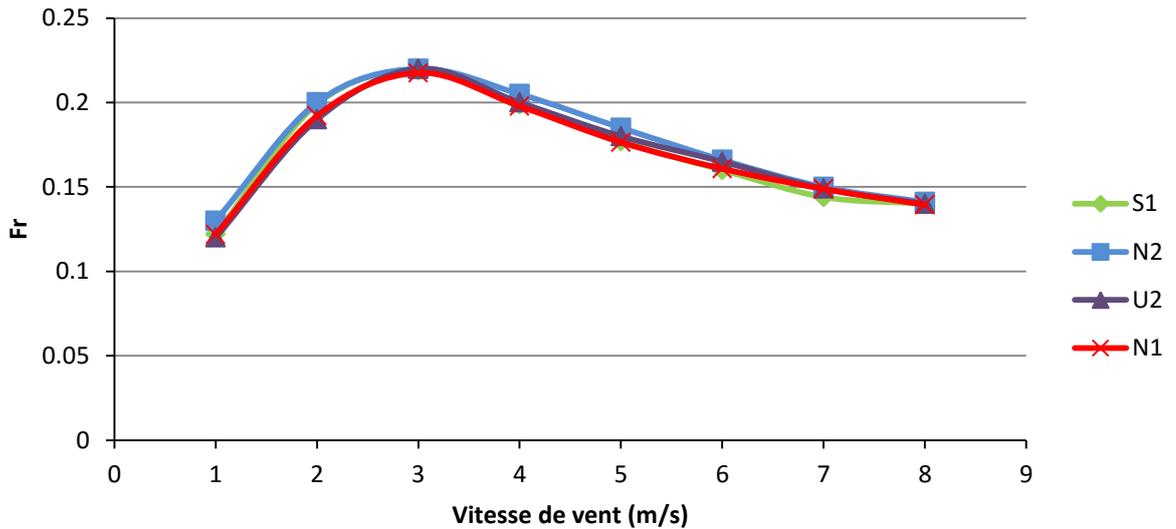


Figure III.6 : Fraction de NH_3 émis et déposé sur le domaine en fonction de la vitesse de vent et pour différentes classes de stabilités.

III.3.2.2. Cas d'étude « semi-réel »

Comme pour le cas d'étude idéalisé, nous avons utilisé les données météorologiques du modèle WRF. Pour CHIMERE, les paramètres météorologiques sont calculés pour trois domaines imbriqués (de 9, 3 et 1 km) afin d'assurer une résolution maximale des données pour les différentes tailles de mailles (Fig. III.7). Pour prendre en compte l'effet de la saisonnalité des données météorologiques ainsi que leurs effets sur les résultats de simulation, les champs météorologiques ont été calculés sur une année entière pour les trois domaines. Les champs spatialisés issus des simulations WRF ont été interpolés par le préprocesseur météorologique sur le domaine de simulation CHIMERE. Ce choix a été effectué pour identifier l'effet de la météorologie sur les résultats de simulation et les interactions possibles en fonction de la taille des mailles et du domaine de simulation.

Pour OPS-ST, les données météorologiques ont aussi été calculées à partir du modèle WRF. Toutefois, étant donné que les paramètres météorologiques ne sont pas spatialisés dans le modèle OPS-ST, une moyenne spatiale a été utilisée pour tout le domaine de simulation. Le calcul du profil de vent n'a pas été modifié pour les deux modèles.

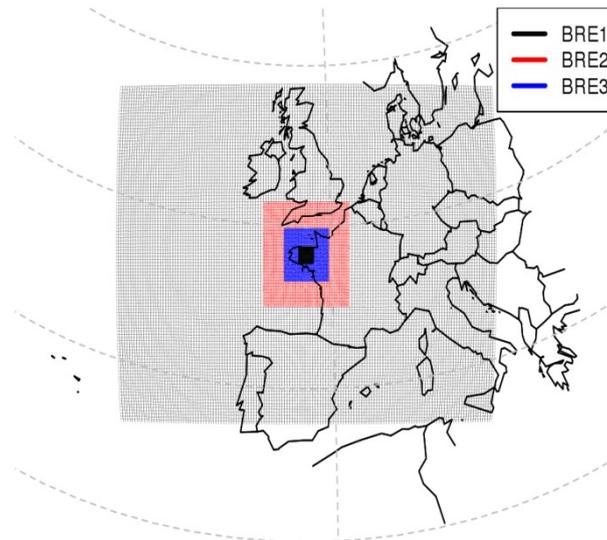


Figure III.7 : Domaines imbriqués WRF pour le calcul des données météorologiques.

III.3.3. Les émissions

Les sources émettrices peuvent être paramétrées en fonction de l'emplacement, de la hauteur et du diamètre de la source, du taux d'émission, du contenu en chaleur, de la dispersion verticale de l'émission initiale, du type de variation diurne (par exemple pour le trafic) et des espèces polluantes. Pour les deux modèles, les sources ont été placées à proximité de la surface du sol, ce qui est une approximation convenable pour les sources telles que les bâtiments d'élevage. Dans OPS-ST, l'ammoniac est émis à une hauteur de 3 mètres. Dans CHIMERE, les émissions sont affectées à la première couche du modèle qui est située entre la surface du sol et une hauteur d'environ 25 m. Cela produit une dilution artificielle initiale des émissions.

III.3.3.1. Cas d'étude idéalisé

Les sources d'émissions ont été distribuées d'une manière uniforme sur tout le domaine. Cette distribution spatiale uniforme a pour but de quantifier les interactions possibles entre les différentes sources en fonction du modèle utilisé et de la taille des mailles. Les 25 sources ponctuelles utilisées pour cette étude ont le même taux d'émission et représentent des taux d'émission réalistes pour des bâtiments d'élevage situés en Bretagne. Pour toutes les simulations avec des tailles de mailles différentes, la quantité totale de NH_3 émis dans le domaine est constante. La modification de la taille des mailles pour chaque modèle agit directement sur l'intensité d'émission par les mailles. Dans OPS-ST, des sources ponctuelles sont utilisées pour toutes les simulations avec des tailles de mailles différentes, tandis que CHIMERE utilise des sources surfaciques (Fig. III.8).

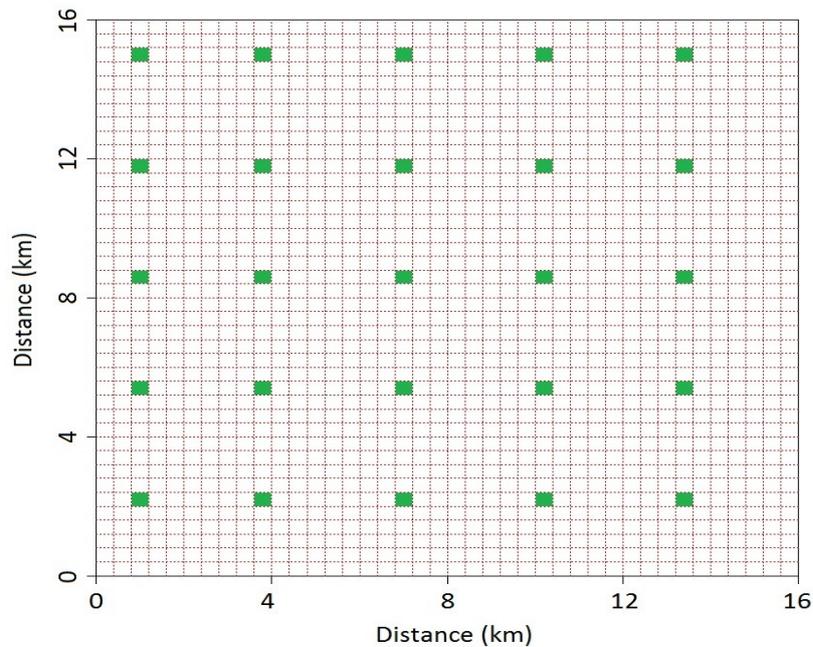


Figure III.8: Distribution spatiale des sources d'émissions pour le cas d'étude idéalisé. La taille de maille représentée est de 400 m.

III.3.3.2. Cas d'étude « semi-réel »

Contrairement au cas d'étude idéalisé, les sources utilisées pour le cas d'étude « semi-réel » ont des taux d'émission différents, ce qui correspond à des fermes de différentes tailles. Les émissions utilisées pour ce cas sont celles de la région de Naizin (Morbihan, Bretagne), un sous-bassin versant du Blavet et situé au sud-est de ce bassin (Fig. III.9).

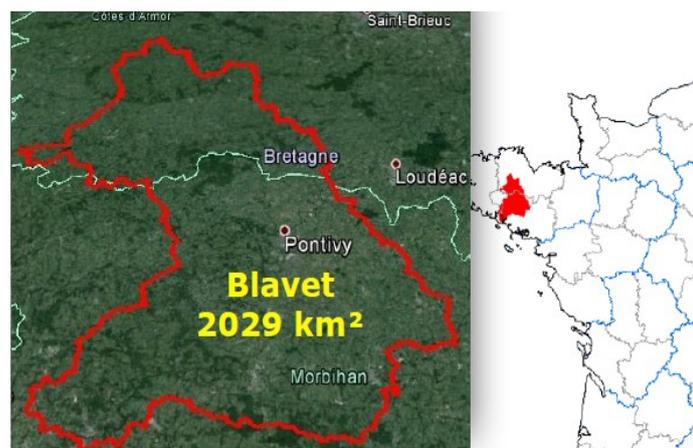


Figure III.9: Localisation géographique du bassin versant du Blavet.

Une enquête menée par ailleurs par les collègues de l'UMR INRA-AgroCampus SAS sur le sous-bassin de Naizin, situé au sud de Pontivy, a permis de récolter des informations sur les effectifs et les types d'animaux dans les élevages. Les taux d'émission ont été calculés en fonction du nombre d'animaux par ferme et aussi des facteurs d'émissions. Ce procédé a permis de calculer un taux annuel d'émission suivant deux sources différentes : bâtiments d'élevage et épandage ou stockage de lisier. Les positions des différentes fermes ont été relevées par un système GPS, ce qui permet d'avoir une distribution spatiale réaliste (Fig. III.10, Tab. III.7).

Tableau III.7 : Coordonnées géographiques GPS des sources d'émissions et taux d'émissions pour le cas semi-réel.

Id	Latitude	Longitude	Emission (g/s)
1	48° 0'53.08"N	2°49'42.21"O	1.74
2	48° 0'19.22"N	2°49'26.16"O	1.97
3	48° 0'06.11"N	2°48'47.54"O	2.89
4	48° 0'26.66"N	2°50'51.78"O	1.27
5	48° 0'55.08"N	2°48'50.71"O	1.97
6	47°59'07.88"N	2°51'05.20"O	2.08
7	48° 0'04.45"N	2°51'20.96"O	1.27
8	48° 0'39.69"N	2°49'07.64"O	2.43
9	47°58'27.72"N	2°48'51.91"O	3.47
10	48° 0'10.68"N	2°49'07.63"O	1.39
11	48° 0'30.31"N	2°50'46.89"O	1.39
12	47°58'43.76"N	2°50'39.82"O	4.98
13	48° 0'45.29"N	2°48'17.00"O	2.08
14	48° 1'13.22"N	2°51'27.59"O	0.46
15	48° 1'26.10"N	2°50'36.20"O	0.05
16	48° 0'43.52"N	2°51'23.64"O	0.01
17	48° 0'56.84"N	2°50'02.34"O	0.12
18	48° 0'23.38"N	2°51'32.39"O	1.39
19	48° 0'04.34"N	2°50'48.52"O	0.81
20	48° 1'13.42"N	2°50'11.00"O	2.31
21	48° 1'21.78"N	2°50'33.46"O	1.74
Total			112.4 ton/an

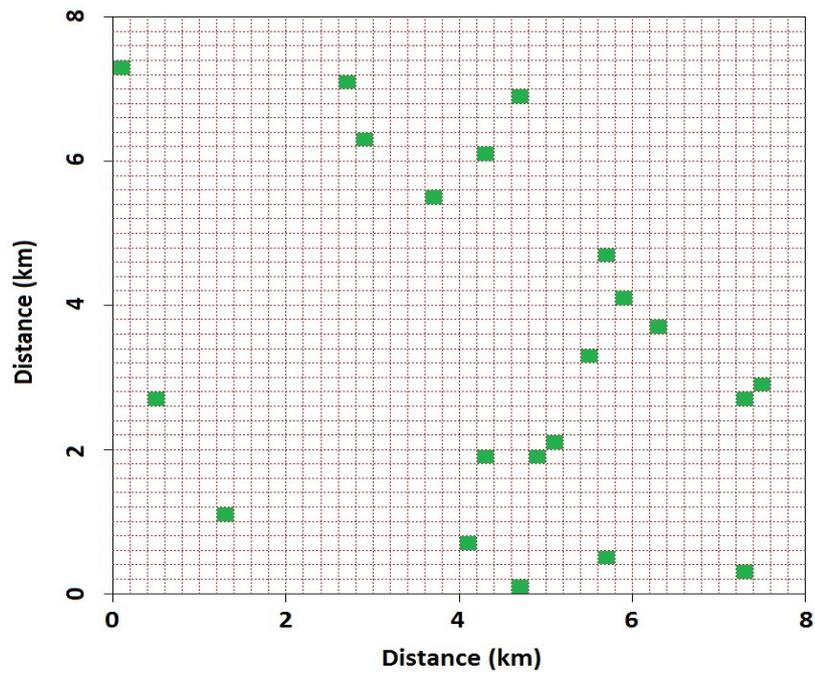


Figure III.10: Distribution spatiale des sources d'émissions pour le cas semi réel. La taille de maille représentée est de 200 m.

Chapitre IV: Comparison of dry ammonia deposition in a regional Eulerian chemistry and a landscape scale Gaussian plume model

**Publication prête à être soumise à la revue
“Environmental Pollution”**

Résumé

Les activités agricoles sont les principales sources d'ammoniac (NH_3) émis dans l'atmosphère. A fortes doses, les dépôts secs de NH_3 peuvent avoir un impact sur les écosystèmes sensibles. Les modèles régionaux de dispersion, de transport et de dépôt de NH_3 ont tendance à sous-estimer ou à surestimer les flux d'ammoniac, particulièrement à proximité des sources. Nous avons comparé les dépôts secs de NH_3 simulés avec des modèles fonctionnant habituellement à une échelle locale pour l'un et à une échelle régionale pour l'autre, sur des cas d'étude théoriques idéalisés et des cas d'étude représentatifs de paysages semi-réels. Ces cas d'étude ont été caractérisés par diverses conditions de simulation prenant en compte différentes tailles de maille, diverses caractéristiques des sources et des puits de NH_3 (occupations des sols, localisation, intensité et hauteur des sources ponctuelles d'émissions) et diverses conditions météorologiques. Nos résultats ont montré que les deux modèles fournissent des prédictions différentes des concentrations et des dépôts secs moyens de NH_3 sur le domaine d'étude. Ce comportement différent est essentiellement dû aux formalismes différents des modèles et à la sensibilité des modèles aux facteurs d'entrée, en particulier la taille des mailles. Cela confirme que les modèles régionaux, simulant des flux de NH_3 avec des grandes tailles de maille ne peuvent pas prédire avec une précision « acceptable » la variabilité spatiale des dépôts secs de NH_3 sur des paysages hétérogènes, en particulier à proximité des sources.

IV. Comparison of dry ammonia deposition in a regional Eulerian chemistry and a landscape scale Gaussian plume model

Niramson Azouz ^{a,*}, Jean Louis Drouet ^a, Matthias Beekmann ^b, Guillaume Siour ^b, Roy Wichink Kruit ^c, Pierre Cellier ^a

^a UMR ECOSYS, INRA, AgroParisTech, Université Paris-Saclay, F-78850, Thiverval-Grignon, France

^b UMR LISA UMR7583, CNRS, UPEC, UPD, F-94010, Créteil, France

^c RIVM, 3720 BA Bilthoven, The Netherlands

Abstract

Agricultural activities are the principal sources of ammonia emitted into the atmosphere. High ammonia deposition may impact sensitive ecosystems. Regional models of NH₃ dispersion, transport and deposition may under- or overestimate ammonia fluxes. We compared NH₃ dry deposition simulated with local and regional models on different idealized scenarios characterized by various initial conditions: grid cell size, characteristics of the sources and sinks of NH₃, and meteorological conditions. Our results showed that both models provide similar predictions of average NH₃ concentration and dry deposition over the study domain. However, the differences of model formalism and changes in input data and model parameters especially grid cell size provide different spatial patterns of NH₃ dry deposition and concentration. This confirms that regional models performing with large grid cell sizes cannot predict accurately patterns of NH₃ dry deposition on heterogeneous landscapes in terms of NH₃ fluxes.

Keywords

Dispersion model, atmospheric ammonia, dry deposition, sub-grid variability

* Corresponding author at: UMR ECOSYS, route de la ferme, F-78850, Thiverval-Grignon, France. Email address: jean-louis.drouet@inra.fr

IV.1. Introduction

Ammonia (NH₃) emitted into the atmosphere from agricultural sources has an impact on sensitive ecosystems either through elevated ambient concentrations or deposition to vegetation and soil surfaces (Bobbink et al., 1988, 2010; WallisDeVries et al., 2017). Ammonia deposition may lead to eutrophication and acidification of sensitive ecosystems, causing changes in biodiversity

(Krupa, 2003; Cape et al., 2009; Pitcairn et al., 2009; Hicks et al., 2014). Potential impacts of agricultural emissions to nearby sensitive ecosystems are usually assessed using short-range atmospheric dispersion models to estimate mean annual atmospheric concentration and total annual deposition of NH_3 on ecosystems. The evidence of the impacts of NH_3 concentration on vegetation made it possible to define ‘critical levels’ and ‘critical loads’ for NH_3 exposure.

Atmospheric ammonia concentrations are the highest near NH_3 sources and decrease rapidly with distance due to atmospheric dispersion and dry deposition, over a few hundreds of meters to a few kilometres from a source. Taking into account the spatial variability of deposition of short-lived pollutants such as ammonia is especially important when assessing its impacts on ecosystems. Sutton et al. (1998) compared deposition estimates based on different scales, ranging from field and landscape scales to national scale. They modelled emission, transport and deposition within a landscape of 5 km x 5 km in England using a grid cell size of 50 m. They concluded that, due to the spatial variability of NH_3 , the quality of the assessment of environmental impacts depended on the spatial resolution of the data used for assessing deposition. Dragosits et al. (2002) provided a more detailed analysis at the landscape scale and showed that the expected impacts of NH_3 dry deposition were highly variable in space and depended on land use and model resolution. Many papers attempted to compare and validate different models used for assessing NH_3 dry deposition at the local scale (Loubet et al., 2001; Oxley et al., 2007; Theobald et al., 2012) and showed that models performed acceptably. Up to now, Eulerian and Gaussian models have not been compared or associated to simulate the dispersion of NH_3 emitted from agricultural sources.

This paper aims at evaluating the sub-grid variability of models simulating NH_3 emissions, transport and dry deposition typically at regional scale (i.e. several thousands of square kilometres) from models performing at a more local scale (i.e. landscapes of a few tens of square kilometres). To achieve this aim, we compared two atmospheric transport and dispersion models which are widely used to simulate air quality (CHIMERE and OPS-ST). We performed simulations for simple idealized scenarios built using different characteristics for NH_3 emissions and deposition surfaces, different grid cell sizes and meteorological conditions. A general comparison framework was developed and tested to identify the effect of these factors on the patterns of NH_3 dry deposition and concentration.

IV.2. Materials and methods

IV.2.1. The models

IV.2.1.1. The CHIMERE model

Overall description

The CHIMERE model is an Eulerian off-line chemistry-transport model (CTM; Menut et al., 2014). The model was used for analysing pollution events (Vautard et al., 2005), scenarios and chemical regimes (Beekmann and Vautard, 2010), operational forecasts (Honoré et al., 2008) or impact of pollution on health (Valari and Menut, 2010) and vegetation (Anav et al., 2011). The key processes affecting the chemical concentrations represented in CHIMERE are emission, transport (advection and mixing), chemistry and deposition. External forcings are required to run a simulation: meteorological data, land use data, primary pollutant emissions, chemical boundary conditions (Fig. IV.1). Using these input data, CHIMERE calculates and provides the atmospheric concentrations of several tens of gas-phase and aerosol species over local to continental domains (from 1 km to 1 degree resolution). The CHIMERE model proposes many different options for simulations which makes it also a powerful research tool for testing the effect of various parameterizations and hypotheses on model predictions. Its use is relatively simple as long as input data are correctly provided. It can run with several chemical mechanisms, simplified or more complex. In this study, CHIMERE was used to simulate only NH₃ emission, mixing and transport, and dry deposition. Due to the short residence time of NH₃ set in the model (i.e. a few hours), its chemistry and interaction with aerosols was neglected.

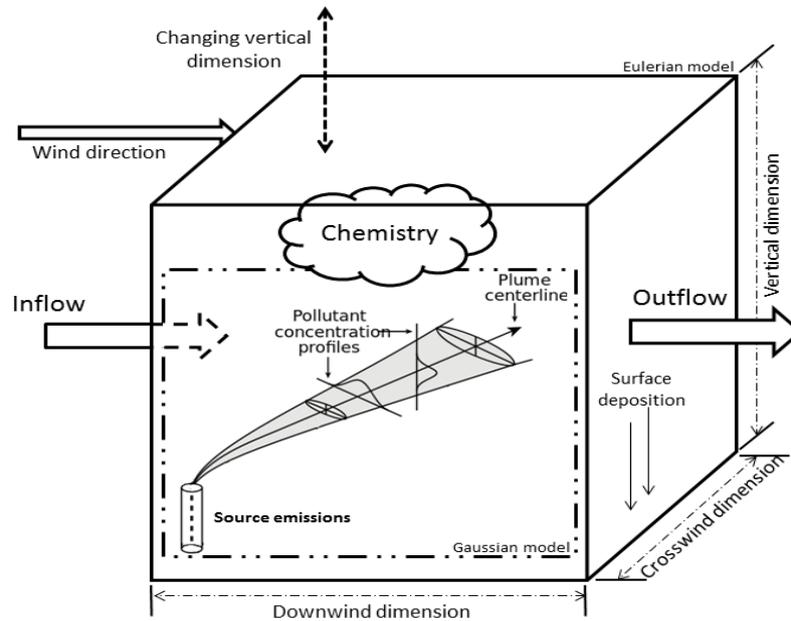


Figure IV.1: General principle of an Eulerian chemistry-transport model such as CHIMERE (the box) and a Gaussian plume model such as OPS-ST (dashed lines within the box).

Domain set-up and grid cell size

Resolutions of quasi-rectangular horizontal domains in CHIMERE may vary from about one kilometre to one hundred kilometres. The lower boundary of 1 km is imposed by the absence of horizontal mixing. One way grid-nesting is optional. The model uses any number of vertical layers described in hybrid sigma–pressure ($\sigma - p$) coordinates. The pressure p_k , in hPa at the top of each layer k is given by the following formula:

$$p_k = a_k p_0 + b_k p_{surf} \quad (\text{IV.1})$$

where p_{surf} is the surface pressure, and p_0 is a reference state pressure ($p_0 = 1000 \text{ hPa}$). Coefficients a_k and b_k can be provided by the user or calculated by the model.

Horizontal transport and vertical turbulent mixing

The second-order van Leer (1979) scheme was used for horizontal advection. Its advantages were low computational cost and good accuracy for transport of high concentrations in plumes. Horizontal turbulent fluxes were not considered, but appeared in general from numerical noise of the advection scheme. However, for the special experiment in this work with wind direction chosen as parallel to the longitude axis of the grid, cross-wind horizontal mixing was removed. The formulation used vertical K-diffusion following the parameterization of Troen and Mahrt (1986), without counter-gradient term. In each model column, diffusivity $K(z)$ was calculated as:

$$K_z = kw_a z \left(1 - \frac{z}{h}\right)^{\frac{1}{3}} \quad (\text{IV.2})$$

where w_a is a vertical scale given by similarity formula, h is the boundary layer height and z the height above ground level.

In the stable case (surface sensible heat flux < 0): $w_a = \frac{u_*}{\left(1 + \frac{4.7z}{L}\right)}$

In the unstable case: $w_a = (u_*^3 + 2.8ew_*^3)^{1/3}$

where $e = \max(0.1, z/h)$, L is the Monin-Obukhov length, w_* is the convective velocity scale, u_* is the friction velocity. A minimal $K(z)$ is assumed, with a value of $0.01 \text{ m}^2 \text{ s}$.

Dry deposition

The dry deposition process is commonly described through a resistance analogy proposed by Wesely (1989). The deposition process is a sink and only acts on a concentration c along the vertical profile:

$$\Delta c = \frac{\partial}{\partial z} (v_d \cdot c) \quad (\text{IV.3})$$

where v_d is the dry deposition velocity. For each gaseous species or particles, deposition is due to three different processes. First, turbulent diffusivity is needed to estimate the aerodynamic resistance R_a . Second, the diffusivity near the ground level, in the ‘laminar’ layer, is needed to estimate the surface resistance R_b . Third, for gaseous species only, the water solubility of species is needed to estimate the canopy resistance R_c .

For gaseous species, dry deposition velocity v_d was expressed as:

$$v_d = \frac{1}{R_a + R_b + R_c} \quad (\text{IV.4})$$

where R_a is the aerodynamic resistance which depends on turbulent parameters: the Monin-Obukhov length L , the friction velocity u_* and the dynamical roughness length z_0 :

$$R_a = \frac{1}{ku_*} \left[\ln \left(\frac{z}{z_0} - \psi_M \left(\frac{z}{L} \right) \right) \right] \quad (\text{IV.5})$$

where k is the Kármán number ($k=0.41$), z is the height above the ground level at which the deposition velocity is calculated. Considering that the height of the first vertical cell is H_1 , R_a was

calculated using $z = H_1/2$. The ψ_M is the similarity function accounting for surface layer stability.

The quasi-laminar layer resistance for gases R_b was estimated following Hicks et al. (1987):

$$R_b = \frac{2}{ku_*} \left(\frac{S_c}{P_r} \right)^{2/3} \quad (\text{IV.6})$$

where S_c and P_r are the Schmidt and turbulent Prandtl numbers, respectively. The Prandtl number was set to $P_r = 0.72$.

The canopy resistance R_c acts only for gaseous species (Emberson et al., 2000; Simpson et al., 2003; Simpson et al., 2012). It uses different other resistances accounting mainly for stomatal and surface (plant, canopy) processes which depend on land use type and season.

The general formulation for this canopy resistance followed Erisman et al. (1994):

$$R_c = \left[\frac{1}{R_{sto} + R_m} + \frac{1}{R_{inc} + R_{soil}} + \frac{1}{R_{ext}} \right]^{-1} \quad (\text{IV.7})$$

where R_{sto} is the stomatal resistance, R_m is the mesophyll resistance, R_{soil} is the soil resistance, R_{inc} is the in-canopy resistance, R_{ext} is the canopy cuticle or external leaf resistance.

IV.2.1.2. The OPS-ST model

Overall description

The OPS-ST model is the short term version of the Operational Priority Substances (OPS) model, which is a regulatory model used to calculate yearly averaged concentration and deposition of air pollutants (especially acidifying ones) at local and national scales in the Netherlands (van Jaarsveld 2004; Sauter et al., 2015). The short term version OPS-ST calculates hourly concentration and deposition using steady-state Gaussian plume theory. It allows the use of non-gridded receptors and sources, and variable grid cell sizes. It is often used for local applications (e.g. van Pul et al., 2008; Fig. IV.1). Receptor locations used for calculating concentration and deposition can be chosen on a regular grid, with a receptor distance fixed by the user or for a number of specific locations.

Boundary layer structure

The meteorological pre-processor of OPS-ST first calculated the friction velocity (u_*), the Monin-Obukhov length (L) and the sensible heat flux (H) from measured values of solar radiation, air temperature, an estimate of cloud cover and an observed profile of wind speed. The model then

calculated the profile of vertical wind speed by using the Monin-Obukhov similarity theory (MOST, Monin et al., 1974) and assuming a power-law profile above the measurement height of wind speed, z_1 (usually 10 m above the ground level):

$$u(z) = u(z_1) \left(\frac{z}{z_1} \right)^p \quad (\text{IV.8})$$

where the power law coefficient p is derived from relations given by van Ulden and Holtslag (1985). For heights below 10 m, the logarithmic wind profile was used from the MOST theory.

In reality, wind speed data are usually available for one or two discrete observation levels. The wind speed profile is needed to describe dispersion and transport. It is a relation between wind speeds at different heights. The MOST theory makes it possible to calculate a logarithmic relation for the lower boundary layer. The general expression for wind speed at height z is:

$$u(z) = u(z_1) \frac{\left[\ln\left(\frac{z}{z_0}\right) - \psi_m\left(\frac{z}{L}\right) + \psi_m\left(\frac{z_0}{L}\right) \right]}{\left[\ln\left(\frac{z_1}{z_0}\right) - \psi_m\left(\frac{z_0}{L}\right) + \psi_m\left(\frac{z_0}{L}\right) \right]} \quad (\text{IV.9})$$

where z_0 is the friction velocity, the ψ_m functions are only valid for the surface layer ($z < |L|$). Several authors derived correction functions describing the wind speed relation up to the top of the mixing layer (Carson and Richards, 1978; Garratt et al., 1982; Holtslag, 1984; van Ulden and Holtslag, 1985). A function that can be combined with the logarithmic profile equation (IV.9) to fit the wind speed in stable conditions up to 200 m (Holtslag, 1984).

$$\psi_m\left(\frac{z}{L}\right) = 2 \ln\left(\frac{1+x}{2}\right) + \ln\left(\frac{1+x^2}{2}\right) - 2 \arctan(x) + \frac{\pi}{2}, L \leq 0 \quad (\text{IV.9.1})$$

$$\text{where } x = \left(1 - 15 \frac{z}{L}\right)^{1/4},$$

$$\psi_m\left(\frac{z}{L}\right) = -17 \left[1 - \exp\left(-0.29 \frac{z}{L}\right)\right], L > 0. \quad (\text{IV.9.2})$$

The height of the planetary boundary layer (PBL) h in stable conditions was calculated as:

$$h = \frac{c_1 u}{f} \quad (\text{IV.10})$$

where c_1 is a constant and f is the Coriolis parameter. For unstable conditions h was calculated using the rate equation of Tennekes (1973).

Basic dispersion calculations

For vertical short-range dispersion in both stable and unstable conditions, the OPS-ST model uses the Gaussian plume equation, with reflections at the ground and the top of the PBL, to calculate atmospheric concentrations at the receptor locations. The vertical dispersion coefficient (σ_z) was calculated using the MOST theory and the diffusivity vertical profile of Businger (1973). The crosswind dispersion coefficient (σ_y) was calculated according to Hanna et al. (1982) and Hanna and Chang (1992).

Dry deposition

The dry deposition of acidifying components such as ammonia was calculated using the DEPAC module incorporated in the OPS-ST model and included compensation points for ammonia following Wichink Kruit et al. (2010, 2012). The DEPAC dry deposition module was described in detail in van Zanten et al. (2010). In DEPAC, dry deposition was parameterized using the well-known resistance approach, where the deposition flux was the result of a concentration difference between the atmosphere and the earth surface and the resistance between them. Several pathways exist for deposition, each of them being characterized by its own resistance and concentration. In DEPAC three pathways are taken into account: through the stomata, through the external leaf surface and through the soil. The concentration in the stomata χ_s , at the external leaf surface χ_w or at the soil surface χ_{soil} are for historic reasons called compensation points. The deposition velocity is calculated following the equation IV.4

The canopy resistance is:

$$R_c = \left(\frac{1}{R_w} + \frac{1}{R_{inc} + R_{soil}} + \frac{1}{R_s} \right)^{-1} \quad (IV.11)$$

where R_w , R_{inc} , R_{soil} , R_s are the cuticular, in canopy, soil and stomatal resistances. The total compensation point is:

$$\chi_{tot} = \left[\frac{R_c}{R_w} + \chi_w + \frac{R_c}{R_{inc} + R_{soil}} \chi_{soil} + \frac{R_c}{R_s \chi_s} \right] \quad (IV.12)$$

The deposition / re-emission flux is:

$$F = -v_d(\chi_a - \chi_{tot}) \quad (IV.13)$$

where χ_a is the atmospheric concentration.

Depletion of the plume concentrations as a result of dry deposition was calculated using a source depletion model, which reduced the source strength. The shape of the vertical profile was also

adjusted by the model to take into account that dry deposition only occurred when the plume was at the surface level.

IV.2.2. Input data

The CHIMERE model is driven by meteorological data from regional models, such as WRF or MM5 (Skamarock et al., 2007) or global models such as ECMWF (ERA-INTERIM, IFS). To use these meteorological data available in various formats, CHIMERE contains several pre-processors to homogenize these data and deliver a standard meteorological file to be read by the CHIMERE core. For this study, we used the WRF database to generate meteorological data and create idealized scenarios. This choice provided the most realistic meteorological inputs and corresponded to the CHIMERE input format. The OPS-ST model required hourly meteorological data for wind speed, wind direction, global radiation and air temperature. If wet deposition processes were to be included then information on precipitation events would also be required (i.e. intensity and duration).

Source emission rates can be specified either hourly or as a constant value with the following parameters: location, height, diameter of the source, emission rate, heat content, initial emission, vertical spread, diurnal variation code (e.g. for traffic) and pollutant species. Receptors were specified as a grid or individually by location, height and roughness length. The roughness length and canopy resistance were fixed as constant values over the domain, so specific land use data were not necessary for this study.

IV.2.3. Idealized scenarios

The two models OPS-ST and CHIMERE were used to simulate the daily mean surface deposition of NH₃ for different grid cell sizes within a 16 km × 16 km domain. To compare simulation results from both models and how they accounted for local variability, several hypothetical idealized scenarios were designed to simulate heterogeneity in the spatial distribution of NH₃ concentration and deposition. Each scenario was a combination between different grid cell sizes, meteorological input data and surface characteristics (Fig. IV.2 and Tab. IV.1).

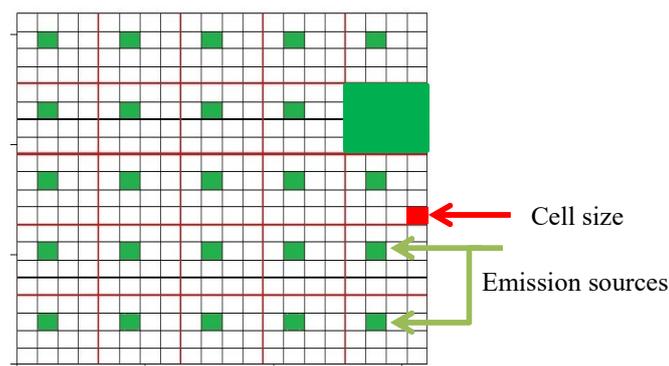


Figure IV.2: Location of the scattered NH_3 sources within the simulation domain represented by horizontal cells of 800 m size.

Table IV.1: Parameters and variables which were modified on both models to create the idealized scenarios.

Name	Signification	CHIMERE		OPS-ST
		Range of tested and (default) values		
R_c	Canopy resistance	25 to 100 s m^{-1} (25 s m^{-1})		
w_s	Wind speed	1 to 8 m s^{-1} (3 m s^{-1})		
w_d	Wind direction	0°		
r	Resolution	800 to 3200 m	50 to 1600 m	
E	Emission rate	1.35 g s^{-1}		
nE	Source number	25		
z_0	Roughness length	0.2 m		
A	Domain size	16 km x 16 km		
P	Precipitation	0 mm h^{-1}		
Z_h	Emission height	Mid first layer (around 12 m (default) or 4m)		3 m

IV.2.3.1. Domain and grid cell sizes

The size of the study domain was the same for both models. Only the grid cell size was modified for the different scenarios to quantify the spatial distribution of ammonia deposition. For practical reasons, OPS-ST output was sampled on a regular grid of receptor points spaced by 50 m. Although simulations performed with OPS-ST are given for each point in space, this sampling implied an apparent ‘horizontal resolution’, but which was of different nature than that of a chemistry-transport model. In addition, results from this initial receptor grid were averaged on quadratical surfaces of increasing length: 50, 100, 200, 400, 800 and 1600 m. This will be denoted in the further text as ‘horizontal resolution’. The aim was to make OPS-ST simulations comparable to CHIMERE simulations with horizontal resolutions of 800, 1600 and 3200 m.

IV.2.3.2. Meteorological conditions

In order to perform our idealized simulations, we needed to fix a well-defined wind speed and direction, and coherent meteorological parameters, shared for both models. This allows to simplify the interpretation and the model comparison of spatial distribution of NH_3 concentration and dry deposition. To do so, we chose the following strategy:

- For base case simulations, a default wind speed of 3 m s^{-1} at 10 m height was chosen because it was representative of the average wind speed in agricultural areas in continental Europe (Asman, 1998). For additional sensitivity tests, wind speed at 10 m height was varied from 1 to 8 m s^{-1} to quantify the effect of meteorological conditions on NH_3 deposition (Fig. IV.3 and Tab. IV.2). Wind direction was from the left to the right of the domain, that was purely westerly.
- For OPS-ST, a wind profile was automatically reconstructed from wind speed at 10 m height, as stated in section IV.2.1.2 (logarithmical wind speed profile below 10 m height, power law above). For CHIMERE, a logarithmic wind speed profile was reconstructed in a pre-processing step, using similar equations used as in OPS-ST, namely different stability classes defined within OPS-ST (Sauter et al., 2015) (Fig. IV.3). We retained an intermediate wind profile for neutral stability (N1) for further calculations, but results of this study were similar for other classes. Logarithmic wind speed profiles were strictly valid only in the surface layer (first 100 m above ground level), but most of NH_3 was present near the ground level during our experiments.
- We took temperature, humidity profiles, radiation, and surface heat fluxes from WRF simulations mentioned in section IV.2.2 for a June period over Brittany.
- We injected wind speed, temperature, radiation and relative humidity information into the CHIMERE meteorological pre-processor, which calculated parameters related to vertical mixing (e.g. vertical mixing coefficients, friction velocity, turbulent resistance R_a).
- The same information was made available to OPS-ST, which in turn calculated the same parameters related to vertical mixing (vertical mixing coefficients, friction velocity, turbulent resistance R_a , ...).

Although wind, temperature and radiation data were not strictly coherent, at least our procedure ensured common use meteorological data for both models, allowing diagnosis of turbulent parameters in each model.

The meteorological dataset used for both models was a five days period of hourly data initially provided by the WRF model and modified for the different scenarios. For CHIMERE,

meteorological data were interpolated for each cell of the domain. The OPS-ST model used an homogenous meteorology for the whole study domain. The mean value of each meteorological parameter calculated for CHIMERE was also used as meteorological input for OPS-ST.

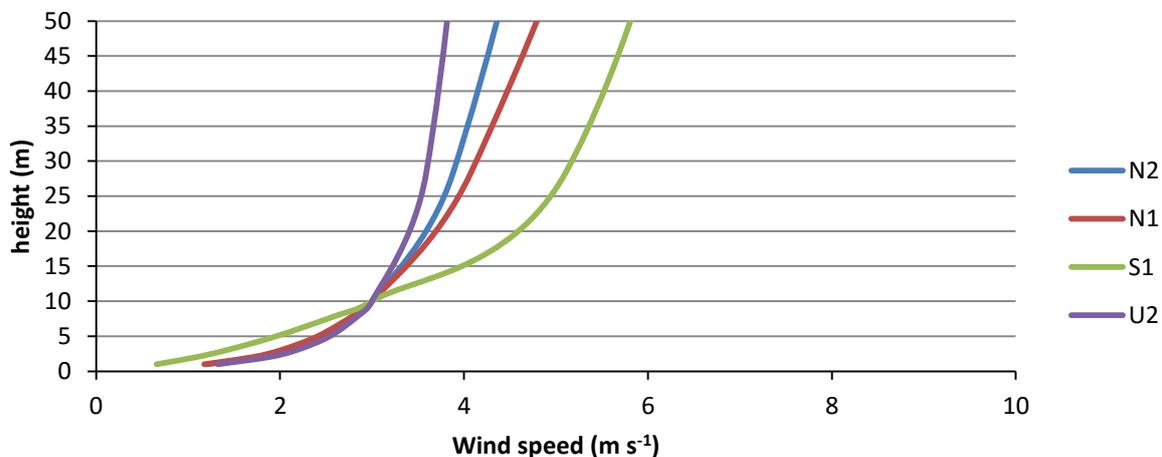


Figure IV.3: Vertical wind profile used in CHIMERE and computed for the stability/mixing height classes used in OPS-ST. $z_0 = 0.2$ m, $ws(10\text{ m}) = 3\text{ m s}^{-1}$.

IV.2.3.3. Characteristics of ammonia sources

Ammonia was assumed to be emitted near the ground level which is a suitable approximation for agricultural sources (livestock buildings). In OPS-ST NH_3 was emitted at 3 m height. In CHIMERE, emissions affected the first layer of the model which extends from the surface to a height of about 25 m (Tab. IV.1). Sources were distributed over the study domain in a regular manner (Fig. IV.2). All sources had the same emission rates of 4.86 kg h^{-1} for a total amount of 1065 ton y^{-1} for the whole study domain. This rate was chosen to simulate typical emission rate for livestock building in the Brittany region (EMEP, <http://www.ceip.at>). Within OPS-ST, these sources were treated as point sources. Within CHIMERE, they were distributed over the corresponding cells, in absence of any ‘plume in grid’ treatment. For simulations at different grid cell sizes, the global amount of NH_3 emitted in the domain was thus constant but the source intensity might change. Dry deposition to the surface highly depends on canopy resistance (R_c) and roughness length (z_0). Rather than using land use dependent values calculated by both models, we used pre-set values of both models for the idealized scenarios (Tab. IV.1).

Base case simulations were performed with constant values of $R_c = 25\text{ s m}^{-1}$ within the whole study domain, but sensitivity runs $R_c = 50$ or 100 s m^{-1} were also performed. For OPS-ST and CHIMERE, it was not possible to set a constant value for R_c in the model run options, the code

needed to be adapted to fix a constant R_c value. Note that the use of compensation points in the deposition scheme of OPS-ST was surpassed because CHIMERE was unable to calculate it. The roughness length z_0 was also set to a constant value in both models ($z_0 = 0.2$ m) for base case runs, but these values varied between 0.01 m to 0.4 m for sensitivity runs. These values of R_c and z_0 tested for the different scenarios corresponded to various land use type characteristics (e.g. grassland, arable land, forest). Parameters chosen for base case and additional sensitivity runs are given in Table IV.1.

IV.3. Results and discussion

This section presents and discusses spatial patterns of NH_3 dry deposition simulated by both models that use different modelling approaches. It focuses on the sensitivity of both models to grid cell size and input data (wind speed, canopy resistance, roughness length, height of NH_3 sources). In addition, vertical profiles of NH_3 concentration simulated with both models are also presented and discussed to identify the effect of vertical dispersion on NH_3 concentration near the surface and its impact on NH_3 dry deposition.

IV.3.1. Effect of grid cell size

Figure IV.4 shows heterogeneous patterns of NH_3 dry deposition, depending on the used model, grid cell size and distance from the source. Ammonia dry deposition simulated by OPS-ST exhibited a peak close to the source and dry deposition decreased very rapidly as a function of distance: when simulated with small grid cell sizes (50 and 100 m), NH_3 dry deposition decreased by a factor 10 at a distance of about 3 km from the sources. Note that grid cell size denotes here for OPS-ST the length of surfaces over which results from the initial receptor points regularly spaced at 50 m distance are averaged. Ammonia deposition patterns strongly depended on grid cell size: dry deposition peaks close to the sources were higher for small grid cell sizes than for larger ones. This resulted from emissions grouped into small areas for small grid cell sizes and from substantial deposition in the grid cells where emissions occurred and in their neighbouring cells. For instance, the peaks of NH_3 dry deposition were 260 times higher in those cells with a grid cell size of 50 m than with a grid cell size of 1600 m (from 32 to around $0.12 \text{ kg NH}_3 \text{ ha}^{-1} \text{ d}^{-1}$).

Figure IV.5 shows average NH_3 dry deposition as a function of distance in wind direction. This means that dry deposition is averaged over all grid cells perpendicular to the wind vector, which is directed from the left to the right of the domain. In other words, average deposition was calculated for each line of grid cells at a given distance from the domain border. As expected, average dry deposition shows a pattern with periodical maxima as a function of distance, corresponding to the

geometrical set-up of sources. For small grid cell sizes, the difference between the average values of dry deposition peaks simulated with various grid cell sizes were very large (Fig. IV.5a). For OPS-ST with a grid cell size of 50 m, the peak of dry deposition was twice higher than for a grid cell size of 200 m (from 370 to 182 g ha⁻¹ d⁻¹) and three times higher than for a grid cell size of 400 m (from 370 to 137 g ha⁻¹ d⁻¹). This large variation in the height of the dry deposition peaks is due to referring constant absolute emission strengths to larger surfaces. This decrease was slower for large grid cell sizes than for small ones especially for CHIMERE. For grid cell sizes of 800 m and 1600 m (Fig. IV.5b), OPS-ST and CHIMERE calculated different maximum values of dry deposition: around 12 times and 10 times higher for OPS-ST (50 m) than for CHIMERE for grid cell sizes of 800 m and 1600 m respectively.

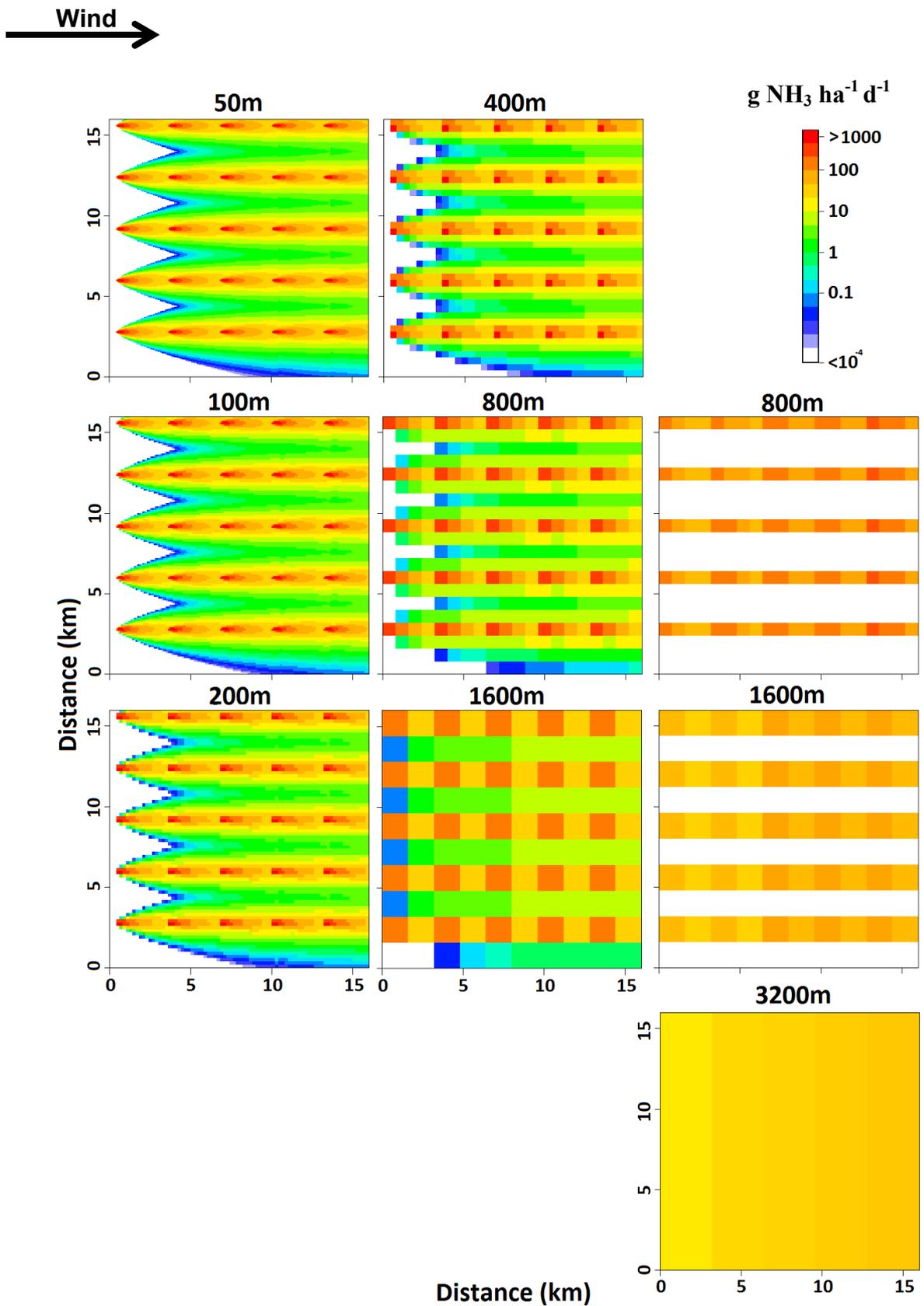


Figure IV.4: Maps of NH₃ dry deposition simulated with OPS-ST and CHIMERE for different grid cell sizes. Surface resistance, roughness length and wind speed were the same for all simulations: $R_c = 25 \text{ s m}^{-1}$, $z_0 = 0.2 \text{ m}$, $ws = 3 \text{ m s}^{-1}$.

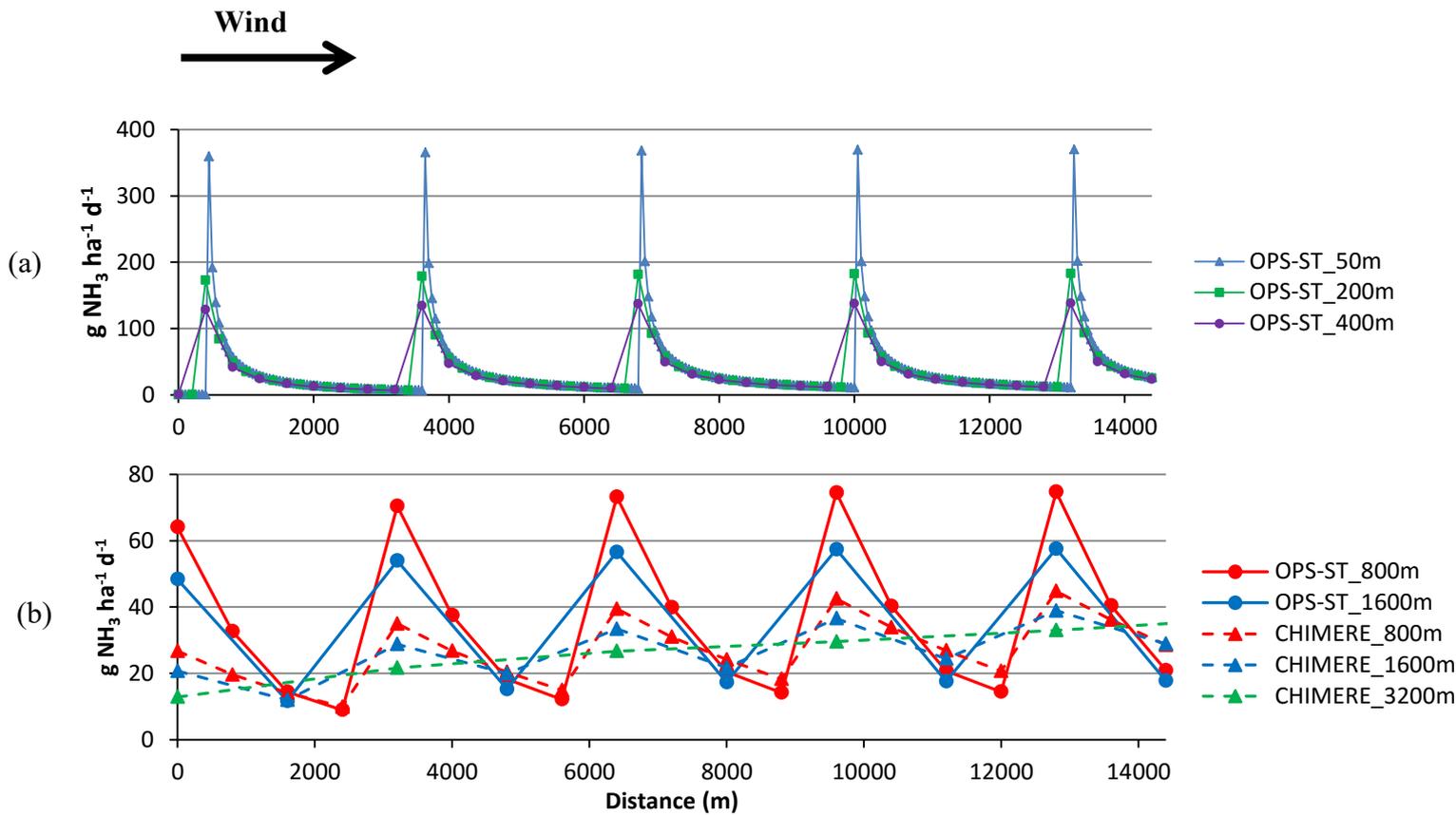


Figure IV.5: NH_3 dry deposition simulated with OPS-ST and CHIMERE for different grid cell sizes. Surface resistance, roughness length and wind speed were the same for all simulations: $R_c = 25 \text{ s m}^{-1}$, $z_0 = 0.2 \text{ m}$, $w_s = 3 \text{ m s}^{-1}$. Each point represents average dry deposition on a horizontal line of grid cells perpendicularly to the wind direction. (a) Dry deposition simulated with OPS-ST using small grid cell sizes (50, 200 and 400 m) as a function of the distance to a point source. (b) Dry deposition simulated with OPS-ST and CHIMERE using large grid cell sizes (800, 1600 and 3200 m) as a function of the distance to a point source.

Figure IV.5 shows an increase of maximum deposition with respect to the distance (especially for CHIMERE at a resolution 800, 1600 and 3200 m). This is explained by the fact that only part of emitted NH_3 was deposited close to sources. Results from OPS-ST and small grid cell sizes show that NH_3 deposition up to 2 km downwind from a source might represent up to 80 % of total dry deposition, which was in agreement with results from Loubet et al. (2009). Thus NH_3 concentrations were expected to accumulate along the wind axis, leading in turn to increased dry deposition.

Average dry deposition over the whole study domain might vary to some extent between both models (Tab. IV.2). First, the OPS-ST model simulated the same average dry deposition for different grid cell sizes. This is expected, because varying the grid cell size for OPS-ST simply consisted at resampling of results from the receptor points. Average dry deposition over the whole

study domain was nearly 30 % higher for OPS-ST than for CHIMERE with a grid cell size of 3200 m (from 35.3 to 24.8 g NH₃ ha⁻¹ d⁻¹). For CHIMERE, total dry deposition slightly decreased when grid cell size increased. This may be explained by the shift of sources near to the domain borders.

Table IV.2: Average NH₃ dry deposition (g NH₃ ha⁻¹ d⁻¹) simulated with OPS-ST and CHIMERE within the whole study domain for different grid cell sizes. Surface resistance, roughness length and wind speed were the same for all simulations: $R_c = 25 \text{ s m}^{-1}$, $z_0 = 0.2 \text{ m}$, $ws = 3 \text{ m s}^{-1}$.

Grid cell size (m)	50	100	200	400	800	1600	3200
OPS-ST	35.3	35.3	35.3	35.3	35.3	35.3	-
CHIMERE	-	-	-	-	27.0	26.3	24.8

Sensitivity of simulated dry deposition to variations in emission rate and density was not investigated in this study. Indeed, in both models NH₃ emission and deposition were decoupled, and deposition velocity did not depend on NH₃ concentration, contrary to model formulations using the ‘compensation point algorithm’.

IV.3.2. Vertical profiles of NH₃ concentration and source height

To better understand the difference between both models for predicting NH₃ dry deposition, we compared vertical concentration profiles of NH₃ near the surface. Figure IV.6 shows the vertical profile of average NH₃ concentration on the study domain simulated by both models. For CHIMERE, concentration was calculated for the first three layers (0-25 m, 25-72 m and 72-160 m). For OPS-ST, the vertical profile was calculated from NH₃ concentrations at different heights (from 1 to 30 m). The vertical profile of concentration calculated with OPS-ST shows much more variability than the vertical profile calculated with CHIMERE due to low vertical resolution in the latter model, as compared to an analytical treatment within OPS-ST. Results from CHIMERE show a step-wise decrease with height, from 36 µg m⁻³ from 0 to 25 m to 12 µg m⁻³ from 25 to 72 m. OPS-ST predicted the highest NH₃ concentration (89 µg m⁻³) at 3 m height (assumed source height). Above 3 m height, NH₃ concentration rapidly dropped to near zero at about 20 m height (Elperin et al., 2016). Thus both models simulated very different vertical distributions and surface concentrations, which then could impact on dry deposition.

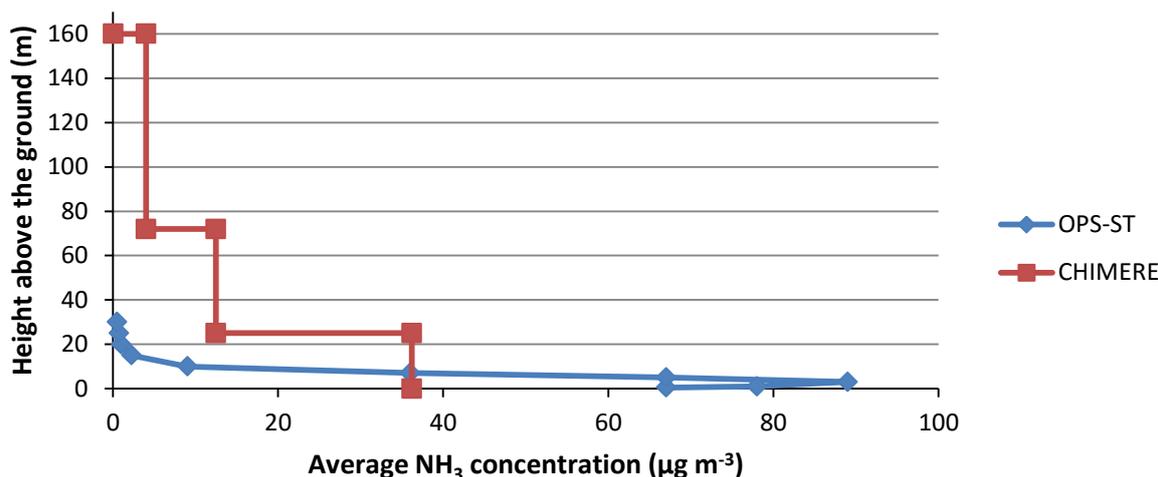


Figure IV.6: Average NH₃ concentration close to the sources for the first four layers in CHIMERE (from 0 to 25 m, from 25 to 72 m and from 72 to 160 m) and for different receptor heights in OPS-ST. Grid cell sizes are 50 and 800 m for OPS-ST and CHIMERE respectively. Surface resistance, roughness length and wind speed were the same for all simulations: $R_c = 25 \text{ s m}^{-1}$, $z_0 = 0.2 \text{ m}$, $ws = 3 \text{ m s}^{-1}$. The source height (z_h) was 3 m for OPS-ST and around 12 m for CHIMERE (mid first layer).

The main differences between the two concentration profiles might come from the initial volume of emission. In the CHIMERE model the emitted NH₃ was immediately diluted within the volume of the cell where the source was located. Thus the larger the cell, the larger the simulated dilution and the lower NH₃ concentration and deposition close to the NH₃ source.

Ammonia concentration was constant within each layer of the CHIMERE model by definition, so from the surface up to 25 m height for the first layer. Vertical mixing was efficient up to 300 m height for CHIMERE, but only up to 30 m height for OPS-ST. The description of vertical diffusion should be realistic because NH₃ was emitted from low-level sources and NH₃ dry deposition velocity was high, so that NH₃ might be deposited prior to vertical mixing within the first layer. CHIMERE underestimated NH₃ dry deposition close to the sources, by dispersing emissions instantaneously within the first layer which was extended to 25 m height. This artificially decreased the NH₃ concentration above the surface and deposition near the sources, which led to overestimate the distance of NH₃ transport. Indeed, Figure IV.5b shows that the decrease of NH₃ deposition with respect to distance from the source was smaller for CHIMERE than for OPS-ST.

Indeed, the source height is an essential parameter since it determines the initial dispersal of the plume (Raupach, 1889). Figure IV.7 shows the average NH₃ dry deposition over the whole study domain for OPS-ST and CHIMERE, as a function of different source heights. These heights are easily fixed in OPS-ST; they correspond to the middle of the fist model layer, which height is also

fixed by the user in CHIMERE. For a source height of 4 m in OPS-ST and 12.5 m in CHIMERE, the latter underestimated dry deposition as seen before. However, if source height is set to 4 m in both models, they simulated similar dry deposition. Indeed, the higher the emission source, the larger the initial dispersion and the decrease of NH_3 concentration downstream. This sensitivity test thus shows, that reduced vertical resolution and artificially increased source height, is a major reason for underestimating dry deposition in CHIMERE with respect to OPS-ST (Menut et al., 2013).

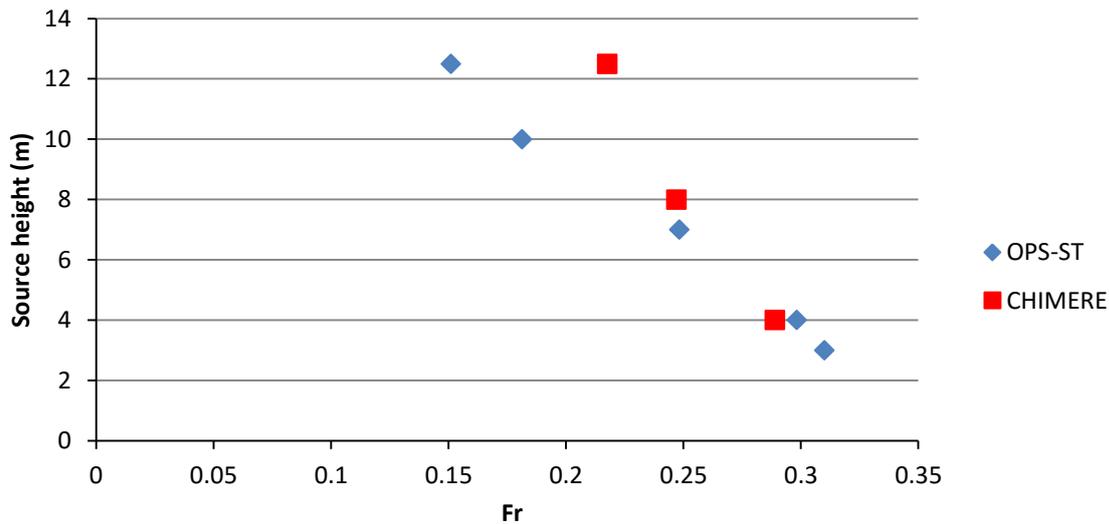


Figure IV.7: Fraction (F_r) of the emitted NH_3 that was dry deposited in the whole study domain simulated with OPS-ST (50 m) and CHIMERE (3200 m) for different source heights. Surface resistance and wind speed were the same for all simulations: $R_c = 25 \text{ s m}^{-1}$, $w_s = 3 \text{ m s}^{-1}$.

IV.3.3. Effect of wind speed (w_s) and canopy resistance (R_c)

Figure IV.8 shows the effect of grid cell size and wind speed (w_s) on NH_3 dry deposition calculated as the fraction of emitted NH_3 that was deposited within the domain (F_r). Both models showed a similar dependency of F_r to w_s . F_r increased with w_s for low w_s (less than 3 m s^{-1}), showed a maximum at $w_s = 3 \text{ m s}^{-1}$ and then decreased for larger wind speeds.

This decrease at high wind speeds (between 3 and 8 m s^{-1}) was more pronounced in OPS-ST than in CHIMERE for which F_r was slightly dependent to grid cell size (Fig. IV.8 and Table IV.3). For low wind speed (1 m s^{-1}), total dry deposition simulated with OPS-ST was 90% higher than that simulated with CHIMERE at a grid cell size of 800 m. These differences decreased for high wind speeds. For a wind speed of 8 m s^{-1} , total dry deposition simulated with OPS-ST was only around 18% higher than that simulated with CHIMERE at a grid cell size of 800 m.

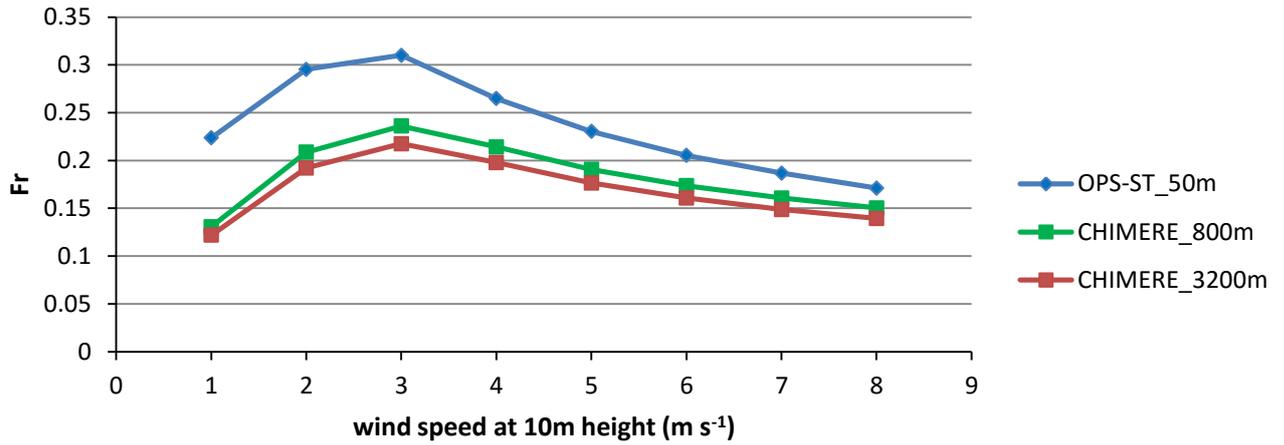


Figure IV.8: Fraction (F_r) of the emitted NH_3 that was dry deposited in the whole study domain as a function of wind speed at 10 m height for different grid cell sizes. Surface resistance and roughness length were the same for all simulations: $R_c = 25 \text{ s m}^{-1}$, $z_0 = 0.2 \text{ m}$.

Figure IV.9 shows total dry deposition as a function of wind speed for different R_c values (see also values in Table IV.3). For a given grid cell size, increasing canopy resistance R_c resulted as expected in decreasing total NH_3 dry deposition and increasing average NH_3 concentration above the surface. The effect of canopy resistance (R_c) was similar for both models. At very low wind speed (1 m s^{-1}), F_r calculated with different R_c values were similar.

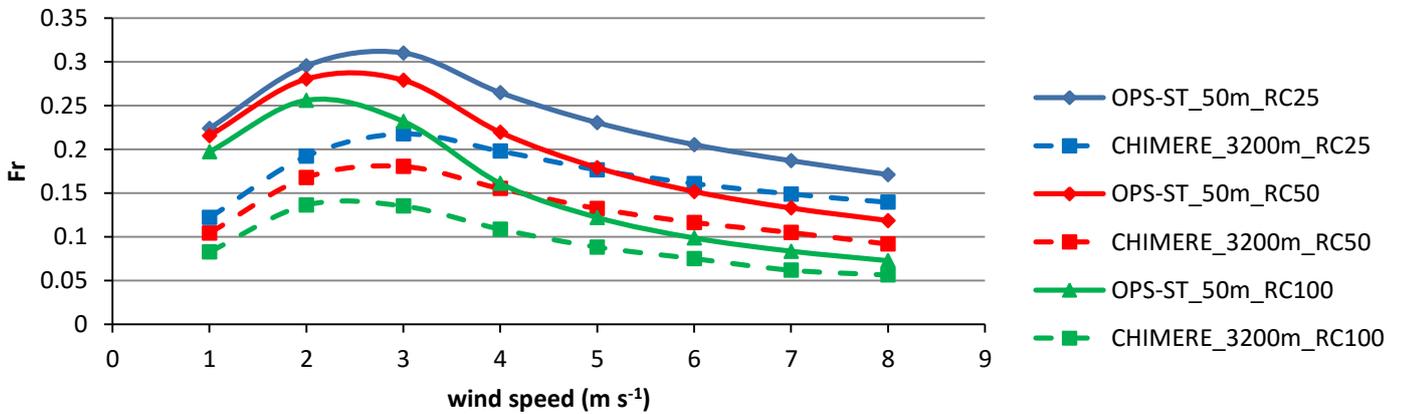


Figure IV.9: Fraction (F_r) of the emitted NH_3 that was dry deposited in the whole study domain as a function of wind speed at 10 m height for different surface resistances R_c . Grid cell size and roughness length were the same for all simulations: OPS-ST grid cell size = 50 m, CHIMERE grid cell size = 3200 m and $z_0 = 0.2 \text{ m}$.

Table IV.3. Average NH₃ dry deposition (ddep) and near surface concentration ([NH₃]) within the whole study domain for OPS-ST and CHIMERE. Average NH₃ concentration is presented for a receptor at 0.5 m height in OPS-ST and for the first layer (height of 25 m) in CHIMERE. Roughness length was constant ($z_0 = 0.2$ m). R_c , ws , ddep and Fr were respectively surface resistance, wind speed, NH₃ dry deposition and fraction of the emitted NH₃ that was dry deposited in the study domain.

	Grid cell size (m)	R_c (s m ⁻¹)	ws (m s ⁻¹)	ddep (g ha ⁻¹ d ⁻¹)	Fr	[NH ₃] (μg m ⁻³)
OPS-ST	50	25	3	35.30	0.31	3.30
	50	25	6	23.40	0.20	1.29
	50	25	8	19.50	0.17	0.98
	50	50	3	31.80	0.28	4.13
	50	50	6	17.30	0.15	1.58
	50	50	8	13.50	0.12	1.16
	50	100	3	26.40	0.23	5.36
	50	100	6	11.20	0.10	1.84
	50	100	8	8.30	0.07	1.31
CHIMERE	800	25	3	26.90	0.23	2.96
	800	25	6	19.80	0.17	1.23
	800	25	8	17.10	0.15	0.92
	800	50	3	22.35	0.20	3.18
	800	50	6	14.36	0.12	1.30
	800	50	8	11.80	0.10	0.96
	800	100	3	16.80	0.14	3.29
	800	100	6	9.27	0.08	1.35
	800	100	8	7.26	0.06	1.01
	1600	25	3	26.35	0.23	2.90
	1600	25	6	19.43	0.17	1.21
	1600	25	8	16.83	0.14	0.90
	1600	50	3	21.87	0.19	3.03
	1600	50	6	14.09	0.12	1.27
	1600	50	8	11.57	0.10	0.94
	1600	100	3	16.43	0.14	3.21
	1600	100	6	9.09	0.08	1.33
	1600	100	8	7.12	0.06	0.98
	3200	25	3	24.79	0.21	2.72
	3200	25	6	18.32	0.16	1.14
	3200	25	8	15.89	0.14	0.85
	3200	50	3	20.54	0.18	2.85
	3200	50	6	13.26	0.11	1.20
	3200	50	8	10.43	0.09	0.85
3200	100	3	15.39	0.13	3.01	
3200	100	6	8.54	0.07	1.25	
3200	100	8	6.71	0.06	0.92	

This can be explained by the little turbulence at such wind speed and the dominant effect of the R_a and R_b resistances ($R_a \sim 3000$ s m⁻¹ for $ws = 1$ m s⁻¹). R_c had a stronger effect on total dry deposition simulated for wind speeds between 2 and 3 m s⁻¹. For high wind speeds (more than 3 m

s^{-1}), and for large R_c (50 and 100 s m^{-1}), the effect of R_c was nearly linear, meaning that F_r was proportional to $1/R_c$. For this case R_c was the dominating resistance for dry deposition (R_a values encountered by CHIMERE around 17 s m^{-1}). As already noted for $R_c = 25 \text{ s m}^{-1}$, F_r decreased more sharply with wind OPS-ST than with CHIMERE.

In the following, we briefly discuss the dependences of dry deposition with respect to wind speed and canopy resistance. Wind speed might have two opposite effects on the average deposition on the study domain. High wind speed decreased turbulent (R_a) and laminar (R_b) resistances. First, increasing wind speed caused more rapid advection out of the study domain and increased mixing within the boundary layer (eq IV.2). Both effects reduced NH_3 concentration above the surface and as a result, decreased dry deposition close to the source (Fig. IV.8 and Fig. IV.9). For instance, the speed of advection scaled with $1/ws$. This qualitatively explains the decreasing part of the F_r to ws curves for $ws > 3 \text{ m s}^{-1}$. Second, at low wind speeds, R_a became limiting for deposition velocity, which was also shown in Figure IV.9, because different values of R_c had little effect on deposition. In order to understand this behaviour, we needed to understand how R_a scales with respect to ws and we analysed the different terms of equations given in section 2 relating R_a to z/L . For small z/L , R_a would only weakly depend on L and scaled proportional to $1/u_*$, and thus proportional to $1/ws$. For this case, as argued also in Asman (1998), given $[\text{NH}_3]_{\text{surface}} \sim 1/ws$, and if dry deposition is limited by R_a , it should be independent of ws . However for large z/L , R_a will still depend on L , and given $L \sim u_*^3$, and the dependence of R_a with respect to $1/ws$ or $1/u_*$ will be more than proportional. For the stable case formulation in CHIMERE, we can even have $\left(R_a \sim \frac{1}{u_*^4}\right)$ following equations IV.5. This explains the positive dependence of dry deposition with respect to wind speed for small wind speeds when R_a is the limiting resistance. This positive dependence was observed in several earlier studies (Asman, 1998; Phillips et al., 2004); it is expressed by both models, to a different extent, depending on the exact formulation of the similarity functions. As expected, this effect was more pronounced for smaller R_c values than for larger ones, when R_c became the limiting resistance already for smaller wind speeds (Fig. IV.9).

An interesting fact was also, that for all three chosen R_c values, dry deposition was larger in OPS-ST for low wind speeds (when R_a is limiting), but much more similar for large wind speeds. This could be due again to differences in source heights and concentration maxima heights in the vertical concentration profiles, at higher altitudes above the ground level in CHIMERE (12.5 m) than in OPS-ST (3 m) and leading to a larger turbulent transport distance to ground within CHIMERE.

IV.3.4. Effect of roughness length (z_0)

Figure IV.10 shows that the fraction (Fr) of the emitted NH_3 which was dry deposited on the whole study domain increased with roughness length which means that dry deposition close to the sources (e.g. farm buildings) might be very high for high z_0 . For example, Fr was 20% higher for $z_0 = 0.4$ m (e.g. forest) than for $z_0 = 0.01$ m (e.g. bare soil).

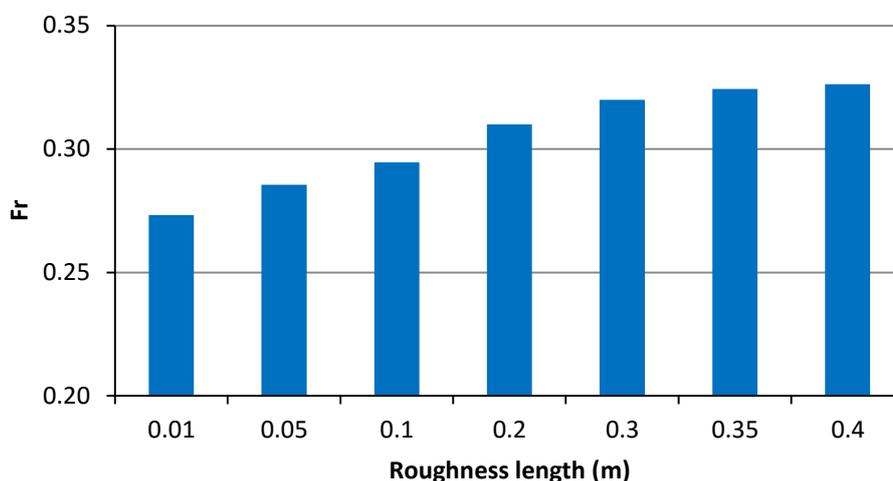


Figure IV.10: Fraction (Fr) of the emitted NH_3 that was dry deposited on the whole study domain simulated with OPS-ST for different roughness lengths. Grid cell size, surface resistance and wind speed were the same for all simulations: grid cell size = 50 m, $R_c = 25 \text{ s m}^{-1}$, $ws = 3 \text{ m s}^{-1}$.

The effect of roughness length on deposition velocity and total dry deposition might have two causes. Firstly for a given wind speed at 10 m height, wind speed decreased with roughness length near the surface, which led to increasing NH_3 concentration. Secondly turbulence was larger near the surface for larger roughness lengths which led to increasing dry deposition (eq. IV.2). Thus increasing roughness length (e.g. with a forest), might lead to increasing dry deposition near the sources and reducing transport away from the sources. Then this might lead to reducing the impact of NH_3 deposition on sensitive agroecosystems close to the sources and behind areas with high roughness length.

IV.4. Conclusions

We compared the spatial patterns of NH_3 dry deposition simulated with an Eulerian chemistry-transport model (CHIMERE) and a Gaussian plume model (OPS-ST) on simplified idealized scenarios characterized by various conditions of simulation (grid cell size, characteristics of NH_3 sources and sinks, meteorological conditions). We showed that both models provided different predictions of average NH_3 concentration and dry deposition over the whole simulation domain, despite of differences in vertical transport and mixing (CHIMERE underestimated NH_3 dry

deposition by 30%). However, the differences between the formalism of both models had an effect on vertical and horizontal dispersion and on estimates of NH₃ deposition near the sources. The model parameters and especially grid cell size provided different patterns of NH₃ concentration and dry deposition. Changing grid cell size generated changes in spatial patterns of NH₃ dry deposition: when grid cell size increased, emissions were artificially diluted. Consequently deposition peaks were lower and spatial patterns of NH₃ deposition were more uniform for large grid cell sizes, and especially those used for the CHIMERE model (> 800 m). The different sensitivity tests for the different models parameters illustrated clearly that NH₃ dry deposition at short range depends on the source height, wind speed, surface resistance, surface roughness length and surface concentration depending on vertical resolution. For these reasons, and also because NH₃ is released mainly from surface sources (e.g. croplands, grasslands), it is very important to take these factors into account to simulate NH₃ fluxes.

Such results confirm our initial hypothesis that regional models performing with large grid cell sizes cannot predict accurately realistic spatial patterns of NH₃ dry deposition on heterogeneous landscapes in terms of NH₃ sources and sinks with grid cell sizes of tens of meters, while they still capture quite well average dry deposition. Consequently, those models do not make it possible to capture exceedances of critical thresholds which may occur in heterogeneous landscapes including NH₃ sources of high intensity. Further work is needed to integrate the sub-grid variability simulated with local models into regional models. For instance, modelling NH₃ dispersion, transport and deposition near the sources in CHIMERE could be improved by using spatial statistical relationships produced from OPS-ST simulation results to better represent NH₃ dry deposition near the sources without modifying the formalism of the Eulerian CHIMERE model. Further work might also consist in testing our methodology on real landscapes and comparing simulation results with field measurements.

Acknowledgments

This work was supported by the French National Institute for Agricultural Research (Environment and Agronomy Division), the EU ECLAIRE project (grant number FP7-Environment 282910). We gratefully acknowledge L. Menut, C. Flechard and N. Flipo for useful comments on the design of the research and on results. We also thank F.J. Sauter, O. Maury and M.R. Theobald for their help in programming support, model coding and data formatting.

References

- Asman, W.A., Sutton, M.A., Schjørring, J. K., 1998. Ammonia: emission, atmospheric transport and deposition. *New Phytol.* 139(1), 27-48.
- Anav, A., Menut, L., Khvorostiyarov, D., Viovy, N., 2011. Impact of tropospheric ozone on the Euro-Mediterranean vegetation. *Glob. Change Biol.* 17, 2342–2359.
- Beekmann, M., Vautard, R., 2010. A modelling study of photochemical regimes over Europe: robustness and variability. *Atmos. Chem. Phys.* 10, 10067-10084.
- Bobbink, R., Bik, L., Willems, J.H., 1988. Effects of nitrogen fertilization on vegetation structure and dominance of *Brachypodium pinnatum* (L.) Beauv. in chalk grassland. *Acta Botanica Neerlandica* 37, 231–242.
- Bobbink, R., Hettelingh, J.P., 2010. Review and revision of empirical critical loads and dose-response relationships Proceedings of an expert workshop, Noordwijkerhout, 23-25 June 2010.
- Businger, J.A., 1973. A note on free convection. *Bound. Layer Meteorol.* 58, 229-259.
- Cape, J.N., Van der Eerden, L.J., Sheppard, L.J., Leith, I.D., Sutton, M.A., 2009. Evidence for changing the critical level for ammonia. *Environ. Pollut.* 157(3), 1033-1037.
- Carson, D.J., Richards, P.J.R., 1978. Modelling surface turbulent fluxes in stable conditions. *Bound. Layer Meteorol.* 14, 67-81.
- Dragosits, U., Theobald, M.R., Place, C.J, Lord, E., Webb, J., Hill, J., ApSimon, H.M., Sutton, M.A., 2002. Ammonia emission, deposition and impact assessment at the field scale: a case study of sub-grid spatial variability. *Environ. Pollut.* 117(1), 147-158.
- Elperin, T., Fominykh, A., Krasovitev, B., 2016. Effect of raindrop size distribution on scavenging of aerosol particles from Gaussian air pollution plumes and puffs in turbulent atmosphere. *Process Saf. Environ. Prot.* 102, 303-315.
- Erismann, J.W., van Pul, W.A.J., Wyers, G.P., 1994. Parameterization of surface resistance for the quantification of atmospheric deposition of acidifying pollutants and ozone. *Atmos. Environ.* 28, 2595-2607.
- Emberson, L.D., Ashmore, M.R., Cambridge, H.M., Simpson, D., Tuovinen, J.P., 2000. Modelling stomatal ozone flux across Europe. *Environ. Pollut.* 109, 403-413
- Garratt, J.R., Wyngaard, J.C., Francey R.J., 1982. Winds in the atmospheric boundary layer - Prediction and observation. *J. Atmos. Sci.* 39, 1307-1316.
- Hanna, S.R., Briggs, G.A., Hosker, R.P., 1982. Handbook on Atmospheric Diffusion. Publication DOE/TIC 11223, U.S. Department of Energy, Washington, District of Columbia.
- Hanna, S.R., Chang, J.C., 1992. Boundary layer parameterization for applied dispersion modeling over urban areas. *Bound. Layer Meteorol.* 58, 229-259.

- Hicks, B.B., Baldocchi, D.D., Meyers, T.P., Hosker Jr., R.P., Matt, D.R., 1987. A preliminary multiple resistance routine for deriving dry deposition velocities from measured quantities. *Water, Air, Soil Pollut.*, 36.
- Hicks, W.K., Haeuber, R., Sutton, M. A., Aas, W., Barber, M., Baron, J. S., Leach, A., 2014. Workshop on nitrogen deposition, critical loads and biodiversity: scientific synthesis and summary for policy makers. In *Nitrogen Deposition, Critical Loads and Biodiversity* (pp. 507-526). Springer Netherlands.
- Holtslag, A.A.M., 1984. Estimates of diabatic wind speed profiles from near surface weather observations. *Bound. Layer Meteorol.* 29, 225-250.
- Honoré, C., Rouil, L., Vautard, R., Beekmann, M., Bessagnet, B., Dufour, A., Menut, L., 2008. Predictability of European air quality: Assessment of 3 years of operational forecasts and analyses by the PREV'AIR system. *J. Geophys. Res. Atmos.* 113(D4).
- Krupa, S.V., 2003. Effects of atmospheric ammonia (NH₃) on terrestrial vegetation: a review. *Environ. Pollut.* 124(2), 179-221.
- Loubet, B., Milford, C., Sutton, M.A., Cellier, P., 2001. Investigation of the interaction between sources and sinks of atmospheric ammonia in an upland landscape using a simplified dispersion-exchange model. *J. of Geophys. Res. Atmos.* 106, 24183-24195.
- Loubet, B., Asman, W.A.H., Theobald, M.R., Hertel, O., Tang, Y.S., Robin, P., Hassouna, M., Daemmgen, U., Genermont, S., Cellier, P., Sutton, M.A., 2009. Ammonia Deposition Near Hot Spots: Processes, Models and Monitoring Methods. In: *Atmos. Ammonia*, Springer Netherlands, 205-267.
- Menut, L., Bessagnet, B., Colette, A., Khvorostyanov, D., 2013. On the impact of the vertical resolution on chemistry transport modelling. *Atmos. Environ.* 67, 370–384.
- Menut, L., Bessagnet, B., Khvorostyanov, D., Beekmann, M., Blond, N., Colette, A., Coll, I., Curci, G., Foret, G., Hodzic, A., Mailler, S., Meleux, F., Mongel, J-L., Pison, I., Siour, G., Turquety, S., Valari, M., Vautard, R., Vivanco, M.G., 2014. CHIMERE 2013: a model for regional atmospheric composition modelling. *Geosci. Model Dev.* 6(4), 981-1028.
- Monin, A.S., Zilitinkevich, S.S., 1974. Similarity theory and resistance laws for the planetary boundary layer. *Bound. Layer Meteorol.* 7(3), 391-397.
- Oxley, T., ApSimon, H.M., 2007. Space, time and nesting integrated assessment models. *Environ. Model. Softw.* 22(12), 1732-1749.
- Phillips, S.B., Arya, S.P., Aneja, V.P., 2004. Ammonia flux and dry deposition velocity from near-surface concentration gradient measurements over a grass surface in North Carolina. *Atmos. Environ.* 38(21), 3469-3480.
- Pitcairn, C.E., Leith, I.D., van Dijk, N., Sheppard, L.J., Sutton, M.A., Fowler, D., 2009. The application of transects to assess the effects of ammonia on woodland groundflora. In *Atmos. Ammonia*, Springer Netherlands, 59-69.

Sauter, F., van Jaarsveld, H., Van Zanten, M., van der Swaluw, E., Aben, J., de Leeuw, F., 2015. The OPS-model. Description of OPS 4.4.4. RIVM Report, National Institute for Public Health and the Environment (RIVM), Bilthoven, The Netherlands. 113 pp. <http://www.rivm.nl/media/ops/v4.4.4/OPS-model-v4.4.4.pdf>

Simpson, D., Fagerli, H., Jonson, J., Tsyro, S., Wind, P., Tuovinen, J.P., 2003. The EMEP Unified Eulerian Model. Model Description, EMEP MSC-W Report 1/2003, The Norwegian Meteorological Institute, Oslo, Norway.

Simpson, D., Benedictow, A., Berge, H., Bergström, R., Emberson, L.D., Fagerli, H., Flechard, C.R., Hayman, G.D., Gauss, M., Jonson, J.E., Jenkin, M.E., Nyíri, A., Richter, C., Semeena, V.S., Tsyro, S., Tuovinen, J.P., Valdebenito, A., Wind, P., 2012. The EMEP MSC-W chemical transport model – technical description, *Atmos. Chem. Phys.* 12, 7825–7865, doi:10.5194/acp-12-7825-2012.

Skamarock, W., Klemp, J., Dudhia, J., Gill, D., Barker, D., Wang, W., Powers, J., 2007. A Description of the Advanced Research WRF Version 2, NCAR Technical Note, Boulder, Colorado, USA.

Sutton, M.A., Milford, C., Dragosits, U., Place, C.J., Singles, R.J., Smith, R.I., Pitcairn, C.E.R., Fowler, D., Hill, J., ApSimon, H.M., Ross, C., Hill, R., Jarvis, S.C., Pain, B.F., Phillips, V.C., Harrison, R., Moss, D., Webb, J., Espenhahn, S.E., Lee, D.S., Hornung, M., Ulyett, J., Bull, K.R., Emmett, B.A., Lowe, J., Wyers, G.P., 1998. Dispersion, deposition and impacts of atmospheric ammonia: quantifying local budgets and spatial variability. *Environ. Pollut.* 102, 349–361.

Tennekes, H., 1973. A model for the dynamics of the inversion above a convective boundary layer. *J. Atmos. Sci.* 30, 558-567.

Theobald, M.R., Løfstrøm, P., Walker, J., Andersen, H.V., Pedersen, P., Vallejo, A., Sutton, M.A., 2012. An intercomparison of models used to simulate the short-range atmospheric dispersion of agricultural ammonia emissions. *Environ. Model. Softw.* 37, 90-102.

Troen, I., Mahrt, L., 1986. A simple model of the atmospheric boundary layer: Sensitivity to surface evaporation. *Bound. Layer Meteorol.* 37, 129–148.

Valari, M., Menut, L., 2010. Transferring the heterogeneity of surface emissions to variability in pollutant concentrations over urban areas through a chemistry transport model, *Atmos. Environ.* 44, 3229–3238.

van Jaarsveld, J.A., 2004. The Operational Priority Substances model. Description and validation of OPS-Pro 4.1. RIVM-report 500045001. RIVM, Bilthoven, The Netherlands.

van Leer, B., 1979. Towards the ultimate conservative difference scheme, V A second order sequel to Godunov's method, *J. Comput. Phys.* 32, 101–136.

van Pul, W.A.J., van Jaarsveld, J.A., Vellinga, O.S., van den Broek, M., Smits, M.C.J., 2008. The VELD experiment: an evaluation of the ammonia emissions and concentrations in an agricultural area. *Atmos. Environ.* 42, 8086-8095.

- van Ulden, A.P., Holtslag, A.A.M., 1985. Estimation of atmospheric boundary layer parameters for diffusion applications. *J. Climate Appl. Meteorol.* 24, 1196-1207.
- van Zanten, M.C., Sauter, F.J., Wichink Kruit, R.J., Van Jaarsveld, J A., Van Pul, W.A.J., 2010. Description of the DEPAC module: Dry deposition modelling with DEPAC GCN2010, RIVM report 680180001/2010, Bilthoven, the Netherlands, 74 pp.
- Vautard, R., Honoré, C., Beekmann, M., Rouil, L., 2005. Simulation of ozone during the august 2003 heat wave and emission control scenarios. *Atmos. Environ.* 39, 3291-3303.
- WallisDeVries, M.F., Bobbink, R., 2017. Nitrogen deposition impacts on biodiversity in terrestrial ecosystems: Mechanisms and perspectives for restoration.
- Wesely, M., 1989. Parameterization of Surface Resistances to Gaseous Dry Deposition in Regional-Scale Numerical Models. *Atmos. Environ.* 23, 1293–1304.
- Wichink Kruit, R.J., Van Pul, W.A.J., Sauter, F.J., Van den Broek, M., Nemitz, E., Sutton, M.A., Krol, M., Holtslag, A.A.M., 2010. Modeling the surface-atmosphere exchange of ammonia, *Atmos. Environ.* 44, 945–957.
- Wichink Kruit, R.J., Schaap, M., Sauter, F.J., van Zanten, M.C., van Pul, W.A.J., 2012. Modeling the distribution of ammonia across Europe including bi-directional surface–atmosphere exchange. *Biogeosciences* 9, 5261–5277.

**Chapitre V: Effect of the sub-grid variability
and model grid cell size on ammonia
deposition and critical load exceedance**

Publication en préparation

Résumé

L'ammoniac (NH_3) émis dans l'atmosphère, à partir de sources agricoles, peut avoir un impact sur les écosystèmes sensibles proches des sources à cause des forts dépôts secs sur la végétation et la surface du sol. Différents modèles sont utilisés pour évaluer l'impact potentiel du dépôt anhydre de NH_3 sur les écosystèmes semi-naturels à des échelles spatiales différentes (locale et régionale). Les modèles de dispersion atmosphérique à courte distance sont souvent utilisés pour calculer les différents flux de NH_3 proches des sources, mais de nombreux autres modèles sont utilisés pour aussi pour évaluer l'impact environnemental du dépôt sec de NH_3 sur les écosystèmes sensibles. Cependant, jusqu'à maintenant, il n'y a pas eu de comparaison de différents modèles à différentes échelles spatiales pour calculer la dispersion de l'ammoniac ainsi que l'effet de la résolution spatiale de chaque modèle sur la variabilité sous-maille sur le dépôt d'ammoniac. Cet article présente une comparaison des prévisions de dépôts secs NH_3 réalisées par deux modèles différents, le modèle de panache gaussien à l'échelle locale OPS-ST et le modèle de chimie-transport à l'échelle régionale CHIMERE. La comparaison montre que OPS-ST calcule un fort dépôt sec de NH_3 , particulièrement proches des sources. En conséquence, les cartes de charges critiques prédites par les deux modèles sont très différentes en fonction du modèle, de la taille de la maille et des paramètres des entrées. Cependant, en faisant la moyenne sur l'ensemble du domaine, les différences entre le dépôt sec calculé par les deux modèles sont faibles. Cela montre que la formulation du modèle a une incidence (par rapport à la résolution du modèle) sur le dépôt sec. Dans notre étude, le changement d'utilisation des terres n'a pas eu d'impact important sur les dépôts secs, car la plupart des dépôts se sont produits près de sources où l'utilisation des terres n'a pas été modifiée.

V. Effect of the sub-grid variability and model grid cell size on ammonia deposition and critical load exceedance

Niramson Azouz ^{a,*}, Jean Louis Drouet ^a, Matthias Beekmann ^b, Pierre Cellier ^a

^a UMR ECOSYS, INRA, AgroParisTech, Université Paris-Saclay, F-78850, Thiverval-Grignon, France

^b UMR LISA UMR7583, CNRS, UPEC, UPD, F-94010, Créteil, France

Abstract

Ammonia (NH₃) emitted into the atmosphere from agricultural sources can have an impact on nearby sensitive ecosystems through elevated dry deposition to vegetation and soil surfaces. Different spatial scale models (local and regional) are used to assess the potential impact of the NH₃ dry deposition on semi-natural ecosystems. The short range atmospheric dispersion models are often used to calculate the different NH₃ fluxes close to the sources but also many other models are used for these assessments. However, until now there has not been a comparison of different spatial scale models for the case of ammonia dispersion and the effect of sub-grid variability and input parameters on ammonia deposition. This paper presents a comparison of NH₃ dry deposition predictions made by two different models, the local scale gaussian plume model OPS-ST, and the regional scale chemistry-transport model CHIMERE. The comparison shows that OPS-ST simulates larger dry deposition predictions especially close to the sources, as can be expected from the different resolution of the models. As a result, critical loads maps predicted by the two models are very different as a function of the model, the grid cell size and the inputs parameters. However, when averaging over the whole domain, differences in dry deposition are small. This shows that model formulation has a comparatively (with respect to model resolution) small impact on dry deposition. In our study set-up, land use change did not show large impact on dry deposition, because most of the deposition occurred close to sources where land use was not modified.

V.1. Introduction

Atmospheric ammonia (NH₃) sources are primarily livestock production (ECETOC, 1994; Bouwman et al., 1997). The manure in animal houses accounts for more than 30% of the NH₃ emitted from livestock farming (ECETOC, 1994; Hutchings et al., 2001). Although there are possible effects on animal performances inside animal houses, especially for pig and poultry farming, NH₃ is mainly questioned for its effects on the natural and forest environment, as well as

air quality (secondary aerosol formation). NH_3 is deposited on vegetation, soil and water (Asman and van Jaarsveld, 1992) which contributes to acidification and eutrophication of natural ecosystems (Fangmeier et al., 1994). Ammonia deposition is also one of the main drivers of biodiversity loss at global scale (Hicks et al., 2011; Dise et al., 2011). Garber (1935) was the first to experiment the effects of NH_3 on vegetation and prove its phytotoxic effect. Garber and Schürmann (1971) mentioned that plants around poultry and pig farms within 50 m of the buildings show several injuries. Ewert (1978) estimated that the total area for injury on forest stands in East Germany caused by emissions from livestock farms is between 2000 and 3000 ha and Tesche and Schmidtchen (1978), as well as Hunger (1978) found injury to a spruce stand up to 400 m from the pollution source. König (1896) reported the first observations of NH_3 effects on vegetation close to a soda factory from which NH_3 was released by accident. Ammonia deposition may lead to significant changes of the composition of sensitive ecosystems (Hicks et al., 2011).

Larger scale NH_x studies for Europe focused on the role of NH_3 and NH_4^+ on the eutrophication of marine (Oenema et al., 2004) and terrestrial ecosystems (Sharpe et al., 1995; Erisman et al., 1998a). Atmospheric deposition of NH_3 in some regions contributes significantly to the overall N loads of terrestrial ecosystems (EEA, 2003; Krupa, 2003; Neiryneck et al., 2005). Nitrogen can be the limiting nutrient for many ecosystems and even a small increase in NH_3 deposition may lead to significant negative effects in some cases (Vitousek et al., 1991; Kronvang et al., 1993).

A significant fraction of emitted NH_3 is deposited on areas close to agricultural sources. The dry deposition of NH_3 is often the largest contribution to atmospheric nitrogen deposition, especially close to the NH_3 sources. Atmospheric NH_3 deposition in nearby areas of farms with large animal production may be totally dominated by the contribution of locally emitted NH_3 . However, this fraction depends on the land use (esp. ecosystem types) in the area, and on the atmospheric stability and concentration of acid gases and aerosols in the atmosphere. Asman (1998) showed that between 20 and 60% of the emitted NH_3 was deposited within 2 km from the source depending on surface roughness. Sutton et al. (1998) estimated that the fraction of NH_3 that is dry deposited in the first 5 km close to the source was between 8 and 50%, depending on the land-use type. Schou et al. (2006) showed that 20% of annual average emission was deposited within 2 km from the source.

The risk of high local deposition of NH_3 from livestock operations is regulated by national legislation. Natural or semi-natural ecosystems designated as being worthy of protection are classified according to their critical load capacity (Fisher et al., 2007), i.e. their capacity to assimilate nitrogen without subsequent changes in flora and fauna. For NH_3 deposition beyond the

critical load, ecosystems may lose biodiversity. In order not to exceed the critical loads, abatement strategies for the control of atmospheric N deposition were set-up and discussed, for e.g. Europe (Erisman et al., 1998b) and the United States of America (Angus et al., 2003). Measurements of NH_3 concentration and deposition are essential to provide information on actual loads of NH_3 in the environment and quantify the environmental impact of NH_3 deposition. However, to date monitoring programs are located essentially in some experimental sites and cannot be easily extended. Modelling NH_3 concentration and deposition greatly extends the possibilities of understanding the NH_3 effects. In the literature, modelling NH_3 dispersion and deposition focused on regional and European levels, and little attention was paid to modelling NH_3 deposition close to the sources, despite large deposition and subsequent impact on sensitive ecosystems (Hicks et al., 2011). Different models were developed to simulate NH_3 deposition at local and regional scales (Asman et van Jaarsveld, 1992; van Jaarsveld et al., 2004; Theobald et al., 2012; Menut et al., 2014). They were based either on the Gaussian or the Eulerian approach to model dispersion. Regional scale modelling assessments are typically practical at grid cell sizes in the range of few kilometres, it can be 1 km for simple models (Hallsworth et al., 2010) and 5 km for more complicated Eulerian models (Vieno et al., 2010). Fine scale modelling or local models were also used to calculate different NH_3 fluxes (Dragosits et al., 2002; Fournier et al., 2005; Chaney et al., 2011; Theobald et al., 2012) with a grid cell size from a few tens to a few hundreds of meters (from 20 m to 1 km). Ammonia deposition schemes can vary from a simple analogy to calculate deposition velocities to multi-layer approaches which are the most common scheme. Their spatial scales ranged from a few meters to several kilometres, with models being more adapted for very short range and other models more adapted to regional NH_3 deposition. A few models take into account wet and aerosol deposition, as well as chemical reactions in the gas phase.

The role of 'hot-spots' sources is increasingly recognized by measurements and modelling. Using appropriate grid cell sizes is crucial to represent the spatial distribution of NH_3 emission and nearby deposition, as well as critical loads exceedance. Mapping large-scale geographic data has often been a problem to have the most realistic description of the spatial variability of different parameters, and it has often been discussed in the context of the implementation of critical load maps.

This work addresses the effect of model formalism, input parameters and grid cell size on the spatial variability of NH_3 deposition. A Gaussian plume model and an Eulerian chemistry model were used at various grid cell sizes on two study domains with contrasted land use. The fraction of NH_3 that was deposited locally and maps of critical load exceedance were simulated and compared between both models.

V.2. Materials and methods

Ammonia fluxes were simulated by using the local Gaussian plume model OPS-ST (van Jaarsveld, 2004; Sauter et al., 2015) and the regional Eulerian model CHIMERE (Menut et al., 2014). Chemistry was neglected in both models for two reasons. Firstly the transfer time in the simulation domain is much lower than the chemical conversion time for NH_x . Secondly NH_3 concentration close to the sources (< 50 m) is much larger ($\sim 250 \mu\text{g m}^{-3}$) than typical rural NH_4^+ aerosol loads ($1\text{-}2 \mu\text{g m}^{-3}$; Putaud et al., 2010). Moreover, even though OPS-ST can calculate compensation point, in contrast with Chimere, the compensation point was set to zero in order to facilitate comparison between OPS-ST and CHIMERE.

V.2.1. Models

V.2.1.1. OPS-ST

The OPS-ST model is the short term version of the OPS model (van Jaarsveld et al., 2000). The OPS model is used to describe the yearly averaged concentration and deposition of air pollutants at local and national scales in the Netherlands. Unlike the OPS model which uses spatial resolution of $5 \text{ km} \times 5 \text{ km}$, OPS-ST was developed to be used at much finer spatial resolutions (van Pul et al., 2008; Sauter et al., 2015). Indeed, as a gaussian plume model, OPS-ST yields analytical solutions without limitations of spatial resolution. However, sampling of OPS-ST at receptor points, which can be aligned on regular grids, induces an implicit spatial resolution. OPS-ST can perform simulations at an hourly time step. The main difference between both (OPS and OPS-ST) models is the time resolution of meteorological data and emission inputs. Model processes such as dispersion, dry deposition and chemical conversion are included in OPS-ST like in the OPS model. The evaluation of the OPS-ST model can be found in Sauter et al. (2015). The OPS-ST model uses trajectories to assess the contribution of a given NH_3 source to NH_3 concentration at a given receptor location. Each hour, the meteo-preprocessor traces back the path followed by an air parcel arriving at each receptor location. The idea is to compute averaged meteorology and deposition parameters over this trajectory for different representative distances.

The most important factor for the dispersion of pollutants is the meteorological conditions prevailing when substances are released into the atmosphere. Dry deposition is calculated for each receptor location. Parameters that need to be specified are coordinates, roughness length and land-use. The OPS-ST model reads the land-use type and the roughness length at the receptor location from maps. For specific receptor locations the model selects the land use properties from land use maps. In the case of gridded receptor points, the model selects a corresponding grid cell size. It is important to note here that the calculation of a grid cell representative roughness length is based

on a logarithmic weighing of roughness elements, while the grid cell representative land-use class is defined as the most abundant land-use type within that grid cell. The receptor height is constant for the entire study domain and is fixed in OPS-ST.

The results for specific receptor points are formatted as single records for each point, but the gridded results are formatted in a matrix form and OPS-ST generates automatically multiple sub-receptors inside a grid cell in order to be able to compute a representative grid cell average. This will allow us in this study to degrade the initial regular grid of receptor points with 25 m resolution to various lower resolutions and to make it thus comparable to output from the CHIMERE model.

V.2.1.2. CHIMERE

The CHIMERE model is an Eulerian regional chemistry-transport multiscale model (Schmidt et al., 2001; Bessagnet et al., 2009; Menut et al., 2014; <http://www.lmd.polytechnique.fr/chimere/>) using a meteorological driver, such as MM5 (Grell et al., 1994) or WRF (<http://wrf-model.org/index.php>). It is designed to calculate pollution episodes at regional (Hodzic et al., 2006) and urban scales (Coll et al., 2010), and changes in photochemical and particulate pollution in the lower layer of the atmosphere. The CHIMERE model was also coupled with an explicit model of NH₃ emissions (VOLT'AIR) to take into account the variability of these emissions as a function of the application dates of fertilizers and weather conditions (Hamaoui et al., 2014). It is also used for operational forecast of pollutant levels over Western Europe (<http://www.prevoir.org>, Honoré et al., 2008) or Northern France (<http://www.esmeralda-web.fr/>) from several years. Processes like chemistry, transport, vertical diffusion, photochemistry, dry deposition, in-cloud and below cloud scavenging are included in the model. External forcing are required to run a simulation: meteorological fields, primary pollutant emissions, and chemical boundary conditions. Using these input data, CHIMERE calculates and provides the atmospheric concentration and deposition of tens of gas-phase and aerosol species over local to continental domains (from 1 km to 1 degree resolution). The number of vertical levels can be chosen by the user, by fixing hybrid sigma pressure levels.

V.2.2. Study domain and land-use

Dry deposition is highly dependent on land-use characterized by surface resistance (R_c) and roughness length (z_0). Different land use classes are required for both models to calculate various fluxes such as dry deposition. The CHIMERE model uses nine different land-use classes (e.g. agricultural land / crops, meadows, forests) that may be aggregated from two land use model

databases: GLCF land (Hansen and Reed, 2000) and GlobCover (Bicheron et al., 2011). Nine land-use classes are also required by OPS-ST and the related exchange parameters are calculated thanks to the DEPAC model (van Zanten et al., 2010). These different classifications are similar for both models, but the surface parameters (e.g. roughness length, leaf area index) which are phenology-dependent or land use-dependent may differ according to the model (Tab.V.1 and V.2).

In this study, data of landscape typology (Lazrak et al., 2014) were also used as inputs for land use at a grid cell size of 25 m x 25 m (Fig.V.1.(a)). Typology classes were produced by using a data mining approach (Lazrak et al. 2010) and various classification criteria (e.g. crop type, annual rotation, emission type). The land-use maps created with this method contained 11 different classes with more information than needed by both models. Thus land use classes were grouped in 9 categories to be used as inputs of both models (Fig.V.1.(b)) .

Table V.1: Land-use classes in OPS-ST and CHIMERE.

Class	Land-use types	Typical roughness length (m)	
		Summer	Winter
1	Grassland	0.03	0.01
2	Arable land	0.25	0.10
3	Permanent crops (orchards)	-	-
4	Coniferous forest	1.08	1.08
5	Deciduous forest	0.96	0.66
6	Water	0.0005	0.00025
7	Urban	1	1
8	Other	0.15	0.10
9	Desert	0.001	0.005

Table V.2: Parameters for land-use classes from Emberson (2000) for the different days of the year. SGS: start of the growing season; EGS: end of the growing season; SLEN: length of the starting phase of the growing season; ELEN: length of the end phase of the growing season; LAI_{min} and LAI_{max}: the minimum and the maximum leaf area index.

Land-use type	SGS	EGS	LAI _{MIN}	LAI _{MAX}	SLEN	ELEN
Grass land	0	366	2	3.5	140	135
Arable land	130	250	0	4.2	35	65
Permanent crops	130	250	0	4.2	35	65
Coniferous forest	0	366	5	5	1	1
Deciduous forest	100	307	0	4	20	30
Water	--	--	--	--	--	--
Urban	--	--	--	--	--	--
Other	0	366	2	3.5	140	135
Desert	--	--	--	--	--	--

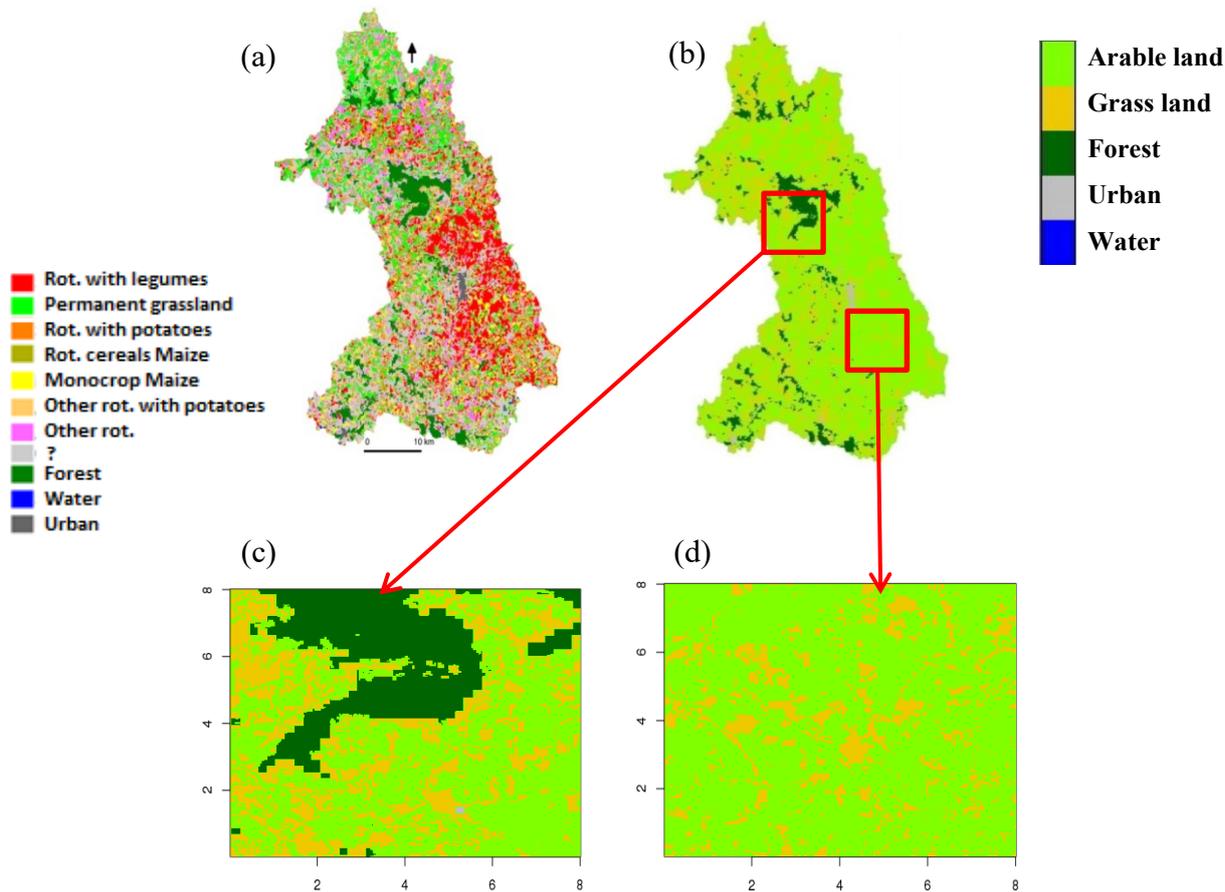


Figure V.1: Land-use typology produced by Lazrak et al. (2014) (a) adapted for the needs of the atmospheric models (b) in the case of the Blavet catchment. The adapted typology is zoomed for the Center Blavet (c) and the South Blavet domain (d).

V.2.3. Meteorology

To use the meteorological data available in various formats with different spatial resolutions, CHIMERE contains several pre-processors to mix and format these data to provide a standard meteorology file readable by the model. For the OPS-ST model, meteorological data are uniform for the entire study domain. Data are at an hourly time step for wind speed, wind direction, global radiation and air temperature. If wet deposition is simulated, data for precipitation events are also needed (intensity and duration). Meteorology data used for both models were obtained from the WRF model. Such a choice was made because these data are often used in CHIMERE and can be easily selected for describing different scenarios for all Europe. The meteorological data used for both models represent the year 2014.

Meteorological parameters were calculated for three nested domains and used to create high resolution fields. The study domain indicated in Fig. V.1 is covered by the WRF subdomain with

the highest resolution (1km, Fig. V.2). All parameters were interpolated for each grid cell in CHIMERE.

For OPS-ST, meteorological data were also calculated from the WRF model. Since the meteorological parameters are not spatially distributed in OPS-ST, a spatial average over the Blavet catchment was used for the whole simulation.

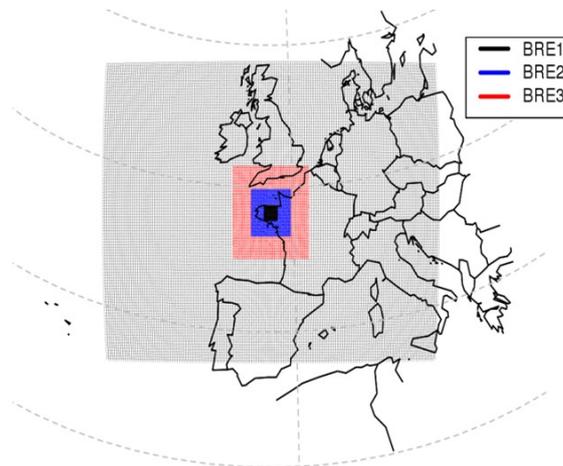


Figure V.2: Nested domains for the Brittany region (BRE) to create meteorology with the WRF model at grid cell sizes of 9 km (BRE3), 3 km (BRE2) and 1 km (BRE1/Blavet catchment).

V.2.4. Emissions

The emission map contained 21 farms with livestock housing units, with cattle and pig housed for at least part of the year. Data were available on type and number of livestock, housing type and housing duration. Storage emissions were calculated in proportion to housing duration. Emission factors were used for each animal type and each housing type to calculate emissions for the different farms. For both models, we used total yearly mean emission data with a constant emission rate to simplify the implementation of emission scenarios for both models. Livestock housing and waste storage were represented as a single point source for each farm (Tab. V.3).

For livestock housings and waste storage buildings, emissions depended on animal number and type following:

$$E_{i,j} = \sum F_i \times d_j$$

with $E_{i,j}$ is the total emission for source type i (livestock housing or waste storage) and animal type j , F_i and d_j are the emission factor and animal number respectively for each animal type (Tab.V.4).

Emission patterns from the Centre Blavet domain were fixed and were the same as from the South Blavet domain; only the land use maps were changed (Fig. V.3). This allows specifically assessing the effect of land-use on dry deposition. Compared to the Centre Blavet domain, the South Blavet domain did not contain any forest, and the comparisons between simulations of both domains allow gaining insight of the impact of land use on NH₃ dry deposition. Emissions due to field application of fertilizers were not taken into account.

Table V.3: Source emissions rates for the Blavet catchment.

Source number	Livestock housing kg NH ₃ d ⁻¹	Waste storage kg NH ₃ d ⁻¹	Total emission rate kg NH ₃ d ⁻¹
1	12.62	2.80	15.42
2	8.48	8.48	16.96
3	12.49	12.49	24.98
4	8.66	1.92	10.58
5	13.56	3.01	16.57
6	10.00	7.89	17.89
7	8.11	2.87	10.99
8	10.30	10.30	20.61
9	20.38	9.35	29.73
10	5.91	5.91	11.82
11	9.61	2.13	11.74
12	19.21	24.27	43.48
13	9.02	9.02	18.04
14	2.03	2.03	4.07
15	0.17	0.26	0.43
16	0.06	0.06	0.12
17	0.56	0.56	1.13
18	9.47	2.10	11.57
19	3.64	3.64	7.29
20	16.05	3.56	19.61
21	12.21	2.71	14.92

Table V.4: NH₃ Emission factors for different animal types.

	Livestock housing	Waste storage
	N-NH ₃ (g d ⁻¹)	N-NH ₃ (g d ⁻¹)
Sow	12.59	2.79
Piglet	2.67	0.59
Porker	8.02	1.77
Dairy cows	70.00	70.00
chicken	0.42	0.51

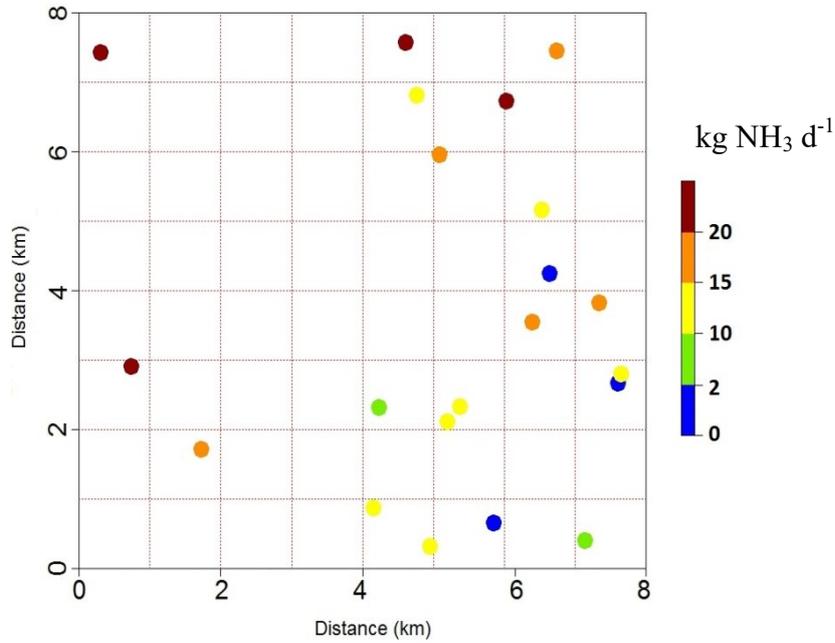


Figure V.3: Source localization and emission rates real case map used for the two domains, emissions rate values are presented in table V.3.

The emission height was set to 3 m in OPS-ST. The CHIMERE model used 16 vertical layers up to 500 hPa. The first layer in CHIMERE was set at 999 hPa (~ 8 m) which means that the average source height is 4 m (see section IV.3.4).

V.2.5. Dry deposition

The vertical transport of atmospheric contaminants either in gaseous form or in particle form to or from the underlying surface is governed by a number of processes. For both models, NH_3 dry deposition was parameterized following the well-known resistance modelling. Dry deposition F_d was calculated as the product of vertical velocity v_d specified for a given height z , and the difference in NH_3 concentration at this height (χ_a) and the surface concentration (χ_s):

$$F_d = v_d(z)[\chi_a(z) - \chi_s]$$

For substances which immediately react at the surface with other substances or for substances attached to particles, χ_s was assumed to be zero.

Using an electrical analogy $v_d(z)$ was represented from three resistances:

$$v_d(z) = [R_a(z) + R_b + R_c]^{-1}$$

where R_a is the aerodynamic resistance of the turbulent layer and depends on several turbulent parameters such as the Monin-Obukhov length L , the friction velocity u_* and the roughness length z_0 ; R_b is the pseudo-laminar resistance of the surface layer; R_c is the surface resistance which acts

for gaseous species only; R_c is a function of other resistances accounting mainly for stomatal and surface processes which depend on land use type and season:

$$R_c = \left(\frac{1}{R_w} + \frac{1}{R_{inc} + R_{soil}} + \frac{1}{R_s} \right)^{-1}$$

where R_w , R_{inc} , R_{soil} , R_s are the cuticular, in canopy, soil and stomatal resistances.

$$R_s = \left(g_{max} * F_{phen} * F_{light} * \max\{f_{min}, (f_{temp} * f_{VPD} * f_{SWP})\} \right)^{-1}$$

where g_{max} is the leaf/needle-level maximum stomatal conductance, F_{phen} is the bulk canopy stomatal conductance which is function of seasonal canopy development stage; F_{light} is the whole canopy stomatal conductance which is function of irradiance penetrating within the canopy; f_{min} is the minimum daylight stomatal conductance; f_{temp} , f_{VPD} and f_{SWP} are stomatal conductance which are functions of temperature, vapour pressure deficit and soil water potential respectively.

The in-canopy resistance R_{inc} determines the resistance to NH_3 transfer within the canopy and hence the amount of NH_3 available for deposition on the surface underlying the vegetation. Since deposition pathway is controlled by the transfer through the canopy, it depends on the density and height of the surface elements. A highly simplified parameterisation was used by Erisman and al. (1994) to estimate R_{inc} . The in-canopy resistance can be written as:

$$R_{inc} = b * LAI * \frac{h}{u_*}$$

where b is an empirical constant ($b = 14 \text{ m}^{-1}$), LAI is leaf area index, h is vegetation height which was constant for each land use class and u_* is the wind friction velocity.

For CHIMERE, dry deposition was calculated by averaging total resistance, calculated for the different land use classes weighted by their fraction in a given grid cell. For OPS-ST, dry deposition was calculated at each receptor (using local parameters at the receptor's site).

V.2.6. Critical loads and impacts

A critical load corresponds to a threshold of an atmospheric pollutant load or a level above which harmful effects occur (Bull, 1995; Hall et al., 1995; Tab. V.5). Below a given threshold, it is assumed that no damage is caused on humans, animals and vegetation. Critical loads maps are more accurate at local scale when model resolution is adapted to that of input data. Generally, these maps are usually quite coarse. However, for maps with large grid cell size, dry deposition near emission hot spots may be wrongly estimated and the resulting deposition map would fail to identify areas with critical loads exceedance. This is why our work discusses both questions: resolution aspects of critical load maps, and the impact of the use of different models. As critical

load maps require yearly averages of dry deposition, a one year simulation was performed for this study (for the year 2014).

Table V.5: Overview of critical loads for nitrogen deposition ($\text{kg N ha}^{-1} \text{y}^{-1}$) on natural and semi-natural ecosystems, as originally established in 2003, and as revised in 2010 with selection of effects that can occur when critical loads are exceeded.

[Bobbink and Hettelingh, 2010]

Ecosystem type	2003 $\text{kg N ha}^{-1} \text{y}^{-1}$	2010 $\text{kg N ha}^{-1} \text{y}^{-1}$	Indication of exceedance
Broadleaved deciduous woodlands	10-20	10-20	Changes in soil processes, nutrient imbalance, altered composition mycorrhiza and ground vegetation
Coniferous woodlands	10-20	5-15	Changes in soil processes, nutrient imbalance, altered composition mycorrhiza and ground vegetation
Fagus woodlands	-	10-20	Changes in ground vegetation and mycorrhiza, nutrient imbalance, changes in soil fauna
Permanent oligotrophic lakes, ponds and pools	5-10	3-10	Changes in the species composition of macrophyte communities, increased algal productivity and a shift in nutrient limitation of phytoplankton from N to P
Dune slack pools	10-20	10-20	Increased biomass and rate of succession
Tundra	5-10	3-5	Changes in biomass, physiological effects, changes in species composition in bryophyte layer, decrease in lichens
Mediterranean xeric Grasslands		15-25	Increased production, dominance by graminoids
Inland dune siliceous Grasslands	10-20	8-15	Decrease in lichens, increase in biomass, increased succession

V.3. Results and Discussion

V.3.1. Effect of grid cell size on dry deposition

The outputs of both models were calculated at different grid cell sizes (25, 50, 100, 200, 400, 800 and 1600 m for OPS-ST, and 800 and 1600 m for CHIMERE). As said before, these resolutions are not relative to the formulation of OPS-ST, which yields analytical solutions, but rather for sampling of its output. These results were then used to investigate the influence of model grid cell size on NH_3 dry deposition and spatial variability, and calculate the exceedance of critical loads for nitrogen deposition. OPS-ST was used with the same number and position of receptors for the different grid cell sizes. This choice was made because Figure V.4 shows that NH_3 dry deposition was the largest close to point sources of high intensity. It also shows that the decrease of dry deposition away from the sources was much steeper for OPS-ST at high spatial resolutions than

for CHIMERE which much lower resolutions. Even for the same resolutions (800 and 1600 m), CHIMERE dry deposition fields are smoother than those produced by OPS-ST.

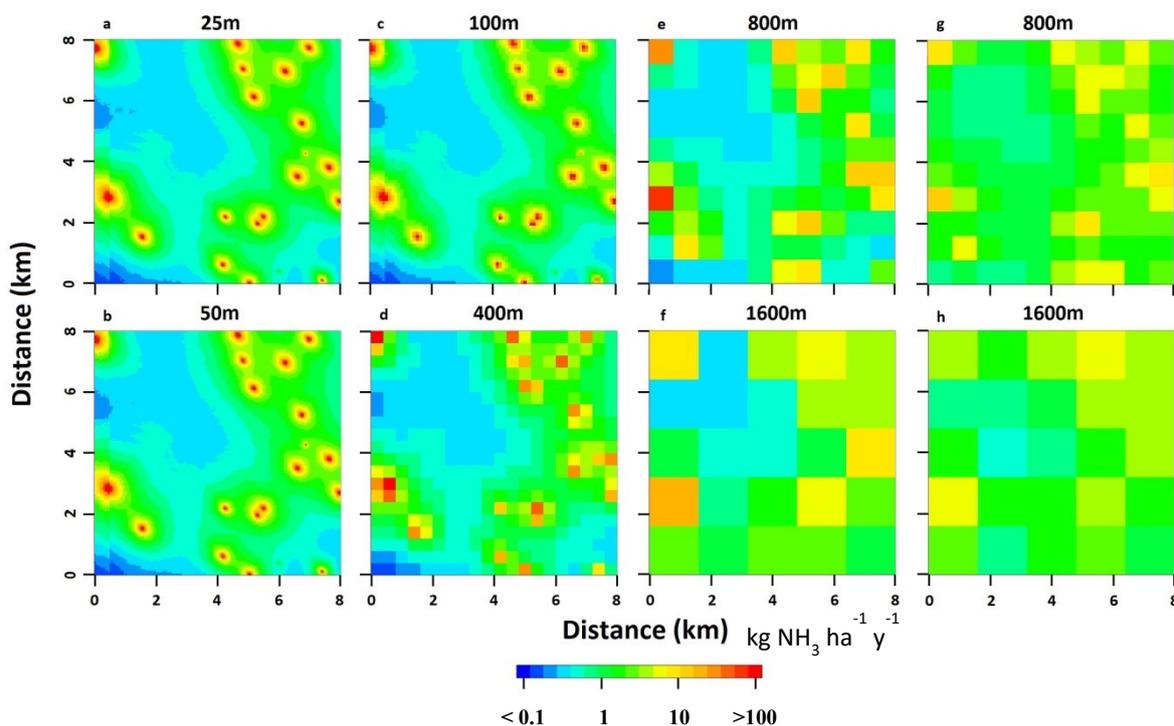


Figure V.4: Yearly NH_3 dry deposition simulated with OPS-ST (a, b, c, d, e, and f) and CHIMERE (g and h) for different grid cell sizes and for the Center Blavet domain.

Table V.6 shows that yearly average NH_3 dry deposition was constant by using OPS-ST with different resolution, which is inherent in the sampling procedure outlined before. By using CHIMERE, NH_3 dry deposition was slightly different between grid cell sizes of 800 m and 1600 m. In the Eulerian model the source was diluted within the volume of the cell where the source was located. That was due to the absence of any plume simulated with the Eulerian model (Kim et al., 2014). Dilution depended on both the horizontal and vertical sizes of the grid cells. Thus the larger the volume of the cell, the larger the dilution and the lower the NH_3 concentration close to the surface and the deposition to the surface. This is documented in the larger peak values of dry deposition in CHIMERE at 800 m resolution than at 1600 m resolution (Figure V.4). Table V.6 shows that the yearly average NH_3 dry deposition over the whole simulation domain was very similar between OPS-ST and CHIMERE, even though NH_3 deposition was locally underestimated for grid cells of large size.

Table V.6: Yearly average NH_3 dry deposition ($\text{kg NH}_3 \text{ ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$) simulated with OPS-ST and CHIMERE within the Center Blavet domain for different grid cell sizes.

Grid cell size (m)	25	50	100	200	400	800	1600
OPS-ST	3.24	3.24	3.24	3.24	3.24	3.24	3.24
CHIMERE	-	-	-	-	-	3.22	3.15

V.3.2. Day to day variability

OPS-ST is generally used to simulate annual budgets and evaluate environmental impacts at yearly scale. The CHIMERE model like other Eulerian models is also used for daily pollution forecast and analysis. This is why a comparison of daily dry depositions is also interesting. Figure V.5 shows the daily variation of NH_3 dry deposition simulated with OPS-ST at 25 m grid cell size and CHIMERE at 800 m grid cell size, averaged over the Center Blavet domain for the 105 first day of the year. The day to day variability is 30 % for OPS-ST and 20 % for CHIMERE, thus the range of NH_3 deposition values is rather restricted, which is partly because daily emissions are prescribed as constant. The day to day differences between the two data sets can be measured by the root mean square error (RMSE) which is 30% for CHIMERE, when taking OPS-ST as a reference. The two time series appeared not to be correlated ($R^2=0.1$). As the two models used the same input parameters, these differences should result from their differences in their formalism and in their sensitivity to meteorological input.

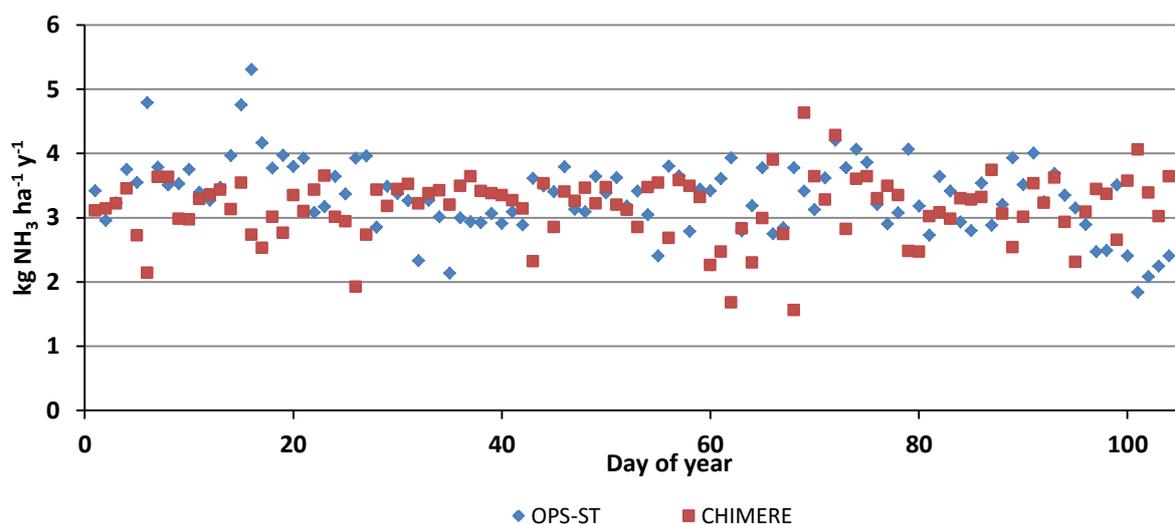


Figure V.5: Daily variation of NH_3 dry deposition for OPS-ST (25 m) and CHIMERE (800 m). Results are for the Center Blavet domain.

V.3.3. Effect of meteorological parameters (wind speed) on dry deposition

Figure V.6 shows the daily variation of NH_3 dry deposition (averaged over the Center Blavet domain) as a function of wind speed at 10 m. All values given are daily averages over the whole Center Blavet domain. As the dependence of dry deposition with respect to wind was quite scattered, values were averaged for different classes of wind speed. (2-4, 4-6, 6-8, 8-10, 10-12, > 12 m s^{-1} , Fig. V.6). For OPS-ST (25 m), dry deposition was largest, for the lowest wind class (2-4 m), while for CHIMERE (800 m), it was largest for the intermediate class (6 – 12 m). Thus at low wind speed NH_3 dry deposition was larger when simulated with OPS-ST than with CHIMERE. On the contrary at higher wind speed (> 6 m s^{-1}), NH_3 dry deposition was larger when simulated with CHIMERE than with OPS-ST. However, despite these small differences, for both models, systematic variations with respect to wind speed were rather limited. This may be explained by two opposite effects of wind speed on average NH_3 dry deposition. On one hand at very low wind speed, NH_3 dry deposition partly depends on turbulent resistance, which decreases with wind speed (Asman et al., 1998). For larger wind speed, the sensitivity of NH_3 dry deposition to R_c became higher (Asman et al., 2008). Increase in wind speed resulted in an increase of NH_3 advection out of the domain, and also in an increase of mixing in the boundary layer which reduced NH_3 concentration near the surface. Apparently, both effects compensate, but in slightly different ways in OPS-ST and CHIMERE.

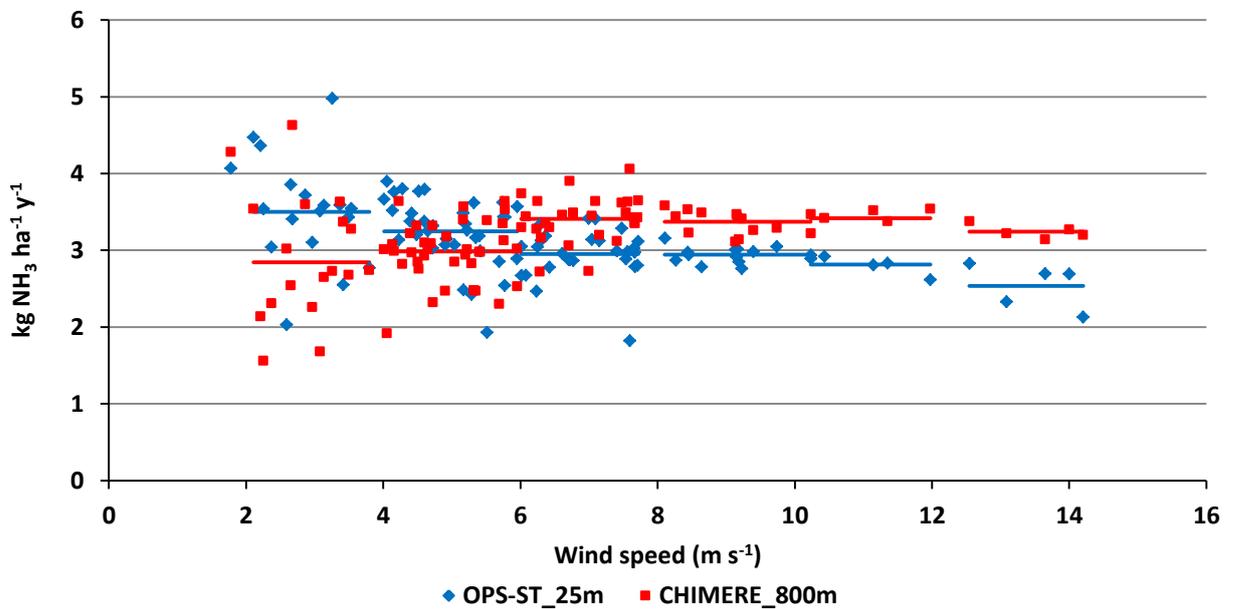


Figure V.6: Daily average NH_3 dry deposition on the Center Blavet domain as a function of daily average wind speed (at 10 m) for OPS-ST (25 m) and CHIMERE (800 m). Points represent daily dry deposition as a function of wind speed and lines represent average dry deposition for different classes of wind speed (2-4, 4-6, 6-8, 8-10, 10-12, >12 m s^{-1}).

V.3.4. Impact of the land-use

For OPS-ST with a grid cell size of 25 m, the difference of yearly average NH_3 dry deposition between the Center and South Blavet domains was very low. For CHIMERE, differences were higher for the first half of the year (January – June) and for the 800 grid resolution, with about 10% lower values for the South Blavet domain (Tab. V.7). These differences might be explained by the difference of the LAI values between the two domains. Forest covered a high area in the Center Blavet domain which led to lower R_c values (due to larger surface roughness) than in the South Blavet domain. The low difference of dry deposition between the two domains when using grid cells of large size (1600 m) might be explained by the loss of spatial variability of land use classes and hence the smoothing of R_c values within large cells. However, it is not clear, why corresponding differences are not encountered in OPS-ST. A reason might be that, for both domains, land use classes were homogeneous especially close to the sources, where most of the deposition occurred. There were no NH_3 sources on the forest which explained average R_c values calculated for large grid cell sizes were almost constant. Thus in OPS-ST, with a cell size of 25 m, would be less affected by deposition away from sources, than CHIMERE with a resolution of 800 m.

Table V.7: Mean NH_3 dry deposition ($\text{kg NH}_3 \text{ ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$) averaged over the whole simulation domain for OPS-ST (25m cell sizes) and for CHIMERE (800 and 1600 m cell sizes). Deposition velocity (v_d) is calculated for OPS-ST model.

		OPS-ST		CHIMERE			v_d (cm s^{-1})		
Grid cell size (m)		25		800		1600			
Location		Center	South	Center	South	Center	South	Center	South
Month	January	3.35	3.39	3.21	2.88	3.11	3.15	1.08	1.12
	February	2.79	2.91	3.27	2.91	3.19	3.19	1.63	1.75
	March	3.11	3.19	3.1	2.78	2.99	3.04	0.87	0.93
	April	2.99	3.04	3.11	2.82	2.99	3.11	0.63	0.66
	May	3.13	3.13	3.11	2.81	3.04	3.09	0.41	0.42
	June	2.57	2.49	3.16	2.82	3.11	3.16	0.30	0.28
	July	2.71	2.63	3.31	3.23	3.26	3.28	0.32	0.30
	August	3.09	3.05	3.14	3.32	3.08	3.06	0.38	0.36
	September	3.38	3.33	3.37	3.34	3.3	3.32	0.30	0.31
	October	3.8	3.83	3.29	3.34	3.27	3.29	0.35	0.37
	November	4.1	4.14	3.45	3.45	3.39	3.3	0.42	0.44
	December	3.9	3.96	3.2	3.32	3.15	3.2	0.42	0.44
Mean		3.24	3.26	3.23	3.06	3.16	3.17	0.59	0.62

The differences between the NH_3 dry deposition into the two domains can also be explained by roughness length which was calculated for both models as a function of the different land-use

classes (Tab. V.1). Dry deposition increased with roughness length due to an increase of turbulence and a decrease of R_a and R_b . Roughness length was different between the Center and South Blavet domains, the first one having much larger forest areas than the second one. Tables V.1 and V.2 show the parameters used by both models to calculate roughness length and surface resistance. For the deciduous forest, the start of the growing season was April 10th and the end was November 1st which means that leaf area index (LAI) was equal to zero for this simulation period. This difference of LAI between forest and grassland might modify the components of R_c . The resistance R_{inc} depended on LAI and u_* . Especially u_* was higher for forest than for grasslands (high z_0) which led to higher R_{inc} for grassland. Moreover, low LAI led to a lower R_{inc} which might increase surface resistance and decrease NH_3 deposition velocity. Figure V.7 shows the annual difference on NH_3 dry deposition between the Center Blavet and the South Blavet domain for all the simulation period. It is clear that there is a difference in NH_3 dry deposition over the forest, but it is still very low ($\sim 0.1 \text{ kg NH}_3 \text{ ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$) compared to land use modification effect close to the sources. The difference of the LAI and z_0 (10 time higher for arable land compared to grassland) between grassland and arable land can explain the spots located close to the sources. This very local effect of the land use is the result of the use of a high resolution land use map. The dry deposition is calculated for each receptor point and so for every land use type which is not the case for CHIMERE where the model average the land use parameters to the grid cell size.

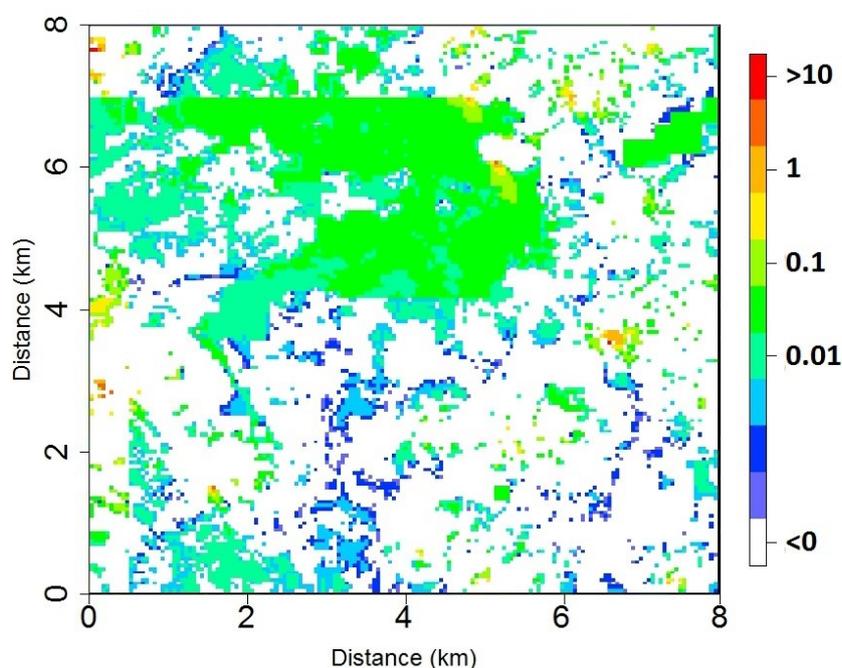


Figure V.7: Difference of NH_3 dry deposition ($\text{kg NH}_3 \text{ ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$) between for the Center Blavet and the South Blavet for all the year. Results are simulated with OPS-ST model (25 m).

V.3.5. Critical loads

Simulation results for surfaces exceeding different critical loads from the two models and different grid cell sizes are shown on Figure V.8. When using OPS-ST, the total surface exceeding the lowest critical load ($5 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$) was nearly constant (7.5% for the Center Blavet domain) even for large grid cell sizes (400 m). The total surface exceeding a critical load of $5 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ was higher with CHIMERE (14% and 8% for 800 m and 1600 m grid cell sizes respectively) than with OPS-ST (7.5 % for a 25 m grid cell size) (Tab. V.8). The total surface exceeding a given critical load depends on the grid cell size. When using OPS-ST, the model prediction was almost constant for different critical loads and for different grid cell sizes (between 25 m and 200 m). The critical load maps simulated with CHIMERE are more dependent on the model grid cell size, for low critical loads; the difference between 800 m and 1600 m grid cell size can be larger than 30%. CHIMERE underestimated, compared to OPS-ST, the surfaces exceeding the critical load for the two higher critical loads and even the model did not detect a critical load exceedance for a critical load of $10 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ and a grid cell size of 1600 m (Fig.V.9). When the critical load was $14 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$, CHIMERE did not show any critical load exceedance at grid cell sizes of 800 and 1600m (Tab.V.8).

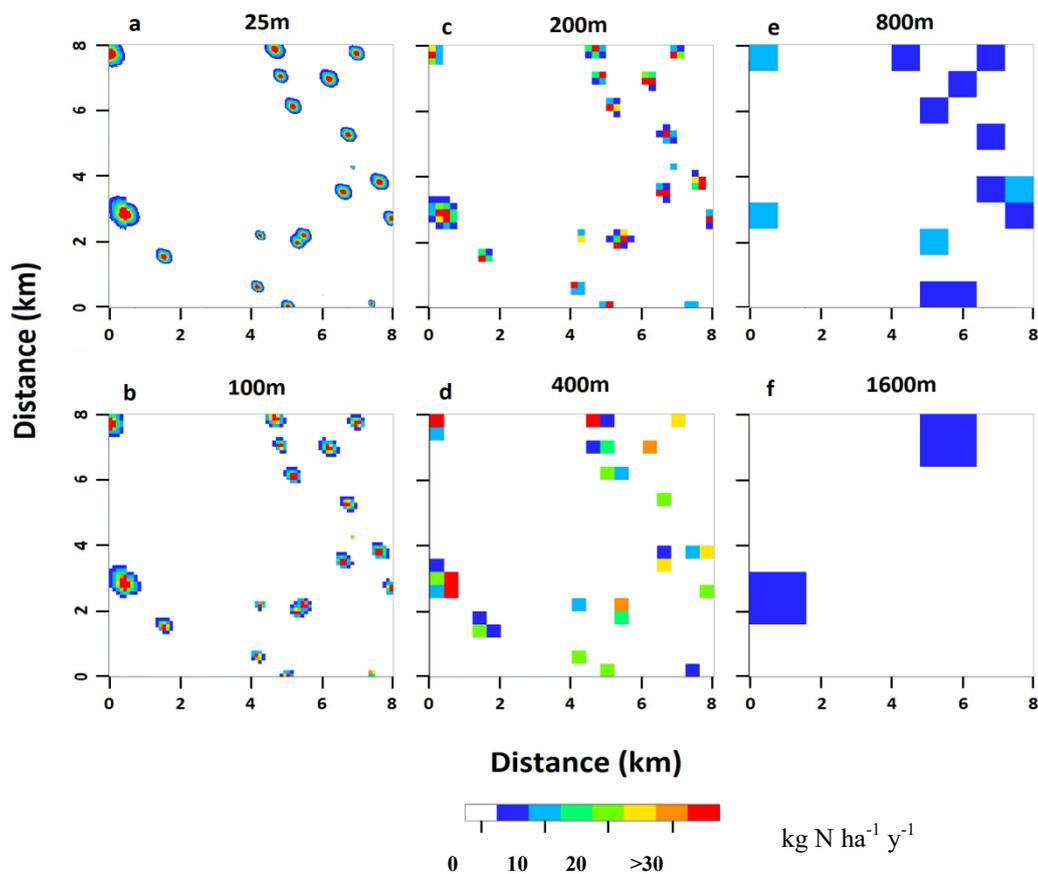


Figure V.8: Maps of NH₃ critical load exceedance (5 kg N ha⁻¹ y⁻¹) simulated with OPS-ST (a, b, c, and d) and CHIMERE (e, f) for different grid cell sizes and the Center Blavet domain.

OPS-ST simulations with 25 or 50 m grid cell size can be considered as reference for this work. For CHIMERE, compared to this reference, differences in exceeding surfaces strongly depend on the chosen critical load threshold levels. This reflects the different effects of decreasing horizontal resolution. For the lowest critical load threshold (5 kg N ha⁻¹ y⁻¹), the increase in the surface exceeding this threshold is due to a “smearing out” effect. In the OPS-ST high resolution reference simulation, high deposition hot spots are localized over small areas, in the CHIMERE low resolution simulations, they are averaged (“smeared out”) over larger grid cells which artificially results in larger affected surfaces. The counterpart of this behaviour is that exceedances of a high critical load threshold (14 kg N ha⁻¹ y⁻¹) are never reached by CHIMERE and they can only be simulated by the OPS-ST small grid cell sizes (25 and 50 m) simulations close to hot-spots. In the other hand, CHIMERE overestimate the surface exceeding low critical loads (3 kg N ha⁻¹ y⁻¹). These compensating effects lead to the fact that for a medium critical load (5 kg N ha⁻¹ y⁻¹) and a CHIMERE 800 m grid cell size, results for exceeding surfaces are quite similar to the reference. In addition, differences in the model formulation between OPS-ST and CHIMERE could also play a role. This is shown in Table V.8, where average fractions of critical load exceedances are compared for CHIMERE and OPS-ST at the same grid cell size. These comparisons show similar results for a critical load value of 3 kg N ha⁻¹ y⁻¹, but smaller fractions thresholds of 5 and 10 kg N ha⁻¹ y⁻¹. This corresponds to lower maximal values of dry deposition for CHIMERE than for OPS-ST already stated in Figure V.4. Thus in addition to resolution issues, also model formulation affects critical loads exceedances.

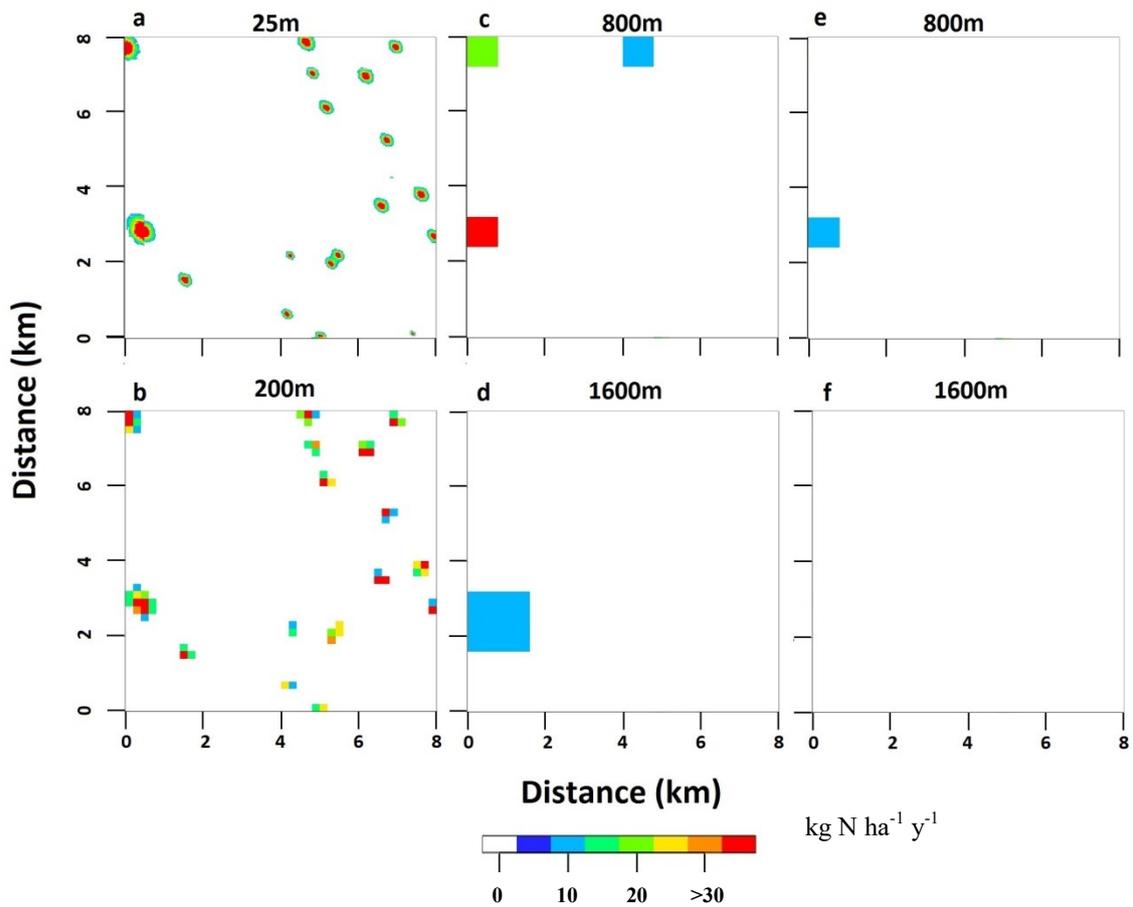


Figure V.9: Maps of NH_3 critical load exceedance ($10 \text{ kg N ha}^{-1} \text{y}^{-1}$) simulated with OPS-ST (a, b, c, and d) and CHIMERE (e, f) for different grid cell sizes and for the Center Blavet domain.

Table V.8: Fraction of surface (%) that exceeds different critical loads ($\text{kg N ha}^{-1} \text{y}^{-1}$) calculated for all the year for different grid cell sizes for OPS-ST and CHIMERE. Results are presented for the Center Blavet domain.

		Critical loads ($\text{kg N ha}^{-1} \text{y}^{-1}$)				
		Grid cell size (m)	14kg	10kg	5kg	3kg
OPS-ST	1600		0	4	16	36
	800		2	3	13	20
	400		4	5.5	8.5	16.7
	200		2.7	3.7	8.2	15.3
	100		2.3	3.4	7.5	15.5
	50		2.2	3.2	7.5	15.3
	25		2.2	3.2	7.5	15.3
CHIMERE	1600		0	0	8	36
	800		0	1	14	24

V.4. Conclusions

Two atmospheric transport models (OPS-ST and CHIMERE) were used at different grid cell sizes and for two different domains in order to identify the effect of models formalism, grid resolution, and input parameters on model predictions. Simulations carried out with changes in grid cell size provided insights for improving the representation of the spatial variability of NH_3 emissions and dry deposition. The CHIMERE model used grid cell sizes of 800 and 1600 m that correspond to the minimal grid cell sizes for which the model was conceived. We showed that both models provided similar predictions of average NH_3 dry deposition over the simulation domains, despite differences in specifications of input data, source dilution (for the Eulerian model), vertical transport and ‘source-receptor’ relationship. This is an important result for using CHIMERE for larger scale deposition and air quality studies, for which the omission of sub-grid deposition has often be pointed out as a concern. The daily variation of NH_3 dry deposition shows a some degree of variability between the two models (relative RMSE 30%) and the importance of the time scale to compare the two models.

Changing the grid cell size near the sources resulted in a large variability of the spatial patterns of NH_3 dry deposition. Especially in CHIMERE with its resolutions of 800 and 1600 m, , emissions were artificially diluted within the cell volume, the peak values of deposition were lower than with higher resolutions for OPS-ST, and the spatial patterns of NH_3 deposition were more smoothed. This affects results obtained with both models for exceedance of the critical loads. The choice of the critical load threshold is crucial for determining the sign of differences. The effect of the spatial averaging for large grid cell sizes (800 and 1600 m) and for high critical loads is to over-estimate the surface that exceeds the low critical loads especially for the Eulerian model, but to under-estimate the surface that exceeds the high critical loads. Also for OPS-ST, changes in resolution (in the sense of sampling of simulation output) affected results especially for the lowest resolutions (800 and 1600 m). Critical load exceedance surfaces were not sensitive to land-use type because the changes in our simulations occurred far enough from sources, where critical loads have anyway not been exceeded.

Accurate assessment of nitrogen deposition depends on model formalism and especially on grid cell size. It also depends on the spatial resolution of the input parameters like emission maps, which ideally need to be provided as very high spatial resolutions. Improvements in information inputs parameters spatial distribution like livestock numbers, agricultural practice and the dependence of emissions on meteorological variables (i.e. temperature, precipitation, wind speed)

are necessary at such high resolution (localized or at least as a despatialised emission distribution) to achieve better estimates of nitrogen dry deposition near source areas.

References

- Angus, A.J., Hodge, I.D., McNally, S., Sutton, M.A., 2003. The setting of standards for agricultural nitrogen emissions: a case study of the Delphi technique. *J. Environ. Management*, 69(4), 323-337.
- Asman, W.A., van Jaarsveld, H. A., 1992. A variable-resolution transport model applied for NH₃ in Europe. *Atmos. Environ. Part A. General Topics*, 26(3), 445-464.
- Asman, W.A.H., 1998. Factors influencing local dry deposition of gases with special reference to ammonia, 590. *Atmos. Environ.*, 32, 415-421, Doi 10.1016/S1352-2310(97)00166-0.
- Bessagnet, B., Menut, L., Curci, G., Hodzic, A., Guillaume, B., Liousse, C., Moukhtar, S., Pun, B., Seigneur, C., Schulz, M., 2009. Regional modeling of carbonaceous aerosols over Europe – Focus on Secondary Organic Aerosols. *J. Atmos. Chem.*, 61, 175–202.
- Bicheron, P., Amberg, V., Bourg, L., Petit, D., Huc, M., Miras, B., Brockmann, C., Hagolle, O., Delwart, S., Ranera, F., Leroy, M., Arino, O., 2011. Geolocation Assessment of MERIS GlobCover Orthorectified Products, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, 49, 2972–2982, doi:10.1109/TGRS.2011.2122337.
- Bobbink, R., Hettelingh, J.P., 2010. Review and revision of empirical critical loads and dose-response relationships. In *Proceedings of an expert workshop, Noordwijkerhout (Vol. 2325)*.
- Bouwman, A.F., Lee, D.S., Asman, W.A.H., Dentener, F.J., Van Der Hoek, K.W., Olivier, J.G.J., 1997. A global high-resolution emission inventory for ammonia. *Glob. Biogeochemical Cycles* 11, 561–587
- Bull, K.R., 1995. Critical loads—possibilities and constraints. *Water, Air, and Soil Pollut.*, 85(1), 201-212.
- Chaney, A.M., Cryer, D.J., Nicholl, E.J., Seakins, P.W., 2011. NO and NO₂ inter-conversion downwind of two different line sources in suburban environments. *Atmos. Environ.*, 45, 5863–5871.
- Coll, I., Rousseau, C., Barletta, B., Meinardi, S., Blake, D.R., 2010. Evaluation of an urban NMHC emission inventory by measurements and impact on CTM results, *Atmos. Environ.*, Vol 44 (31), 3843-3855.
- Dise, N.B., Ashmore, M., Belyazid, S., Bobbink, R., De Vries, W., Erisman, J.W., Spranger, T., Stevens, C., van den Berg, L., 2011. Nitrogen as a threat to European terrestrial biodiversity. In: *The European Nitrogen Assessment*, ed. M. A. Sutton, C. M. Howard, J. W. Erisman et al. Cambridge University Press.
- Dragosits, U., Theobald, M.R., Place, C.J, Lord, E., Webb, J., Hill, J., ApSimon, H.M., Sutton, M.A., 2002. Ammonia emission, deposition and impact assessment at the field scale: a case study of sub-grid spatial variability. *Environ. Pollut.*, 117(1), 147-158.

- ECETOC, 1994. Ammonia emissions to air in Western Europe. Technical Report 62. European Centre for Ecotoxicology and Toxicology of Chemicals, Brussels
- EEA, 2003. Europe's Environment - The Third Assessment Report, p. 341 (European Environment Agency: Copenhagen, Denmark).
- Emberson, L.D., Ashmore, M.R., Simpson, D., Tuovinen, J.-P., Cambridge, H.M., 2000. Towards a model of ozone deposition and stomatal uptake over Europe. EMEP/MSC-W 6/2000, Norwegian Meteorological Institute, Oslo.
- Erismann, J.W., Van Pul, A., Wyers, P., 1994. Parametrization of surface resistance for the quantification of atmospheric deposition of acidifying pollutants and ozone. *Atmos. Environ.*, 28(16), 2595-2607.
- Erismann, J.W., Bleeker, A., Van Jaarsveld, H., 1998. Atmospheric deposition of ammonia to semi-natural vegetation in the Netherlands—methods for mapping and evaluation. *Atmos. Environ.*, 32, 481. doi:10.1016/S1352-2310(97)00276-8
- Erismann, J.W., Bleeker, A., Van Jaarsveld J.A., 1998 (b). Evaluation of ammonia emission abatement on the basis of measurements and model calculations. *Environ. Pollut.*, 102, 269. doi:10.1016/S0269-7491(98)80043-2
- Ewert, E., 1978. Vegetationsschäden in der Umgebung landwirtschaftlicher Tierproduktionsanlagen. *Luft Kältetechn.*, 6:218-220.
- Fangmeier, A., Hadwiger-Fangmeier, A., Van der Eerden, L., Jäger, H.J., 1994. Effects of atmospheric ammonia on vegetation: a review. *Environ. Pollut.*, 86, 43–82.
- Fisher, L.S., Mays, P.A., Wylie, C.L., 2007. An overview of nitrogen critical loads for policy makers, stakeholders, and industries in the United States. *Water, Air and Soil Pollut.*, 179, 3–18.
- Fournier, N., Weston, K.J., Dore, A.J., Sutton, M.A., 2005. Modelling the wet deposition of reduced nitrogen over the British Isles using a Lagrangian multi-layer atmospheric transport model. *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 131(606), 703-722.
- Garber, K., 1935. Über die Physiologie der Einwirkung von Ammoniakgasen auf die Pflanze. *Landwirtsch. Vers. Stat.*, 123, 277-344.
- Garber, K., Schtirmann, B., 1971. Wirkung und Nachweis von Ammoniak-Immissionen in der Nähe von Gross-Stallungen. *Landwirtsch. Forsch.*, 26(1), Sonderheft 20: 36-40.
- Grell, G.A., Dudhia, J., Stauffer, D.R., 1994. A description of the fifth-generation Penn State/NCAR mesoscale model (MM5), NCAR Tech. Note TN-398+STR, 122 pp, 1994.
- Hall, J.R., 1995. Critical loads maps: the UK and Europe. In: *Acid rain and its impacts: the critical loads debate* (Ed. R. W. Battarbee). *Ensis: London*.
- Hallsworth, S., Dore, A.J., Bealey, W.J., Dragosits, U., Vieno, M., Hellsten, S., Tang, S., Sutton, M.A., 2010. The role of indicator choice in quantifying the threat of atmospheric ammonia to the 'Natura 2000' network. *Environ. Science & Policy*, 13(8), 671-687.

- Hamaoui-Laguel, L., Meleux, F., Beekmann, M., Bessagnet, B., Genermont, S., Cellier, P., Letinois, L., 2014. Improving ammonia emissions in air quality modelling for France. *Atmos. Environ.*, 92, 584-595.
- Hansen, M.C., Reed, B., 2000. A comparison of the IGBP DISCover and University of Maryland 1 km global land cover products. *Int. J. Remote Sens.*, 21, 1365–1373.
- Hicks, W.K., Whitfield, C.P., Bealey, W.J., Sutton, M.A., 2011. Nitrogen deposition and Natura 2000: Science and practice in determining environmental impacts. COST office-European Cooperation in Science and Technology.
- Hodzic, A., Bessagnet, B., Vautard, R., 2006. A model evaluation of coarse-mode nitrate heterogeneous formation on dust particles. *Atmos. Environ.*, 40, 4158–4171.
- Honoré, C., Rouïl, L., Vautard, R., Beekmann, M., Bessagnet, B., Dufour, A., Elichegaray, C., Flaud, J.-M., Malherbe, L., Meleux, F., Menut, L., Martin, D., Peuch, A., Peuch, V.H., Poisson, N., 2008. Predictability of European air quality: The assessment of three years of operational forecasts and analyses by the PREV’AIR system, *J. Geophys. Res.*, 113, D04301.
- Hunger, W., 1978. Über Absterbeerscheinungen altern Fichtenbeständen in der Nähe einer Schweinemastanlage. *Beitr. Forstwirtschaft.*, 4: 188-189.
- Hutchings, N.J., Sommer, S.G., Andersen, J.M., Asman, W.A.H., 2001. A detailed ammonia emission inventory for Denmark. *Atmos. Environ.*, 35, 1959–1968.
- Kim, Y., Seigneur, C., Duclaux, O., 2014. Development of a plume-in-grid model for industrial point and volume sources: application to power plant and refinery sources in the Paris region, *Geosci. Model Dev.*, 7, 569-585, doi:10.5194/gmd-7-569-2014.
- Krupa, S.V., 2003. Effects of atmospheric ammonia (NH₃) on terrestrial vegetation: a review. *Environ. Pollution.*, 124(2), 179-221.
- Kronvang, B., Aertebjerg, G., Grant, R., Kristensen, P., Hovmand, M.F., Kirkegaard, J., 1993. Nation-wide Monitoring of Nutrients and their Ecological Effects. *Ambio*, 22, 176.
- König, J., 1896. Der Schutz gegen Flurschädigung durch gewerbliche Einwirkungen. *Arb. Dt. Landwirtschaft.-Ges. H.*, 14, 22.
- Lazrak, E.G., Mari, J.F., Benoit, M., 2010. Landscape regularity modelling for environmental challenges in agriculture. *Landscape Ecol.*, 25:169–183
- Lazrak, E.-G., Mari, J.-F., Passy, P., Barataud, F., Mignolet, C., 2014. Conception d’une typologie fonctionnelle des paysages pour la modélisation territoriale des flux hydriques et atmosphériques de l’azote. Colloque PAYOTE, 16-17/09/2014, Paris.
- Menut, L., Bessagnet, B., Khvorostyanov, D., Beekmann, M., Blond, N., Colette, A., Coll, I., Curci, G., Foret, G., Hodzic, A., Mailler, S., Meleux, F., Monge, J.-L., Pison, I., Siour, G., Turquety, S., Valari, M., Vautard, R., Vivanco, M.G., 2014. CHIMERE 2013: a model for regional atmospheric composition modelling. *Geosci. Model Dev.*, 6(4), 981-1028.

- Neiryneck, J., Kowalski, A.S., Carrara, A., Ceulemans, R., 2005. Driving forces for ammonia fluxes over mixed forest subjected to high deposition loads. *Atmos. Environ.*, 39(28), 5013-5024.
- Oenema, O., Van Liere, L., Plette, S., Prins, T., Van Zeijts, H., Schoumans, O., 2004. Environmental effects of manure policy options in the Netherlands. *Water Science and Technol.*, 49(3), 101-108.
- Putaud, J.P., Van Dingenen, R., Alastuey, A., Bauer, H., Birmili, W., Cyrys, J., Harrison, R. M., 2010. A European aerosol phenomenology-3: Physical and chemical characteristics of particulate matter from 60 rural, urban, and kerbside sites across Europe. *Atmos. Environ.*, 44(10), 1308-1320.
- Sauter, F., Van Jaarsveld, H., Van Zanten, M., Van der Swaluw, E., Aben, J., de Leeuw, F., 2015. The OPS-model. Description of OPS 4.4.4. RIVM Report, National Institute for Public Health and the Environment (RIVM), Bilthoven, The Netherlands. 113 pp. <http://www.rivm.nl/media/ops/v4.4.4/OPS-model-v4.4.4.pdf>
- Schmidt, H., Derognat, C., Vautard, R., Beekmann, M., 2001. A comparison of simulated and observed ozone mixing ratios for the summer of 1998 in Western Europe. *Atmos. Environ.*, 35, 6277-6297.
- Schou, J.S., Tybirk, K., Løfstrøm, P., Hertel, O., 2006. Economic and environmental analysis of buffer zones as an instrument to reduce ammonia loads to nature areas, *Land Use Policy*, 23, 533-541.
- Sharpe, R.R., Harper, L.A., 1995. Soil, plant and atmospheric conditions as they relate to ammonia volatilization. In *Nitrogen Economy in Tropical Soils* (pp. 149-158). Springer Netherlands.
- Sutton, M.A., Milford, C., Dragosits, U., Place, C.J., Singles, R.J., Smith, R.I., Pitcairn, C.E.R., Fowler, D., Hill, J., ApSimon, H.M., Ross, C., Hill, R., Jarvis, S.C., Pain, B.F., Phillips, V.C., Harrison, R., Moss D., Webb, J., Espenhahn, S.E., Lee, D.S., Hornung, M., Ullyett, J., Bull, K.R., Emmett, B.A., Lowe, J., Wyers, G.P., 1998. Dispersion, deposition and impacts of atmospheric ammonia: quantifying local budgets and spatial variability. *Environ. Pollut.*, 102, 349-361.
- Tesche, M., Schmidtchen, A., 1978. Schädigungen an Koniferen in der Umgebung von Anlagen der Industriemässigen Hühnerhaltung. *Arch. Phytopathol. Pflanzenschutz*, 5: 327-332.
- Theobald, M.R., Løfstrøm, P., Walker, J., Andersen, H.V., Pedersen, P., Vallejo, A., Sutton, M.A., 2012. An intercomparison of models used to simulate the short-range atmospheric dispersion of agricultural ammonia emissions. *Environ. Model. Softw.*, 37, 90-102.
- van Jaarsveld, J.A., Bleeker, A. and Hoogervorst, N.J.P., 2000. Evaluatie ammoniakredukties met behulp van metingen en modelberekeningen. RIVM, Bilthoven, the Netherlands. Report no. 722108025.
- van Jaarsveld, J.A., 2004. The Operational Priority Substances model. Description and validation of OPS-Pro 4.1. RIVM-report 500045001. RIVM, Bilthoven, The Netherlands.

van Pul, W.A.J., van Jaarsveld, J.A., Vellinga, O.S., van den Broek, M., Smits, M.C.J., 2008. The VELD experiment: an evaluation of the ammonia emissions and concentrations in an agricultural area. *Atmos. Environ.*, 42, 8086-8095.

van Zanten M.C., Sauter F.J., Wichink Kruit R.J., van Jaarsveld J.A., van Pul W.A.J., 2010. Description of the DEPAC module, Dry deposition modelling with DEPAC_GCN2010, RIVM report 680180001, RIVM, Bilthoven.

Vieno, M., Dore, A. J., Stevenson, D. S., Doherty, R., Heal, M. R., Reis, S., Hallsworth, S., Tarrason, L., Wind, P., Fowler, D., Simpson, D., Sutton, M. A., 2010. Modelling surface ozone during the 2003 heat-wave in the UK. *Atmos. Chem. and Phys.*, 10(16), 7963-7978.

Vitousek, P. M., Howarth, R. W., 1991. Nitrogen limitation on land and in the sea: how can it occur? *Biogeochemistry*, 13(2), 87-115.

Chapitre VI : Discussion générale

VI. Discussion générale

Ce travail de thèse a permis de comparer le comportement de deux modèles simulant la dispersion, le transport et le dépôt d'ammoniac par voie atmosphérique et fonctionnant classiquement à des échelles spatiales différentes (i.e. locale pour OPS-ST et régionale pour CHIMERE). Ce travail a eu pour application l'évaluation des dépassements des charges critiques en NH_3 sur les écosystèmes, notamment dans le cas d'écosystèmes sensibles situés à proximité de sources d'émissions intensives. Pour cette évaluation, nous avons quantifié l'effet du formalisme des modèles (i.e. gaussien et eulérien), ainsi que l'effet de la résolution spatiale horizontale sur les résultats de simulations, d'une part à une échelle locale pour l'estimation des dépassements de charges critiques à proximité des sources, et d'autre part à une échelle spatiale plus large pour l'estimation des flux moyens sur l'ensemble du domaine d'étude. Les deux modèles utilisés ont déjà été validés et utilisés dans des travaux précédents pour simuler les flux de NH_3 à des échelles spatiales différentes ; ils ont aussi été utilisés pour évaluer les impacts de ces flux sur l'environnement. Nous avons montré une variabilité des dépôts secs de NH_3 simulés en fonction du modèle utilisé et des cas d'étude qui se caractérisent par des différences dans les résolutions spatiales, les localisations et intensités des émissions de NH_3 , les conditions météorologiques et les occupations des sols. Cette variabilité peut être expliquée par les différences entre les processus modélisés par chacun des deux modèles, les différences de formalisme pour représenter les processus (e.g. dispersion, turbulence, dépôt) ou encore les différences dans les conditions aux limites et les hypothèses propres à chaque modèle (e.g. conditions météorologiques, soulèvement de panache). Les résultats présentés dans les chapitres IV et V montrent que les dépôts secs de NH_3 dépendent essentiellement de plusieurs facteurs :

- La hauteur de la source : pour le modèle eulérien, la hauteur de la source est fonction de la résolution verticale et dépend essentiellement de la pression et du nombre de couches verticales choisi par l'opérateur ; de plus, le polluant est mélangé d'une façon homogène sur toute la couche et la hauteur de la source correspond généralement à la résolution verticale de la première couche ; pour le modèle à panache gaussien, la hauteur de panache dépend essentiellement de la hauteur de la source.
- La résistance de surface (ou du couvert) : elle est le facteur le plus complexe à déterminer pour estimer les dépôts secs car elle dépend fortement des caractéristiques de surface, des paramètres météorologiques et aussi des caractéristiques chimiques du polluant. Elle représente les caractéristiques physiques du récepteur.

- La vitesse du vent et la longueur de rugosité de surface z_0 : les dépôts secs sont essentiellement influencés par le vent de surface qui peut varier en fonction de la rugosité de surface. Wieringa et Rijkoort (1983) ont montré qu'à partir d'une hauteur de 60 m au-dessus de la surface, le vent n'est plus influencé par la rugosité de surface. La fraction de NH_3 déposée augmente avec la longueur de rugosité. Ceci peut être expliqué par deux processus : le premier est la diminution de la vitesse du vent au niveau de la surface avec la longueur de rugosité, ce qui conduit à une augmentation de la concentration et donc du dépôt ; le deuxième processus est la turbulence qui augmente lorsque la longueur de rugosité augmente, ce qui conduit à une augmentation de la vitesse de dépôt.
- La résolution spatiale : elle est calculée différemment selon les modèles. Elle représente soit une distance entre deux points récepteurs (i.e. densité d'échantillonnage) dans des modèles de type OPS-ST qui utilisent une solution analytique, soit les dimensions d'une « boîte eulérienne » pour les modèles de type CHIMERE.

VI.1. La résolution spatiale (verticale et horizontale)

Pour le modèle OPS-ST, le terme résolution spatiale n'est pas bien adapté, mais le choix de l'utiliser dans notre travail permet de simplifier la compréhension car elle représente la distance entre deux points récepteurs. Les résultats présentés dans les chapitres IV et V mettent en évidence l'effet de la résolution spatiale (verticale et horizontale) sur les dépôts secs de NH_3 simulés par les deux modèles. Une très grande variabilité spatiale des dépôts secs a été observée en fonction de la résolution spatiale des modèles. Cette différence peut s'expliquer par les différences dans le formalisme des modèles (i.e. gaussien ou eulérien), la complexité des modèles (i.e. les processus intégrés dans le modèle), la taille du domaine étudié, ou encore la disponibilité des données d'entrée. Par ailleurs, les simulations sur de très grands domaines spatiaux ont des limites imposées par les ressources informatiques qui ne permettent pas de traiter de gros volumes de données d'entrée, ni de générer des données de sortie à de fortes résolutions spatiales dans des temps de simulation raisonnables.

Le formalisme des modèles ainsi que la résolution spatiale peuvent avoir un fort impact sur les prédictions des dépôts selon deux manières différentes :

- La manière d'intégrer les processus dans les modèles peut varier en fonction de la résolution spatiale. Par exemple, à une faible résolution spatiale (verticale et horizontale), les mélanges verticaux instantanés des gaz tels que l'ammoniac sont plus importants qu'à forte résolution. Ceci peut conduire à des concentrations plus faibles pour le volume de la maille et donc une sous-estimation des dépôts. Ce résultat a été montré dans le chapitre IV,

dans lequel les deux profils verticaux de concentration sont comparés. Le modèle OPS-ST prédit une concentration plus élevée à la hauteur du récepteur, ce qui explique un dépôt moyen plus élevé en comparaison au dépôt moyen simulé par CHIMERE.

- Le calcul des moyennes spatiales des valeurs des données d'entrée, ainsi que celui des concentrations atmosphériques modélisées et des dépôts secs, peut avoir un effet non négligeable sur les prédictions des dépôts. La concentration en NH_3 dans l'air peut varier sensiblement à l'échelle de quelques dizaines de mètres à proximité d'une source de forte intensité (e.g. bâtiments d'élevage). Généralement, les modèles d'évaluation des impacts environnementaux utilisent des résolutions spatiales pouvant descendre jusqu'à quelques km^2 pour les modèles fonctionnant aux échelles les plus fines (Hallsworth et al., 2010). L'augmentation de la résolution spatiale peut permettre aux modèles de moyenniser les valeurs des données d'entrée et des données simulées sur des zones plus petites et d'être plus efficaces pour prendre en compte les « hot-spots » d'émissions, ce qui peut conduire à des résultats différents pour l'évaluation des dépassements des charges et des seuils critiques (Hallsworth et al., 2010).

Théoriquement, pour les modèles eulériens, l'augmentation de la résolution spatiale s'accompagne d'une augmentation des dépôts secs de NH_3 (cf. section IV.3.1). Ce résultat est toujours vérifié pour CHIMERE quelle que soit la résolution spatiale (cf. sections IV.3.1 et V.3.1). Il peut être expliqué par des phénomènes géométriques (volume de la boîte eulérienne), mais aussi par la position des mailles émettrices, qui peuvent être déplacées et ainsi favoriser l'advection en dehors du domaine. En revanche, pour OPS-ST, cette variation est loin d'être linéaire. La figure VI.1 montre que pour OPS-ST, le dépôt peut varier d'une manière aléatoire pour des faibles résolutions spatiales. En réalité, OPS-ST calcule les dépôts secs au niveau de chaque récepteur en fonction de la distance entre la source et le récepteur ; la position du récepteur par rapport à la source est donc cruciale.

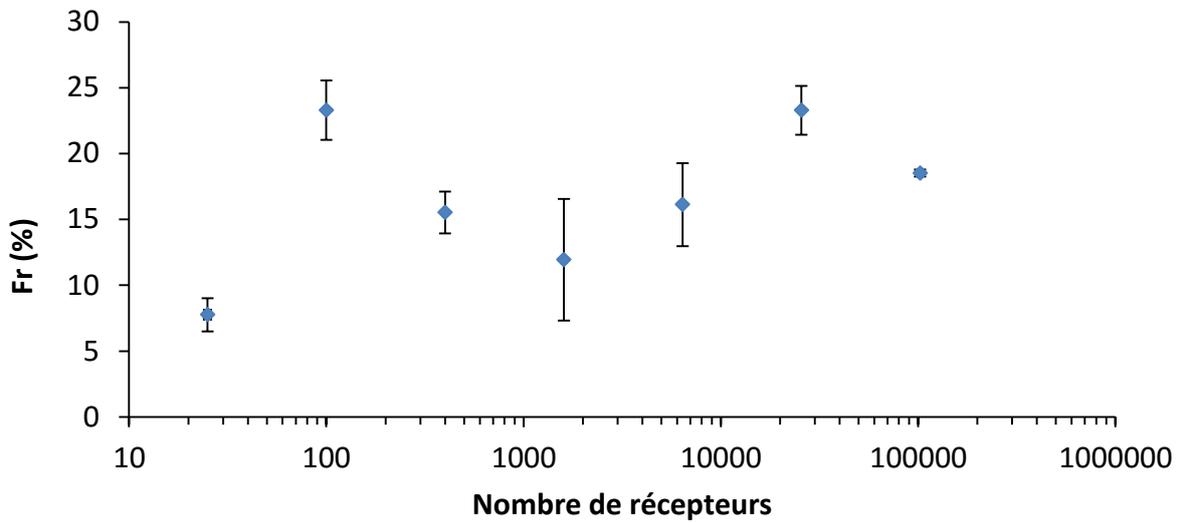


Figure VI.1. Fraction de NH_3 déposée sur le domaine (issu des données d'émission du chapitre V) calculée avec OPS-ST pour différentes valeurs du nombre de récepteurs. L'écart-type est calculé pour 5 positions de sources émettrices et pour chaque nombre de récepteurs.

VI.1.1. Effet de la distance entre sources et récepteurs avec OPS-ST

La position des récepteurs par rapport aux sources ainsi que leur nombre pourrait avoir un impact sur la fraction de NH_3 qui est déposée sur le domaine. Le modèle OPS-ST n'est pas spatialisé, de sorte que la position des récepteurs par rapport à la position de la source est déterminante. La figure VI.I montre que, avec OPS-ST, la variation des dépôts secs de NH_3 en fonction du nombre de récepteurs n'est pas linéaire par rapport au nombre de récepteurs utilisés dans le domaine et pour une répartition spatiale des sources d'émissions donnée. La valeur la plus élevée de dépôt sec a été simulée lorsque les sources étaient très proches des récepteurs (entre 10^4 et 10^5 récepteurs sur le domaine). Pour créer des cartes de dépôt, le modèle OPS-ST a besoin de moyenniser le dépôt calculé au niveau d'un récepteur sur la surface des mailles aux dimensions fixées par l'utilisateur, ce qui explique en partie la forte variabilité des dépôts simulés en fonction du nombre de récepteurs. La figure VI.1 montre également l'effet de la position des sources par rapport à la carte des émissions. L'écart-type a été calculé pour cinq positions d'émission différentes pour le même nombre de récepteurs sur le domaine. L'écart-type le plus faible (~ 0.5) a été simulé pour le nombre de récepteurs le plus élevé (1 récepteur tous les 25 m), ce qui pourrait être expliqué par une distance quasi-constante entre les sources et les récepteurs. Une plus grande distance entre les récepteurs (i.e. un moins grand nombre de récepteurs sur le domaine) pourrait accroître la variabilité des dépôts secs, avec une variabilité non linéaire. Cette forte variabilité dépend aussi du nombre de sources, de la distance entre les sources et les récepteurs, et aussi d'autres paramètres d'entrée du modèle (e.g. vitesse du vent, hauteur d'émission). Les résultats montrent que la distance entre deux récepteurs ne doit pas dépasser 100 m pour obtenir des résultats avec des

barres d'erreur proches de celui simulé dans la situation de référence (i.e. distance de 25 m entre les récepteurs). Pour des distances entre récepteurs plus grandes (e.g. 200 m), les dépôts secs peuvent varier d'un facteur 2. Ces résultats montrent combien il est important d'utiliser un nombre de récepteurs suffisant pour un modèle comme OPS-ST. Ainsi, une distance de 25 m ou de 50 m entre deux récepteurs apparaît la plus appropriée. D'autres travaux confirment nos résultats : van Pul et al. (2008) et Theobald et al. (2012) ont utilisé le modèle OPS-ST avec une distance de 25 m entre les récepteurs ; Jonges et al. (2015) l'ont utilisé avec une distance de 10 m entre les récepteurs.

Pour les cas d'étude présentés dans les chapitres IV et V, le modèle OPS-ST a été utilisé avec un nombre des récepteurs et une distance entre sources et récepteurs constante (50 m pour le chapitre IV et 25 m pour le chapitre V). Les résultats ont ensuite été moyennés sur des mailles de différentes tailles (pseudo-résolution), ce qui explique les dépôts secs moyens constants simulés avec OPS-ST pour les différentes tailles de mailles. Ce choix a été motivé par les fortes différences du dépôt moyen en fonction du nombre de récepteurs, de la distance entre les récepteurs, des limites d'utilisation des modèles du type OPS-ST.

VI.1.2. Effet de la hauteur de la source

Il apparaît clairement qu'une comparaison directe entre les deux modèles pour quantifier leur sensibilité à la hauteur de la source ne peut pas être objective car, dans les modèles eulériens, l'épaisseur de la couche de surface dépend de la pression atmosphérique. Il est toutefois nécessaire de mentionner la nécessité de bien représenter la hauteur de la source en se basant sur d'autres travaux (Sutton et al., 1998 ; Fowler et al., 1998) qui montrent que les dépôts secs à proximité des sources sont d'autant plus élevés que la hauteur de la source est faible. Ces dépôts élevés peuvent aussi s'expliquer par l'augmentation de la concentration de surface en NH_3 à proximité des sources d'émissions situées à faible hauteur (Janssen et Asman, 1988). Les fortes diminutions des dépôts secs de NH_3 avec l'augmentation de la hauteur de la source montrent la nécessité d'utiliser des hauteurs de source précises pour les modèles de transport atmosphérique, quel que soit le formalisme du modèle. La variation de hauteur de la source peut aussi influencer sur le transport, une source située en position haute pouvant déposer faiblement dans les premiers mètres à proximité immédiate de la source. Cette tendance peut s'expliquer par la forme et la hauteur du panache qui n'atteint pas rapidement le sol ; les dépôts secs ont alors lieu dans des zones situées en aval et éloignées de la source. Pour les modèles à panache gaussien, la hauteur mesurée directement sur le terrain est déterminante, alors que pour les modèles eulériens, c'est la résolution verticale qui est déterminante. L'effet majeur de la hauteur de la source dans les modèles eulériens nous renvoie

directement à l'effet majeur de la résolution verticale, avec un formalisme différent entre les deux approches de modélisation (Loubet et al., 2009). Néanmoins, nous avons pu montrer qu'en diminuant la hauteur de la première couche à une hauteur double de la hauteur d'émission, les fractions déposées devenaient similaires entre les deux modèles.

VI.2. Effet du type de couvert

Les modèles atmosphériques utilisent des cartes d'occupations des sols spatialisées avec différentes classes (davantage que les 9 classes utilisées par OPS-ST et CHIMERE) en réduisant leur nombre fortement afin de pouvoir les exploiter en données d'entrée. Cette simplification est généralement basée sur des hypothèses qui regroupent dans chacune des classes des facteurs se rapportant à un même type de données (e.g. type et hauteur du couvert, LAI). La diminution du nombre de classes d'occupations des sols (eau, urbain, forêt, prairie...) s'accompagne aussi d'une représentation moyennée des différentes classes présentes dans chacune des mailles des modèles lorsque la résolution spatiale des cartes des occupations des sols est supérieure à celle des modèles (cas le plus fréquent). Les deux modèles calculent la vitesse de dépôt pour chaque surface élémentaire de la maille, pondérée par la surface de chaque classe et moyennée sur la surface totale de la maille. Cette double simplification (réduction du nombre de classes et utilisation de valeurs moyennes) élimine la forte variabilité spatiale des occupations des sols qui peut exister dans la réalité dans chacune des mailles. Le calcul de la résistance de surface R_c , et par conséquent du dépôt, ne prend pas en considération cette variabilité qui peut être très élevée à une échelle locale (i.e. quelques dizaines de mètres) et particulièrement à proximité des sources (cf. section V.3.3). Ceci peut induire une sous-estimation des dépôts secs près des sources dans le cas où la moyenne sous-estime la vitesse de dépôt à proximité immédiate des sources et par conséquent surestime les dépôts secs dans des zones éloignées des sources (cf. section IV.3.3). Pour les occupations des sols qui représentent des écosystèmes sensibles, le calcul du dépôt sec au niveau de la maille d'un modèle atmosphérique fonctionnant à l'échelle régionale est basé sur une concentration moyenne de la maille et sur une vitesse de dépôt sec non spécifique de l'écosystème. Il est donc important de redistribuer les différentes occupations des sols dans chacune des mailles du modèle d'une manière réaliste. Les résultats du chapitre V montrent que cette variabilité spatiale des occupations des sols affecte très peu les dépôts moyens sur l'ensemble du domaine de simulation. Comme cela est expliqué ci-dessus, l'utilisation des cartes d'occupations des sols à forte résolution spatiale dans des modèles à faible résolution spatiale n'est pas suffisante pour obtenir une meilleure qualité des résultats de simulations. Il est important de constater que l'effet

de la résolution des cartes d'occupations des sols est maximal quand la résolution spatiale de ces cartes est égale à celle des modèles.

Le type ou la nature de la surface (i.e. du couvert) représente le support du dépôt ou récepteur. Les propriétés physiques de la surface sont prises en compte essentiellement pour le calcul de la résistance de surface R_c , même s'il est vrai que la hauteur du couvert influence aussi les résistances R_a et R_b . La résistance de surface R_c est calculée en fonction de différents paramètres, empiriques généralement, qui dépendent du type de couvert et de la période de l'année. La résistance stomatique R_s dépend fortement du type de couvert, et une variation de cette résistance s'accompagne généralement d'une variation de la concentration et du dépôt sec en fonction de la distance à la source. Une variation de 50% de R_s peut entraîner une variation des dépôts secs moyens annuels de 40% (Loubet, 2001). Ce résultat est en contradiction avec nos travaux dans lesquels la résistance stomatique n'affecte pas autant la résistance de surface R_c et donc les dépôts secs moyens annuels. Ce résultat peut être expliqué par la position des sources : lorsque les sources sont placées essentiellement dans les prairies caractérisées par un faible LAI pendant toute l'année (domaines « Blavet sud » et « Blavet centre »), la résistance stomatique (R_s) est très faible et peu variable pendant la période de simulations. La résistance dans le couvert R_{inc} intervient en parallèle à la résistance stomatique dans la résistance de surface. Elle dépend essentiellement du LAI et de u_* et devient prépondérante dans notre cas d'étude semi-réel. Cela peut s'expliquer par la grande différence de hauteur du couvert entre les forêts et les prairies, entraînant des différences dans les valeurs de vitesse de frottement u_* , et aussi des fortes différences dans les valeurs des autres résistances R_a et R_b , entre ces deux types de couvert (cf. section V.3.3).

La hauteur de déplacement d et la longueur de rugosité z_0 sont estimées généralement d'une manière empirique comme étant égales respectivement à $0.7 h$ et $0.1 h$, h étant la hauteur du couvert. Il apparaît clairement à partir de nos résultats que le dépôt moyen croît lorsque la hauteur du couvert augmente, correspondant à une augmentation de z_0 et d . Les valeurs de z_0 ont été fixées à différentes valeurs pour les cas d'étude présentés dans le chapitre IV ; en revanche, dans le chapitre V, les valeurs de z_0 ont été homogénéisées pour les deux modèles à partir des données de typologie des occupations des sols (Tab. V.1). L'augmentation des dépôts secs moyens de NH_3 en fonction de z_0 peut s'expliquer par l'augmentation de la vitesse de frottement u_* et donc de l'intensité de la turbulence. Asman (1998) a montré à l'inverse que l'augmentation de la hauteur du couvert diminue le dépôt sec moyen. Toutefois, même si ces résultats peuvent paraître contradictoires, il est à noter que dans nos travaux, la hauteur d'émission est constante, alors que dans les travaux de Asman (1998), la variation de la hauteur du couvert s'accompagnait d'une

variation de la hauteur de la source ; dans ce cas, l'effet de la dilution est seulement lié aux variations de u_* , alors que z_0 est le paramètre le plus influent sur le dépôt sec.

La figure VI.2 représente la différence entre les dépôts secs de NH_3 journaliers entre les domaines « Blavet centre » et « Blavet sud », simulés avec OPS-ST. Pour une taille de maille de 25 m, la courbe de régression choisie (courbe de tendance de type « lowess ») est une méthode de régression non-paramétrique, elle permet de produire des courbes lissées, ajustées à un nuage de points. Les différences des valeurs de dépôt en fonction des jours de l'année présentent des valeurs négatives en en automne et en hiver et des valeurs positive au printemps et en été. Cette variabilité peut être expliquée par un dépôt plus élevé dans le domaine « centre » au printemps et en été par rapport à l'automne et à l'hiver, en raison du développement de la végétation à partir du mois d'avril, en particulier dans les zones forestières.

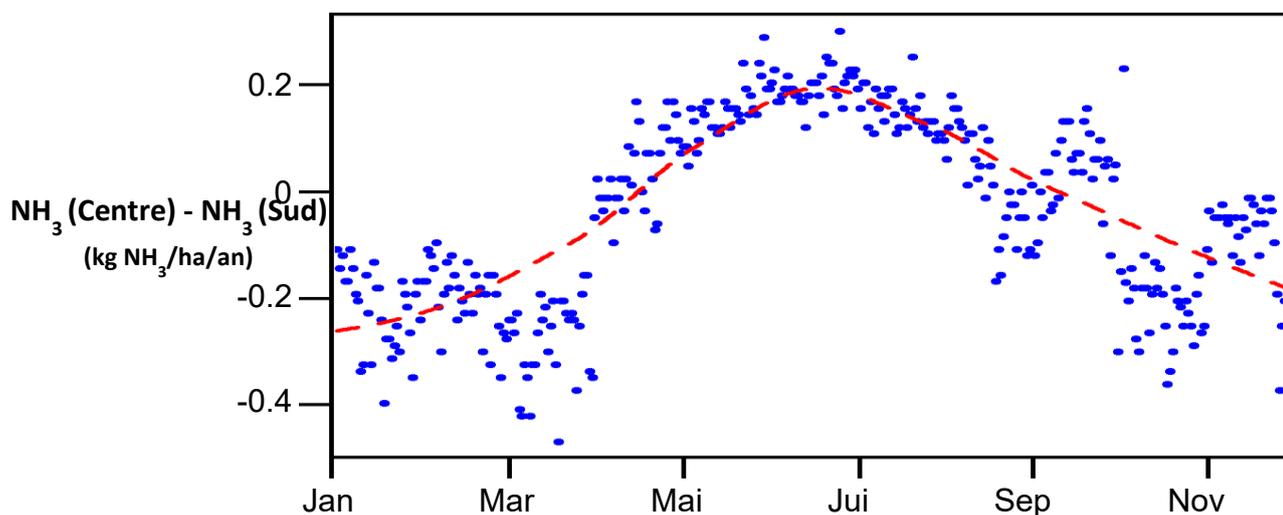


Figure VI.2: Différences, entre le domaine « Blavet sud » et le domaine « Blavet centre », de dépôts secs moyens journaliers de NH_3 , simulés avec le modèle OPS-ST à une résolution spatiale de 25 m (points bleus). La régression est calculée par la méthode « lowess » (courbe rouge).

Ce résultat est cohérent avec nos attentes car, lorsque la résolution spatiale des modèles et des cartes d'occupations de sol sont équivalentes (e.g. 25 m), les deux modèles utilisent directement les informations fournies par ces cartes, sans pondération de moyenne, ce qui améliore la sensibilité du modèle OPS-ST à la variabilité spatiale des occupations des sols. Hormis la résolution spatiale des modèles et des cartes d'occupations des sols, la position des sources peut aussi influencer la sensibilité des modèles à la résolution des cartes d'occupations des sols. Pour une source située à proximité d'une classe d'occupations des sols ayant une faible résistance de surface, le dépôt local est très sensible à la résolution spatiale horizontale du modèle. A l'inverse, si la source est située à proximité d'une classe ayant une forte résistance de surface, l'effet de la

résolution spatiale du modèle est moins important. Les résolutions spatiales des modèles et des cartes d'occupations des sols peuvent aussi influencer les résultats de simulation à l'échelle de plusieurs années. L'utilisation des cartes d'occupations des sols à fortes résolutions spatiales n'améliore pas toujours les prédictions, mais, dans le cas d'une étude d'impact (e.g. évaluation des charges critiques), l'effet de la résolution spatiale peut être très élevé, notamment à proximité des sources.

La comparaison directe des dépôts secs moyens annuels de NH_3 présentée dans le chapitre V (cf. section V.3.1) montre des différences entre les domaines « Blavet centre » et « Blavet sud » pour les mois de février et juillet (Fig. VI.3). La caractéristique principale qui différencie les deux domaines est la présence de forêt au nord du domaine « centre ». Pour le mois de février, la différence de dépôts secs entre les deux domaines est faible mais négative pour la partie occupée par la forêt ; cette tendance s'inverse au mois de juillet où la différence entre les domaines « centre » et « sud » devient positive. Cette variation temporelle de dépôt sec entre les deux domaines peut être expliquée par la résistance de surface qui varie fortement en fonction de l'indice foliaire du couvert végétal (LAI). Pour le mois de juillet, le LAI des forêts augmente et leur résistance de surface diminue, ce qui favorise le dépôt sec. A côté des sources, la différence quasi-constante et proche de zéro entre les deux domaines peut s'expliquer par les occupations des sols à proximité immédiate des sources. Pour les deux domaines, les sources ne sont pas localisées dans le voisinage immédiat des forêts, mais se situent essentiellement à proximité des prairies ou des cultures. Cette similarité entre les classes d'occupations des sols à proximité des sources peut expliquer la différence constante entre le dépôt sur les deux domaines car, temporellement, les deux couverts évoluent d'une manière similaire. Il est à noter qu'une mauvaise prise en compte de la structure du couvert végétal due à un manque d'information, au choix d'une résolution spatiale faible ou encore à une paramétrisation peu précise, peuvent influencer les valeurs de dépôts simulés, en particulier à proximité des sources.

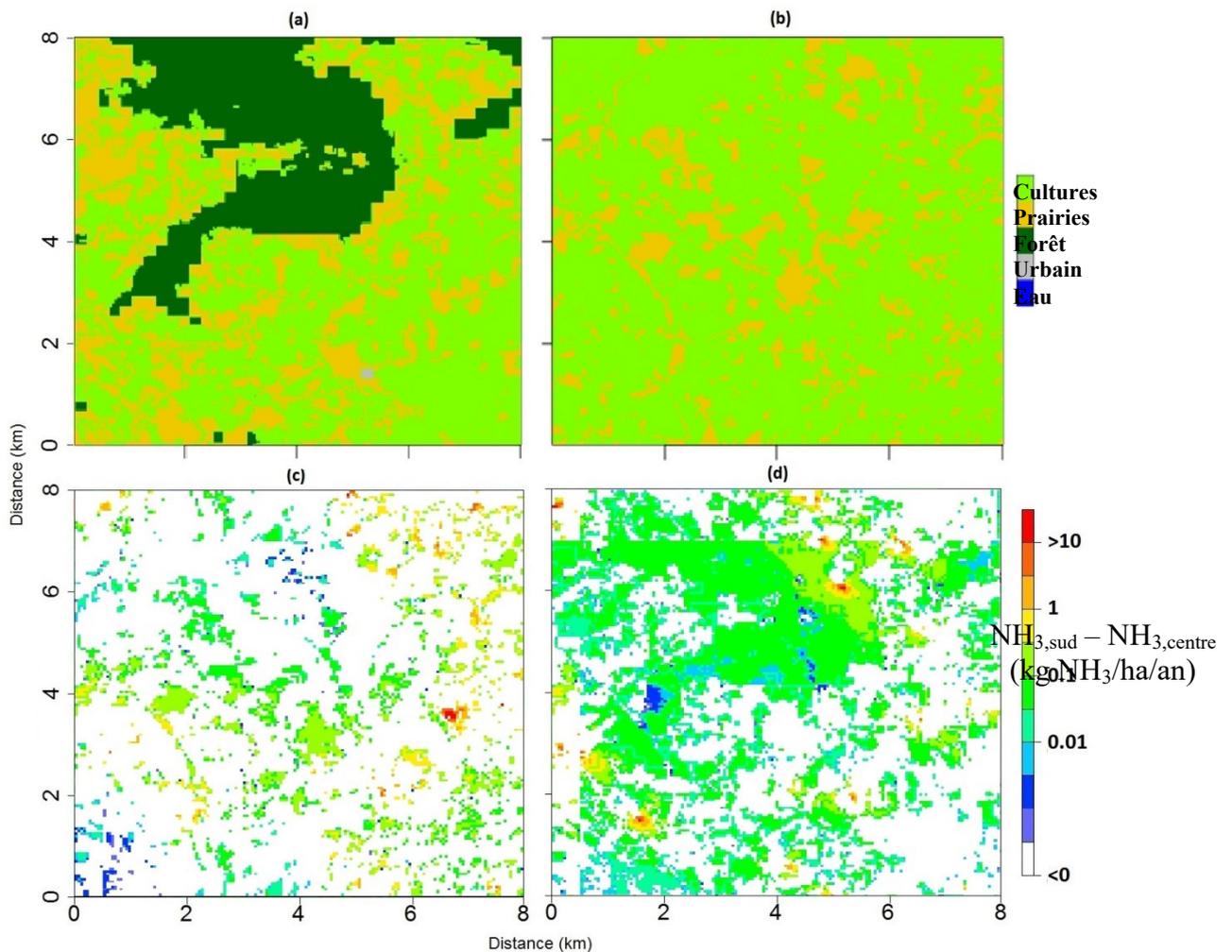


Figure VI.3: Différences entre le domaine « Blavet centre » (a) et le domaine « Blavet sud » (b) de dépôts secs moyens annuels de NH_3 simulés sur ces deux domaines avec le modèle OPS-ST à une résolution spatiale de 25 m, pour les mois de février (c) et juillet (d).

VI.3. Effet des conditions météorologiques

L'identification et la quantification de l'effet des facteurs influençant le dépôt sec n'est pas aisé en raison des liens entre les effets résultant exclusivement de la météorologie et ceux résultant de la structure du couvert. En effet, la météorologie peut avoir un effet direct sur le transport advectif et turbulent, ainsi que sur le dépôt, via la turbulence et le fonctionnement physiologique du couvert. Notons que les effets de ces deux facteurs sur les émissions ne sont pas pris en compte dans notre étude. L'effet sur le couvert affecte directement la résistance de surface R_c , difficile à calculer en raison de la complexité des différentes « sous-résistances » comme la résistance stomatique ou la résistance cuticulaire qui dépendent essentiellement des conditions météorologiques (e.g. température, humidité, rayonnement). Pour ces différentes raisons et afin de comparer de manière cohérente les deux modèles et quantifier l'effet des facteurs météorologiques, la résistance de surface R_c a été fixée dans le cas d'étude idéalisé. La vitesse du vent peut avoir deux effets

opposés sur le dépôt sec de NH_3 . Une vitesse de vent élevée diminue les résistances aérodynamique turbulente (R_a) et laminaire (R_b), ce qui augmente la vitesse de dépôt, alors que la résistance de surface (R_c) ne dépend pas de la vitesse du vent. Pour des vitesses de vent faibles, les résistances R_a et R_b ont un effet majeur par rapport à R_c et sont donc limitantes pour la vitesse de dépôt. D'autre part, l'augmentation de la vitesse du vent génère une advection plus rapide et favorise le mélange dans la couche limite, ce qui réduit la concentration à la surface et, par conséquent, diminue le dépôt sec près de la source. En raison de ces effets opposés, le dépôt est maximal à une vitesse de vent qui peut différer entre les modèles en fonction des hypothèses de calcul des différentes résistances et des formalismes des processus de dispersion et d'advection.

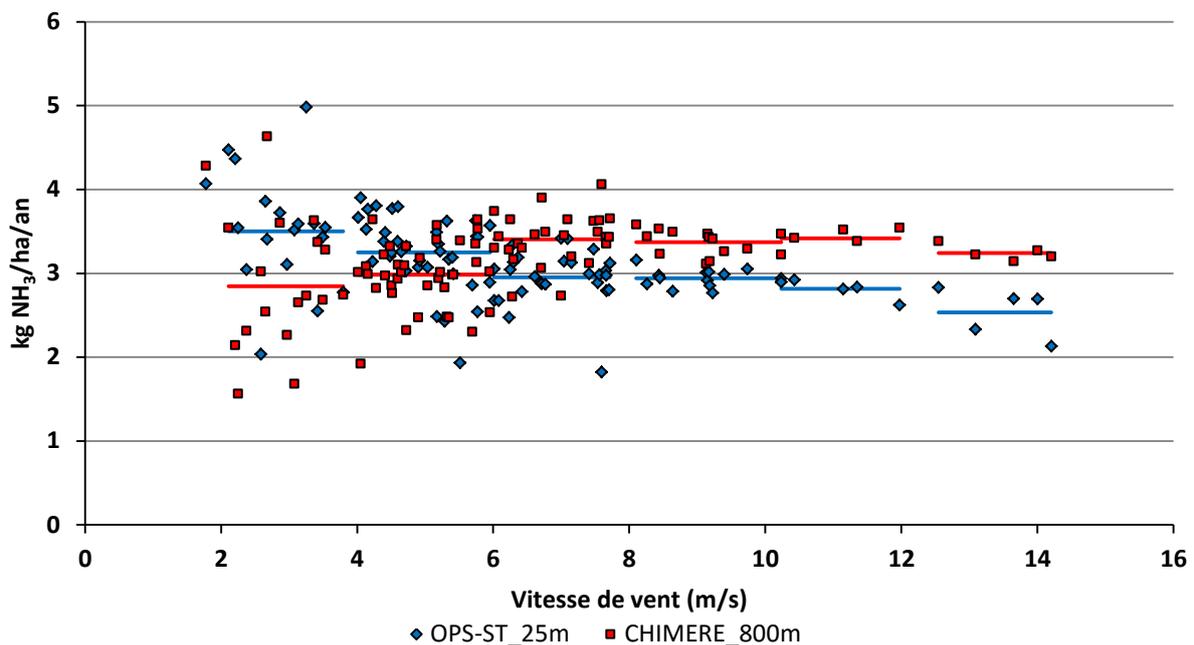


Figure VI.4 : Dépôts secs journaliers de NH_3 sur le domaine « Blavet centre » en fonction de la vitesse moyenne journalière du vent. Les simulations ont été effectuées avec OPS-ST à une résolution de 25 m et avec CHIMERE à une résolution de 800 m. Les points représentent le dépôt sec journalier de NH_3 pour chaque vitesse de vent et les lignes représentent le dépôt sec moyen pour différentes classes de vitesse du vent (2-4, 4-6, 6-8, 8-10, 10-12, >12 m/s).

Dans le cas des simulations réalisées avec le modèle OPS-ST à une résolution spatiale de 50 m, les résultats présentés dans le chapitre IV montrent que la vitesse optimale de dépôt est de l'ordre de 3 m/s, ce qui est en accord avec les résultats du chapitre V où le dépôt maximal est simulé pour une tranche de vitesse de vent entre 2 et 4 m/s. Le modèle CHIMERE se comporte d'une manière très différente du modèle OPS-ST : le dépôt maximal est quasiment constant pour une vitesse de vent supérieure à 6 m/s ; cela est contradictoire avec les résultats du chapitre IV dans lequel les dépôts secs de NH_3 diminuent avec la vitesse du vent (> 3 m/s) (Fig. VI.4). Cela pourrait être expliqué

par une dépendance de la résistance de surface (R_c) aux données météorologiques, ou aussi par le dépôt humide qui n'a pas été pris en compte (i.e. précipitations nulles) dans le chapitre IV.

VI.4. Evaluation des dépassements des charges critiques

Les charges critiques correspondent aux quantités de polluants, l'ammoniac dans notre cas, qui sont déposées à la surface et au-dessus desquelles des effets indésirables peuvent se produire sur des récepteurs tels que la végétation (UBA, 2004). Les dépassements de charges critiques peuvent être très différents en fonction des hypothèses et des formalismes des modèles, des échelles spatiales représentées dans les modèles, des conditions météorologiques, des valeurs des paramètres de surface, ou encore des méthodes de calcul de la vitesse de dépôt. La spécificité des modèles et des données d'entrée peuvent conduire à des divergences entre les modèles et à une grande variabilité dans les simulations des dépôts secs de NH_3 . En raison des dépôts élevés à proximité des sources, les écosystèmes sensibles (e.g. réserves de biodiversité, aires d'alimentation de captage) adjacents aux sources intensives (e.g. bâtiments d'élevage, terres agricoles intensivement cultivées) seront plus exposés au risque de dépôt que les écosystèmes plus éloignés. Les modifications de répartition spatiale des différents types d'occupations des sols (e.g. aménagements paysagers) peuvent inclure des « zones tampons » à haute affinité pour le NH_3 ou créant de la turbulence (e.g. haies), favorisant ainsi le dépôt à proximité immédiate des sources et/ou la dispersion de NH_3 , et permettant ainsi de protéger les écosystèmes sensibles qui se trouvent en aval de ces zones tampons.

Les interactions entre les sources et les récepteurs, ainsi que leurs variations spatiales, peuvent fortement influencer le calcul des dépassements des charges critiques. Le voisinage immédiat des sources (i.e. quelques dizaines de mètres) peut présenter des dépassements de charges critiques, même pour des types d'occupations des sols qui résistent au dépôt et qui se caractérisent par une faible rugosité de surface. En revanche, lorsque des surfaces boisées (e.g. haies, bosquets, forêts) sont présentes à proximité des sources, cette distance peut atteindre quelques centaines de mètres, en raison de la forte rugosité de surface de ces zones arborées. Dans le chapitre V (cf. section V.3.4), les cartes de dépassements des charges critiques présentent une grande incertitude en raison de la variation de la taille des mailles utilisées par les modèles, du formalisme des modèles, des occupations des sols et des valeurs de charges critiques choisies. Pour le modèle OPS-ST fonctionnant à l'échelle locale, la différence entre les surfaces totales dépassant les charges critiques est faible quelle que soit la taille de maille, mais la localisation des zones qui dépassent les charges critiques peut être très variable, notamment quand on utilise le modèle à des résolutions spatiales de 800 et 1600 m, c'est-à-dire en dehors de son domaine d'application. Le

modèle OPS-ST permet une localisation beaucoup plus précise des pics d'émissions qui sont généralement mieux résolus avec des petites tailles de mailles. Pour le modèle CHIMERE fonctionnant à l'échelle régionale, la diminution de la résolution spatiale conduit à une surestimation des zones qui dépassent les charges critiques mais avec des valeurs de dépassement plus faibles. Pour des grandes tailles de mailles, le modèle fonctionnant à l'échelle régionale effectue un « lissage » des valeurs des dépassements de charges critiques sur toute la surface de la maille, ce qui fait disparaître les pics d'émissions et entraîne une mauvaise représentation des processus locaux. Un tel lissage produit alors une sous-estimation des surfaces qui dépassent les charges critiques dans les zones à proximité de sources agricoles intensives et même une absence totale de dépassement pour des tailles de mailles très grandes. La variation de la résolution spatiale en entrée des modèles s'accompagne d'une forte variabilité spatiale des dépassements de charges critiques ; outre la taille des mailles, cette différence est aussi due aux différences de formalisme entre les modèles et aux valeurs de charges critiques choisies. Pour des charges critiques faibles (5 kg NH₃/ha/an), les deux modèles permettent de reproduire des cartes de dépassements de charges critiques similaires, quelle que soit la résolution spatiale. En revanche, pour des charges critiques élevées (14 kg NH₃/ha/an), les deux modèles produisent des résultats divergents : pour des grandes tailles de mailles, les résultats de simulations ne permettent pas de mettre en évidence des dépassements de charges critiques. Cette variabilité spatiale des dépassements des charges critiques, produites avec l'un ou l'autre des deux modèles et en utilisant différentes résolutions spatiales et différentes valeurs des paramètres d'entrée, nous a permis d'identifier les limites d'utilisation des modèles dans les deux cas d'étude (i.e. idéalisé et semi-réel). Dore et al. (2012) ont montré que les cartes de dépassements des charges critiques dépendent de la résolution spatiale du modèle qu'ils ont utilisé (FRAME), avec une légère augmentation de la surface totale qui dépasse la charge critique à des résolutions spatiales plus faibles (1 à 2 %). Ces résultats sont en accord avec ceux présentés dans le chapitre V (cf. section V.3.4) et obtenus avec OPS-ST dans son domaine d'application (tailles de mailles autour de 100 m), alors qu'avec CHIMERE, cette surface diminue lorsque la résolution est faible. Cela peut être expliqué par le formalisme à panache gaussien du modèle utilisé par Dore et al. (2012), similaire à celui de OPS-ST. L'effet de la différence de formalisme entre OPS-ST et CHIMERE peut être considéré comme faible dans le cas d'une comparaison des dépôts secs moyens de NH₃ sur l'ensemble du domaine d'étude. En revanche, en accord avec nos discussions du chapitre V, cette différence est de plus en plus marquée quand on compare les résultats de simulations à proximité des sources. Ceci impacte encore davantage la variabilité spatiale des dépassements de charges critiques qui dépendent essentiellement des dépôts secs de NH₃ à proximité des sources. A une résolution spatiale donnée,

les deux modèles produisent des cartes de dépassements des charges critiques différentes, avec des valeurs de dépassements très différentes, sauf dans quelques cas rares où ces valeurs sont faibles. Les très faibles valeurs de dépassements des charges simulées avec le modèle CHIMERE sont dues au « lissage » des pics d'émissions, entraînant une forte variabilité entre les dépassements de charges critiques simulés avec des valeurs de seuil différentes. Cette variabilité est encore plus grande quand nous prenons aussi en compte les différentes résolutions spatiales. Les modifications des valeurs seuils, en particulier leur augmentation, ne sont pas détectées par CHIMERE car les dépôts secs simulés par CHIMERE se situent très rapidement au-dessus des seuils en raison de la dilution des pics d'émission dans les mailles de grande taille. Contrairement à CHIMERE, le modèle OPS-ST permet de détecter les zones de dépassements de seuil critique mais aussi les pics d'émissions, et donc de produire des résultats convergents pour différentes valeurs de seuil et de résolution spatiale dans son domaine d'application.

Les modèles de type CHIMERE doivent donc prendre en compte les relations entre la résolution spatiale et le seuil de dépassement. Il est clair que cette relation ne peut pas être linéaire car, pour des mailles de grande taille, la détection des zones de dépassements des charges critiques s'accompagne d'une surestimation de la surface de dépassement de ces charges. Ces résultats montrent la nécessité d'adapter la valeur seuil, par exemple une diminution de la valeur seuil pour des mailles de grande taille, afin d'assurer une protection correcte des écosystèmes sensibles ou bien d'identifier la localisation des sources et positionner une zone tampon avec un diamètre dépendant des taux d'émissions de NH_3 .

VI.5. Vers une paramétrisation sous-maille des dépôts secs

Les résultats du chapitre IV (cf. section IV.3.1) permettent de calculer une variation spatiale du dépôt en fonction de la distance à la source. La vitesse de vent constante ainsi que des sources avec des taux d'émissions équivalents et une résistance de surface homogène sur l'ensemble du domaine peuvent donner une idée de cette variation spatiale qui dépend essentiellement du formalisme des modèles. La figure VI.5 représente les dépôts secs de NH_3 en fonction de la distance à la source et de la résolution dans la direction du vent. Suivant le type de modèle utilisé, cette variation peut être décrite soit par une équation linéaire (CHIMERE), soit par une équation de type puissance (OPS-ST) (Tab. IV.1).

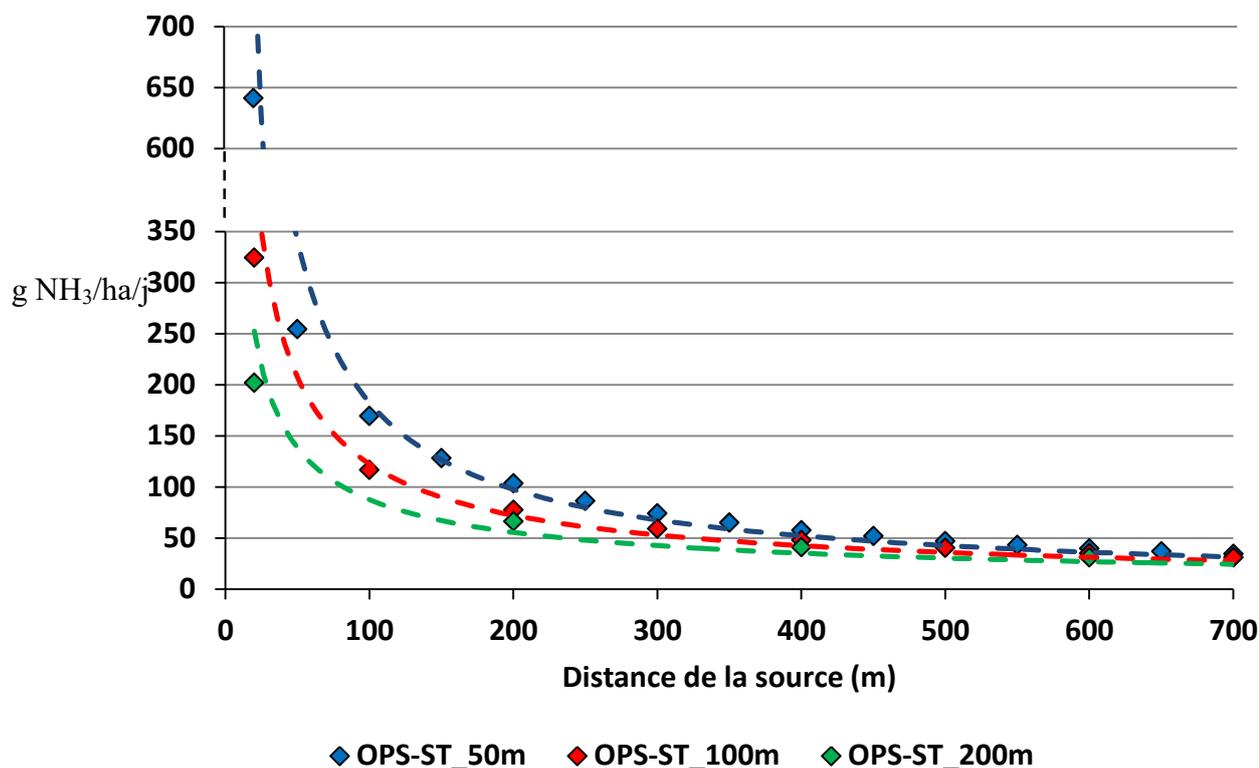


Figure VI.5: Dépôts secs moyens de NH₃ en fonction de la distance à la source et simulés avec le modèle OPS-ST à différentes résolutions spatiales. Les courbes en pointillés représentent les courbes de régression dont les valeurs sont présentées dans le Tableau VI.1.

Tableau VI.1: Valeurs des paramètres des régressions linéaires entre les dépôts secs moyens de NH₃ et la distance à la source. Les valeurs présentées ont été estimées à partir des dépôts secs simulés avec OPS-ST et différentes tailles de maille.

Modèle	Résolution (m)	Equation de régression	R ²
OPS-ST	50	$26.10^2 X^{-0,70}$	0,90
	100	$7.10^2 X^{-0,51}$	0,87
	200	$3.10^2 X^{-0,40}$	0,87

Dans OPS-ST la variation spatiale de dépôt peut être écrite sous la forme :

$$Y = a. X^{-b}$$

avec Y le dépôt sec de NH₃, X la distance à la source dans la direction dominante du vent, a est un coefficient qui dépend du taux d'émission, b est un coefficient qui dépend de la résolution.

Ce résultat permet de redistribuer les dépôts secs de NH₃ dans des mailles de grande taille utilisées dans des modèles tels que CHIMERE. Il dépend essentiellement de deux facteurs, la résolution spatiale horizontale et les facteurs météorologiques. Les courbes de régression de type puissance ne reproduisent pas d'une manière très fiable les dépôts à proximité des sources et ont tendance à

sous-estimer ces dépôts. Les résultats du chapitre V confirment cette conclusion et permettent d'identifier la résolution spatiale et les facteurs météorologiques comme les deux facteurs les plus influents sur les valeurs simulées de dépôts secs de NH_3 (cf. section V.3.1).

Chapitre VII. Conclusion et perspectives

VII. Conclusion et perspectives

L'objectif principal de ce travail de thèse s'inscrit dans la problématique générale des changements d'échelle entre des modèles de dispersion, transport et dépôt de composés azotés fonctionnant à des échelles spatiales différentes. Les uns, tels que OPS-ST, utilisent une approche gaussienne et ont été conçus pour fonctionner à des échelles locales sur des mailles de petites tailles. D'autres modèles, tels que CHIMERE, utilisent une approche eulérienne et ont été développés pour fonctionner sur des mailles de plus grandes tailles afin de produire des simulations à des échelles régionales à continentales ; ils permettent de réaliser des simulations sur ces vastes domaines tout en conservant des temps de calcul raisonnables. Dans ce cadre, l'objectif du travail de thèse a été de comparer et d'évaluer la pertinence de ces deux approches de modélisation pour simuler la dispersion et le transport d'ammoniac par voie atmosphérique, ainsi que les dépôts secs de NH_3 et les dépassements de charges critiques localement.

Ce travail a montré que les différences de prédiction des dépôts secs de NH_3 entre les deux types de modèles sont généralement plus petites pour le cas d'étude idéalisé construit à partir d'une simplification de la description spatiale des facteurs d'entrée (e.g. répartition spatiale des sources d'émission de NH_3 , occupations des sols, conditions météorologiques) ; ces différences de prédiction des dépôts secs de NH_3 augmentent avec la complexité du cas d'étude utilisé. Nos résultats indiquent que le choix du type de modèle et les valeurs prises par les facteurs d'entrée peuvent avoir une incidence majeure sur les estimations des dépassements de charges critiques en NH_3 . Les conclusions qu'on en tire en termes d'impact environnemental des émissions de NH_3 d'origine agricole sur les agroécosystèmes, notamment sur les écosystèmes naturels (e.g. forêts, zones protégées, zones sensibles), sont donc à relativiser au regard du modèle utilisé, ainsi que des conditions météorologiques et agronomiques de la région d'étude. Elles sont à considérer avec précaution pour l'aide aux politiques publiques, notamment dans des régions caractérisées par de fortes sources d'émission d'ammoniac (e.g. régions d'élevage intensif). Cette tendance est connue, mais ce travail de thèse a permis de quantifier les différences de dépôts secs de NH_3 et les dépassements de charges critiques, selon le formalisme des modèles et les conditions initiales de simulation.

Le choix des modèles utilisés dans cette étude a été basé essentiellement sur leurs différences de formalismes et sur les résolutions spatiales auxquelles ils peuvent fonctionner. Selon les modèles utilisés et les cas d'étude mis en oeuvre, les résolutions spatiales ont varié de quelques dizaines à quelques centaines de mètres pour OPS-ST (25, 50, 100, 200, 400, 800 et 1600 m) jusqu'à quelques kilomètres pour CHIMERE (800, 1600 et 3200 m). Deux tailles des domaines de

simulation ont été utilisées : une surface totale de 256 km² pour le cas d'étude idéalisé et de 64 km² pour le cas d'étude semi-réel. Ces deux tailles ont été choisies en fonction des limites des modèles, ainsi que des données disponibles pour le bassin versant du Blavet, notamment les données d'émission de NH₃ par les sources agricoles.

Les simulations avec le modèle OPS-ST pour de grandes tailles de mailles ont montré de grandes différences dans les dépôts secs de NH₃ en comparaison avec les simulations effectuées sur des mailles de petites tailles. Ces différences ne sont pas dues à la formulation inhérente de OPS-ST, analytique et donc sans résolution apparente, mais résultent de la densité des points récepteurs (i.e. leur distance relative) pour échantillonner les sorties du modèle. C'est pour cela que nous avons choisi de dégrader la résolution apparente du modèle OPS-ST, en effectuant des moyennes sur plusieurs récepteurs d'une grille initiale très dense. Il est donc clair que les tailles de mailles les plus fines, ici 25 m et 50 m, utilisées avec le modèle OPS-ST, sont les mieux adaptées pour quantifier précisément les dépôts secs de NH₃ et produire les cartes de charges critiques associées dans les zones proches des hot-spots d'émissions. Le modèle CHIMERE a été utilisé avec les tailles de mailles minimales pour lesquelles il a été conçu. Sur les domaines étudiés, il fournit des valeurs de dépôts secs moyens de NH₃ similaires à celles fournies par OPS-ST (à condition que la hauteur d'émission soit similaire aussi), et ce malgré les différences d'hypothèses sur lesquelles sont construits les deux modèles (eulérien et panache gaussien, résolutions verticale et horizontale, processus de transport et de dépôt sec, dilution des sources dans les mailles...). Cette similarité des prédictions moyennes par les deux modèles a une implication importante : les modèles eulériens tels que CHIMERE fonctionnant à des résolutions kilométriques peuvent être utilisés pour simuler l'impact de l'ammoniac sur la composition chimique et la formation d'aérosols secondaires à plus large échelle, malgré une résolution horizontale a priori non adaptée pour traiter le dépôt à proximité des sources où une grande variabilité spatiale est observée. L'augmentation de la taille des mailles, en particulier dans les zones caractérisées par plusieurs hot-spots de forte intensité et simulées avec CHIMERE, s'accompagne d'une dilution des émissions qui entraîne une sous-estimation des concentrations et des dépôts secs de NH₃ à proximité de ces hot-spots.

Les différences de dépôts secs de NH₃ simulés avec les deux modèles, et leur variabilité due aussi à des tailles de mailles différentes, ont une incidence directe sur les cartes des dépassements des charges critiques. Quels que soient les niveaux de charges critiques utilisés (entre 5 et 14 kg/ha/an), le modèle OPS-ST parvient à produire des cartes de dépassements avec un grand niveau de détail pour les tailles de mailles les plus petites (25 m et 50 m). Dans le cas des simulations effectuées avec CHIMERE, hormis le choix de la taille de maille, le choix de la valeur de charge critique est aussi un facteur majeur qui peut influencer sur les cartes de dépassements de charges

critiques. Pour des charges critiques élevées, CHIMERE sous-estime généralement les surfaces qui dépassent le seuil, résultant de la dilution des émissions dans des mailles de grande taille.

Par ailleurs, nous avons montré que les occupations des sols n'ont pas une grande influence sur les dépôts secs de NH_3 simulés avec les deux modèles. Ce résultat peut être expliqué par l'absence de sources d'émissions dans des zones à faible résistance de surface (e.g. forêt) et aussi par une moyenne pondérée correspondant à la taille de la maille dans chacun des deux modèles.

En conclusion, pour un domaine d'étude donné, les modèles CHIMERE et OPS-ST calculent des fractions de dépôts secs de NH_3 similaires pour des jeux de paramètres d'entrée donnés. Il est évident que l'utilisation de CHIMERE est mieux adaptée en termes par exemple de temps de calcul ou de données d'entrée pour calculer des dépôts secs moyens de NH_3 à l'échelle d'un domaine d'étude de quelques dizaines de km^2 . L'utilisation du modèle OPS-ST est nécessaire pour calculer les dépôts secs de NH_3 à proximité immédiate des sources et produire des cartes de dépassements des charges critiques précises.

Plusieurs pistes d'améliorations des prédictions des modèles peuvent être envisagées à la suite de ce travail.

Tout d'abord, les cartes d'occupations des sols sont généralement fournies à des résolutions plus faibles que les résolutions spatiales requises par les modèles. Pour une meilleure cohérence entre les occupations des sols et les données requises par les modèles, il pourrait être envisageable de produire des cartes d'occupations des sols à des résolutions spatiales correspondant à celles des modèles. Ceci demanderait de définir à l'échelle de la maille des modes d'occupations des sols décrivant la variabilité des modes d'occupations des sols initiaux. La segmentation des domaines d'étude en typologies paysagères est un outil pertinent pour produire des cartes à différentes résolutions spatiales qu'il est possible de déterminer en fonction de l'objectif de l'étude.

Ensuite, la valeur de charge critique en NH_3 utilisée peut aussi être fonction du modèle utilisé. Pour les modèles eulériens tels que CHIMERE, une solution simple serait de cartographier les dépassements de charges critiques et d'utiliser pour l'ensemble du domaine d'étude une valeur « relativement faible » permettant la protection maximale de tous les écosystèmes.

Enfin, une autre piste d'amélioration concerne le changement d'échelle et le couplage ou l'emboîtement d'un modèle gaussien, fonctionnant à l'échelle locale, dans un modèle eulérien, fonctionnant à l'échelle régionale. Le couplage le plus simple qui pourrait être envisageable entre OPS-ST et CHIMERE est un couplage de type « off-line » : CHIMERE serait alors utilisé pour estimer les concentrations de fond en NH_3 et la chimie, qu'il transférerait à OPS-ST qui serait alors utilisé pour spatialiser a posteriori les dépôts secs de NH_3 au sein d'une maille CHIMERE, en particulier à proximité des sources (Isakov et al., 2009; Stein et al., 2007 ;

Venkatram et al., 2009). Un couplage techniquement plus difficile consisterait à faire tourner un ou plusieurs modèles de panache gaussien pour chaque maille du modèle eulérien présentant des sources ponctuelles d'intensité élevée (Kim et al., 2014). Une autre possibilité, qui a été explorée dans cette thèse, serait d'utiliser la relation entre les dépôts secs de NH_3 et la distance de la source émettrice. Cette relation serait alors obtenue à partir des simulations effectuées préalablement avec OPS-ST à des résolutions spatiales élevées, afin de redistribuer les dépôts secs au sein d'une maille de CHIMERE (i.e. paramétrisation sous-maille).

Références

- Alcamo, J., Shaw, R.W., Hordijk, L., 1991. The RAINS model of acidification. Science and strategies in Europe.
- Ammann, C., Bertok I., Cofala J., Gyarmas F., Heyes C., Klimont Z., Schöpp W., Winiwarter W., 2005. Baseline Scenarios for the Clean Air for Europe (CAFE) Programme. Final Report, IIASA, Laxenburg, Austria.
- Anav, A., Menut, L., Khvorostiyanov, D., Viovy, N., 2011. Impact of tropospheric ozone on the Euro-Mediterranean vegetation. *Glob. Change Biol.* 17, 2342–2359.
- Andersen, H.V., Hovmand, M.F. Hummelshøj, P., Jensen N.O., 1999. Measurements of ammonia concentrations, fluxes and dry deposition velocities to a spruce forest 1991–1995. *Atmos. Environ.*, 33, 1367–1383.
- Aneja, V.P., Nelson, D.R., Roelle, P.A., Walker, J.T., Battye W., 2003. Agricultural ammonia emissions and ammonium concentrations associated with aerosols and precipitation in the southeast United States. *J. Geoph. Res. Atmos.*, 108(D4), 4152, doi:10.1029/2002JD002271.
- Angus, A.J., Hodge, I.D., McNally, S., Sutton, M.A., 2003. The setting of standards for agricultural nitrogen emissions: a case study of the Delphi technique. *J. Environ. Management*, 69(4), 323-337.
- Anon, 1756. Prairies artificielles, ou Lettre à M. de *** sur les moyens de fertiliser les terrains secs et stériles dans la Champagne et dans les autres provinces du Royaume.
- Asman, W.A.H., Pinksterboer, E.F., Maas, H.F.M., Erisman, J. W., Waijers, Yperlaan, A., Slanina, J., Horst, T.W., 1989. Gradients of the ammonia concentration in a nature reserve – model results and measurements. *Atmos. Environ.* 23, 2259–2265.
- Asman W.A.H., van Jaarsveld J.A., 1992. A variable-resolution transport model applied for NH_x in Europe. *Atmos. Environ.*, 26A, 445–464.
- Asman, W.A., 1998. Factors influencing local dry deposition of gases with special reference to ammonia. *Atmos. Environ.*, 32(3), 415-421.
- Asman, W.A.H., 2001. Modelling the atmospheric transport and deposition of ammonia and ammonium: an overview with special reference to Denmark. *Atmos. Environ.*, 35, 1969–1983.
- Asman, W.A.H., Hutchings, N.J., Sommer, S.G., Andersen, J., Münier, B., Génarmont, S., Cellier P., 2004. Emissions of ammonia. In: Friedrich R., Reis S. (eds.) *Emissions of air pollutants*. Springer, Berlin, Germany, 111–143.
- Bahmann, W., Schmonsees, N., 2004. Consideration of Wind Tunnel Studies in Dispersion Calculations With the New Model Austal2000 e Case Study: Discharge of Flue Gas via Cooling Towers. Proceedings of the 9th International Conference on Harmonisation with Atmospheric Dispersion Modelling for Regulatory Purposes, Garmisch-Partenkirchen, Germany, June 1e4 2004.

- Barak, P., Jobe, B.O., Krueger, A.R., Peterson, L.A., Laird, D.A., 1997. Effects of long-term soil acidification due to nitrogen fertilizer inputs in Wisconsin. *Plant and Soil*, 197(1), 61-69.
- Battye, W., Aneja, V.P., Roelle, P.A., 2003. Evaluation and improvement of ammonia emissions inventories. *Atmos. Environ.*, 37(27), 3873-3883.
- Beekmann, M., Vautard, R., 2010. A modelling study of photochemical regimes over Europe: robustness and variability. *Atmos. Chem. Phys.* 10, 10067-10084.
- Benestad, R.E., Hanssen-Bauer, I., Chen, D., 2008. Empirical-statistical downscaling. Singapore: World Scientific Publishing Company Incorporated.
- Bessagnet, B., Menut, L., Curci, G., Hodzic, A., Guillaume, B., Liousse, C., Moukhtar, S., Pun, B., Seigneur, C., Schulz, M., 2009. Regional modeling of carbonaceous aerosols over Europe – Focus on Secondary Organic Aerosols. *J. Atmos. Chem.*, 61, 175–202.
- Bessagnet, B., Pirovano, G., Mircea, M., Cuvelier, C., Aulinger, A., Calori, G., Ciarelli, G., Manders, A., Stern, R., Tsyro, S., Garcia Vivanco, M., Thunis, P., Pay, M.-T., Colette, A., Couvidat, F., Meleux, F., Rouil, L., Ung, A., Aksoyoglu, S., Baldasano, J.-M., Bieser, J., Briganti, G., Cappelletti, A., D'Isodoro, M., Finardi, S., Kranenburg, R., Silibello, C., Carnevale, C., Aas, W., Dupont, J.-C., Fagerli, H., Gonzalez, L., Menut, L., Prevo, A.S.H., Roberts, P., White, L., 2015. Presentation of the EURODELTA III inter-comparison exercise - Evaluation of the chemistry transport models performance on criteria pollutants and joint analysis with meteorology. *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 12667-12701, doi:10.5194/acp-16-12667-2016, 2016.
- Bicheron, P., Amberg, V., Bourg, L., Petit, D., Huc, M., Miras, B., Brockmann, C., Hagolle, O., Delwart, S., Ranera, F., Leroy, M., Arino, O., 2011. Geolocation Assessment of MERIS GlobCover Orthorectified Products, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, 49, 2972–2982, doi:10.1109/TGRS.2011.2122337
- Bjerg, B., Kai, P., Morsing, S., Takai, H., 2004. CFD analysis to predict close range spreading of ventilation air from livestock buildings. *Agricultural Engineering International*. Manuscript BC 03 014. Vol VI, August 2004.
- Bobbink, R., Bik, L., Willems, J.H., 1988. Effects of nitrogen fertilization on vegetation structure and dominance of *Brachypodium pinnatum* (L.) Beauv. in chalk grassland. *Acta Botanica Neerlandica*. 37, 231–242.
- Bobbink, R., Hettelingh, J.P., 2010. Review and revision of empirical critical loads and dose-response relationships Proceedings of an expert workshop, Noordwijkerhout, 23-25 June 2010.
- Bonis, K., Meszaros, E., Putsay, M., 1980. On the atmospheric budget of nitrogen compounds over Europe. *Időjárás* 84,57-68.
- Böttger, A., Ehhalt, D.H., Gravenhorst, G., 1978. Atmosphärische Kreisläufe von Stickoxiden und Ammoniak. *Ber. Kernforschungsanlage Jülich*, No. 158.
- Bouwman, A.F., Lee, D.S., Asman, W.A.H., Dentener, F.J., van der Hoek, K.W., 1997. A global high-resolution emission inventory for ammonia. *Glob. Biogeochem. Cycle*, 11, 561–587.

- Braschkat, J., Mannheim, T., Marschner, H., 1997. Estimation of ammonia losses after application of liquid cattle manure on grassland. *Z. Pflanz. Bodenk.* 160, 117–123.
- Brunke, R., Alvo, P., Schuepp, P., Gordon, R., 1988. Effect of meteorological parameters on ammonia loss from manure in the field. *J. Environ. Qual.* 17, 431–436.
- Brydges, T. G., 1991. Critical loads, reversibility and irreversibility of damage to ecosystems. In *Electricity and the environment*.
- Bull, K. R., 1995. Critical loads—possibilities and constraints. *Water, Air, and Soil Pollut.*, 85(1), 201-212.
- Businger, J.A., 1973. A note on free convection. *Bound. Layer Meteorol.* 58, 229-259.
- Bussink, D.W., Oenema, O., 1998. Ammonia volatilization from dairy farming systems in temperate areas: a review. *Nutrient Cycling in Agroecosystems*, 51, 1352–2310.
- Cape, J.N., Van der Eerden, L.J., Sheppard, L.J., Leith, I.D., Sutton, M.A., 2009. Evidence for changing the critical level for ammonia. *Environ. Pollut.* 157(3), 1033-1037.
- Carruthers, D.J., Holroyd, R.J., Hunt, J.C.R., Weng, W.S., Robins, A.G., Apsley, D.D., Thompson, D.J., Smith, F.B., 1994. UK-ADMS: a new approach to modelling dispersion in the earth's atmospheric boundary layer. *J. Wind Eng. Ind. Aerodyn.* 52, 139e153.
- Carson D.J., Richards P.J.R., 1978. Modelling surface turbulent fluxes in stable conditions. *Boundary-Layer Meteorol.* 14, 67-81.
- Cass, G.R., Gharib, S., Peterson, M., Tilden, J.W., 1982. The origin of ammonia emissions to the atmosphere in an urban area. Open File Report 82-6. Environmental Quality Laboratory. California, Institute of Technology.
- CCE: 1991, Mapping critical loads for Europe. CCE Technical Report No. 1. (Eds. J.-P. Hettelingh, R. J. Downing & P. A. M. de Smet). RIVM report 259101001. RIVM: Bilthoven.
- CCE: 1993, Calculation and mapping of critical loads in Europe. Coordination Centre for Effects Status Report 1993 (Eds. R.J. Downing, J.-P. Hettelingh & P.A.M. de Smet). RIVM report 259101003. RIVM: Bilthoven.
- Cellier, P., Theobald, M.R., Asman, W., Bealey, W., Bittman, S., Dragosits, U., Fudala, J., Jones, M., Lofstrom, P., Loubet, B., Misselbrook, T., Rihm, B., Smith, K., Strizik, M., van der Hoek, K., van Jaarsveld, H., Walker, J., Zelinger, Z., 2009. Assessment Methods for Ammonia Hot-Spots. *Atmos. Ammonia*, p 391-407.
- Chaney, A.M., Cryer, D.J., Nicholl, E.J., Seakins, P.W., 2011. NO and NO₂ inter-conversion downwind of two different line sources in suburban environments. *Atmos. Environ.*, 45, 5863–5871.
- Chai, T.F., Carmichael, G.R., Tang, Y.H., 2007. Four-dimensional data assimilation experiments with International Consortium for atmospheric research on transport and transformation ozone measurements. *J. Geoph. Res.*, 112, D12S15.

- Cheinet, S., Teixeira, J., 2003. A simple formulation for the eddy-diffusivity parameterization of cloud-topped boundary layers. *Geoph. Res. letters*, 30(18).
- Christensen, J. H., 1997. The Danish Eulerian hemispheric model – A three-dimensional air pollution model used for the Arctic. *Atmos. Environ.*, 31, 4169–4191.
- Cimorelli, A.J., Perry, S.G., Venkatram, A., Weil, J.C., Paine, R.J., Wilson, R.B., Lee, R.F., Peters, W.D., Brode, R.W., Pauimer, J.O., 2002. AERMOD: Description of Model Formulation Version 02222. United States Environmental Protection Agency, Research Triangle Park, NC 27711, USA, 85 pp.
- CITEPA, 2016. Inventaire des émissions de polluants atmosphériques et de gaz à effet de serre en France. Format SECTEN, 310 p. [En ligne]: www.citepa.org
- Coll, I., Rousseau, C., Barletta, B., Meinardi, S., Blake, D.R., 2010. Evaluation of an urban NMHC emission inventory by measurements and impact on CTM results, *Atm. Env.*, 44 (31), pp 3843-3855.
- Constantinescu, E.M., Chai, T., Sandu, A., Carmichael, G.R., 2007. Autoregressive models of background errors for chemical data assimilation. *J. Geoph. Res.*, 112, D12309.
- Constantinescu, E.M., Sandu, A., Carmichael, G.R., 2008. Modeling atmospheric chemistry and transport with dynamic adaptive resolution. *Comput. Geosci.* 12, 133-151
- Dai, X.R., Blanes-Vidal, V., 2013. Emissions of ammonia, carbon dioxide, and hydrogen sulfide from swine wastewater during and after acidification treatment: Effect of pH, mixing and aeration. *Journal of environmental management*, 115, 147-154.
- Dämmgen, U., Erisman, J.W., 2005. Emission, transmission, deposition and environmental effects of ammonia from agricultural sources. In: Kuczynski T., Dämmgen U., Webb J., Myczko A. (eds.) *Emissions from European agriculture*. Wageningen Academic Publishers, Wageningen, The Netherlands, pp. 97–112.
- De Jong, J.J.M., Klaassen, W., 1997. Simulated dry deposition of nitric acid near forest edges. *Atmos. Environ.*, 31, 3681–3691.
- Dentener, F., Vet, R., Dennis, R. L., Du, E., Kulshrestha, U. C., Galy-Lacaux, C., 2014. Progress in monitoring and modelling estimates of nitrogen deposition at local, regional and global scales. In *Nitrogen Deposition, Critical Loads and Biodiversity* (pp. 7-22). Springer Netherlands.
- Dise, N.B., Ashmore, M., Belyazid, S., Bobbink, R., De Vries, W., Erisman, J.W., Spranger, T., Stevens, C., van den Berg, L., 2011. Nitrogen as a threat to European terrestrial biodiversity. In: *The European Nitrogen Assessment*, ed. M. A. Sutton, C. M. Howard, J. W. Erisman et al. Cambridge University Press.
- Dlugi, R., Kins, L., Kohler, D., Kohler, E., Reusswig, K., Reuder, J., Roider, G., Ruoss, K., Schween, J., Zelger, M., 1997. Studies on deposition, emission and chemical transformation above and within tall vegetation. In Slanina P.D.S (ed.) *Biosphere-atmosphere exchange of pollutants*

- and trace substances: experimental and theoretical studies of biogenic emissions and of pollutant deposition. Springer, Berlin, pp. 433–437.
- Döhler, H., Dämmgen, U., Berg, W., Bergschmidt, A., Brunsch, R., Eurich-Menden, B., Lüttich M., Osterburg, B., (2002). Adaptation of the German emission calculation methodology to international guidelines, determination and forecasting of ammonia emissions from German agriculture, and scenarios for reducing them by 2010 (in German, summary in English), Texte 05/02 Umweltbundesamt (Berlin).
- Dore, A.J., Kryza, M., Hall, J.R., Hallsworth, S., Keller, V.J.D., Vieno, M., Sutton, M.A., 2012. The influence of model grid resolution on estimation of national scale nitrogen deposition and exceedance of critical loads. *Biogeosciences*, 9(5), 1597-1609.
- Draaijers, G.P.J., Van Ek, R., Bleuten, W., 1994. Atmospheric deposition in complex forest landscapes. *Bound. Layer Meteorol.*, 69, 343–366.
- Dragosits, U., Sutton, M.A., Place, C.J., Bayley, A.A., 1998. Modelling the spatial distribution of agricultural ammonia emissions in the UK. *Environmental Pollution Nitrogen, the Confer-N-s First International Nitrogen Conference 1998*, 102, 195–203.
- Dragosits, U., Theobald, M.R., Place, C.J., Lord, E., Webb, J., Hill J., ApSimon, H.M., Sutton, M.A., 2002. Ammonia emission, deposition and impact assessment at the field scale: a case study of sub-grid spatial variability. *Enviro. Pollut.*, 117, 147–158.
- Duan, L., Xing, J., Zhao, Y., Hao, J., 2014. Empirical critical loads of nitrogen in China. In *Nitrogen deposition, critical loads and biodiversity* (pp. 329-336). Springer Netherlands.
- Dudhia, J., Gill, D., Manning, K., Wang, W., Bruyere, C., 2005. PSU/NCAR mesoscale modeling system tutorial class notes and user's guide (MM5 modeling system version 3). NCAR. [Available online at www.mmm.ucar.edu/mm5/documents/tutorial-v3-notes.html.]
- ECETOC, 1994. Ammonia emissions to air in Western Europe. Technical Report 62. European Centre for Ecotoxicology and Toxicology of Chemicals, Brussels
- EEA, 2003. Europe's Environment—The Third Assessment Report, p. 341 (European Environment Agency: Copenhagen, Denmark).
- Eggleston, H.S., 1992. An improved U.K. ammonia emission inventory. Ammonia emissions in Europe: Emission Coefficients and Abatement Costs: Proceedings of a workshop, 4-6 Feb. 1991. IIASA, Laxenburg, Austria
- Elichegaray, C., Bouallala, S., Maitre, A., Ba, M., 2010. État et évolution de la pollution atmosphérique. *Revue Francaise d'Allergologie*, 50(4), 381-393.
- Elperin, T., Fominykh, A., Krasovitev, B., 2016. Effect of raindrop size distribution on scavenging of aerosol particles from Gaussian air pollution plumes and puffs in turbulent atmosphere. *Process Saf. Environ. Prot.* 102, 303-315.
- Emberson, L.D., Ashmore, M.R., Cambridge, H.M., Simpson, D., Tuovinen, J.P., 2000. Modelling stomatal ozone flux across Europe. *Environ. Pollut.* 403-413

- Eriksson, E., 1952. Composition of atmospheric precipitation. A. Nitrogen compounds. *Tellus*, 4, 215–232; 296–303.
- Erismann, J. W., Vermetten, A. W., Asman, W. A., Waijers-Ijpelaar, A., Slanina, J., 1988. Vertical distribution of gases and aerosols: the behaviour of ammonia and related components in the lower atmosphere. *Atmospheric Environment* (1967), 22(6), 1153–1160.
- Erismann J.W., 1992. Atmospheric deposition of acidifying compounds in the Netherlands. [PhD thesis]. Utrecht University, the Netherlands.
- Erismann, J.W., Wyers, P., 1993. Continuous measurements of surface exchange of SO₂ and NH₃; Implications for their possible interactions process. *Atmos. Environ.*, 27, 1937–1949.
- Erismann, J.W., van Pul, A., Wyers, P., 1994. Parameterization of surface resistance for the quantification of atmospheric deposition of acidifying pollutants and ozone. *Atmos. Environ.*, 28, 2595–2607.
- Erismann, J.W., Bleeker, A., Van Jaarsveld, H., 1998. Atmospheric deposition of ammonia to semi-natural vegetation in the Netherlands—methods for mapping and evaluation. *Atmos. Environ.*, 32, 481. doi:10.1016/S1352-2310(97)00276-8
- Erismann, J.W., Bleeker, A., Van Jaarsveld J.A., 1998 (b). Evaluation of ammonia emission abatement on the basis of measurements and model calculations. *Environ. Pollut.*, 102, 269. doi:10.1016/S0269-7491(98)80043-2
- Esler, J. G., 2003. An integrated approach to mixing sensitivities in tropospheric chemistry: A basis for the parameterization of subgrid scale emissions for chemistry transport models. *J. Geophys. Res.: Atmospheres*, 108(D20).
- Ewert, E., 1978. Vegetationsschäden in der Umgebung landwirtschaftlicher Tierproduktionsanlagen. *Luft Kältetechn.*, 6:218–220.
- Fangmeier, A., Hadwiger-Fangmeier, A., Van der Eerden, L., Jager, H.J., 1994. Effects of atmospheric ammonia on vegetation: a review. *Environ. Pollut.*, 86, 43–82.
- Farquhar, G.D., Firth, P.M., Wetselaar, R., Weir, B., 1980. On the gaseous exchange of ammonia between leaves and the environment: determination of the ammonia compensation point. *Plant Physiol.*, 66, 710–714.
- Fisher, L.S., Mays, P.A., Wylie, C.L., 2007. An overview of nitrogen critical loads for policy makers, stakeholders, and industries in the United States. *Water, Air and Soil Pollut.*, 179, 3–18.
- Flechard, C.R., Fowler, D., Sutton, M.A., Cape, J.N., 1999. A dynamic chemical model of bi-directional ammonia exchange between semi-natural vegetation and the atmosphere. *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 125, 2611–2641.
- Flechard, C.R., Massad, R.S., Loubet, B., Personne, E., Simpson, D., Bash, J.O., Sutton, M.A., 2013. Advances in understanding, models and parameterizations of biosphere-atmosphere ammonia exchange. In *Review and Integration of Biosphere-Atmosphere Modelling of Reactive Trace Gases and Volatile Aerosols* (pp. 11–84). Springer Netherlands.

- Flesch, T.K., Wilson J.D., Harper L.A., Crenna B.P., 2005. Estimating gas emissions from a farm with an inverse-dispersion technique. *Atmos. Environ.*, 39, 4863–4874.
- Folberth, G.A., Hauglustaine, D.A., Lathiere, J., Brocheton, F., 2006. Interactive chemistry in the Laboratoire de Météorologie Dynamique general circulation model: model description and impact analysis of biogenic hydrocarbons on tropospheric chemistry. *Atmos. Chem. Phys.*, 6(8), 2319.
- Fournier, N., Weston, K.J., Dore, A.J., Sutton, M.A., 2005. Modelling the wet deposition of reduced nitrogen over the British Isles using a Lagrangian multi-layer atmospheric transport model. *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 131(606), 703-722.
- Fowler, D., Pitcairn, C.E.R., Sutton, M.A., Flechard, C., Loubet, B., Coyle, M., Munro, R.C., 1998. The mass budget of atmospheric ammonia in woodland within 1 km of livestock buildings. *Environ. Pollut.*, 102(1), 343-348.
- Frohn L. M., Christensen J. H., Brandt J., Hertel O., 2001. Development of a high resolution integrated nested model for studying air pollution in Denmark. *Physics and Chemistry of the Earth Part B-Hydrology Oceans and Atmosphere*, 26, 769–774.
- Galmarini, S., Vinuesa, J., Martilli, A., 2008. Modeling the impact of sub-grid scale emission variability on upper-air concentration. *Atmos. Chem. Phys.* 8, 141-158.
- Garber, K., 1935. Über die Physiologie der Einwirkung von Ammoniakgasen auf die Pflanze. *Landwirtsch. Vers. Stat.*, 123, 277-344.
- Garber, K., Schtirmann, B., 1971. Wirkung und Nachweiss von Ammoniak-Immissionen in der Nähe von Gross-Stallungen. *Landwirtsch. Forsch.*, 26(1), Sonderheft 20: 36-40.
- Garcia, L., Bedos, C., Générumont, S., Braud, I., Cellier, P., 2011. Assessing the ability of mechanistic volatilization models to simulate soil surface conditions: a study with the Volt'Air model. *Science of the Total Environment*, 409(19), 3980-3992.
- Garratt J.R., Wyngaard J.C. and Francey R.J., 1982. Winds in the atmospheric boundary layer - Prediction and observation. *J. Atmos. Sci.* 39, 1307-1316.
- Geels, C., Andersen, H.V., Ambelas Skjøth, C., Christensen, J.H., Ellermann, T., Løfstrøm, P., Gyldenkerne, S., Brandt, J., Hansen, K.M., Frohn, L.M., Hertel, O., 2012. Improved modelling of atmospheric ammonia over Denmark using the coupled modelling system DAMOS, *Biogeosciences*, 9, 2625–2647, doi: 10.5194/bg-9-2625-2012.
- Générumont, S., Cellier, P., 1997. A mechanistic model for estimating ammonia volatilization from slurry applied to bare soil. *Agric. For. Meteorol.*, 88, 145–167.
- Gilliland, A.B., Appel, K.W., Pinder, R.W., Dennis, R.L., 2006. Seasonal NH₃ emissions for the continental United States: Inverse model estimation and evaluation. *Atmos. Environ.*, 40(26), 4986-4998.
- Gregor, H.D., Bull, K.R., 1988. Mapping working paper for UNECE critical levels workshop. in UNECE critical levels workshop report, Bad Harzburg, FRG, March 1988.

- Grell, G.A., Dudhia, J., Stauffer, D. R., 1994. A description of the fifth-generation Penn State/NCAR mesoscale model (MM5), NCAR Tech. Note TN-398+STR, 122 pp, 1994.
- Gryning, S.E., Holtslag, A.A.M., Irwin, J.S., Sivertsen, B., 1987. Applied dispersion modelling based on meteorological scaling parameters. *Atmos. Environ.*, 21, 79–89.
- Guenther, A., Karl, T., Harley, P., Wiedinmyer, C., Palmer, P.I., Geron, C., 2006. Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature), *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3181–3210, <http://www.atmos-chem-phys.net/6/3181/2006/>
- Guillas, S., Bao, J., Choi, Y., Wang, Y., 2008. Statistical correction and downscaling of chemical transport model ozone forecasts over Atlanta. *Atmos. Environ.*, 42(6), 1338-1348.
- Gyldenkerne, S., Ambelas Skjøth, C., Hertel, O., Ellermann, T., 2005. A dynamical ammonia emission parameterization for use in air pollution models. *J. Geophys. Res.: Atmos.*, 110(D7).
- Hall, J.R., 1995. Critical loads maps: the UK and Europe. In: *Acid rain and its impacts: the critical loads debate* (Ed. R. W. Battarbee). *Ensis: London*.
- Hallsworth, S., Dore, A.J., Bealey, W.J., Dragosits, U., Vieno, M., Hellsten, S., Tang, S., Sutton, M.A., 2010. The role of indicator choice in quantifying the threat of atmospheric ammonia to the ‘Natura 2000’ network. *Environ. Science and Policy*, 13(8), 671-687.
- Hamaoui-Laguel, L., Meleux, F., Beekmann, M., Bessagnet, B., Genermont, S., Cellier, P., Letinois, L., 2014. Improving ammonia emissions in air quality modelling for France, *Atmos. Environ.*, 92,584-595
- Hanna, S.R., Briggs, G.A., Hosker, R.P., 1982. *Handbook on Atmospheric Diffusion*. Publication DOE/TIC 11223, U.S. Department of Energy, Washington, District of Columbia.
- Hanna, S.R., Chang, J.C., 1992. Boundary layer parameterization for applied dispersion modeling over urban areas. *Bound. Layer Meteorol.* 58, 229-259.
- Hansen, M.C., Reed, B., 2000. A comparison of the IGBP DISCover and University of Maryland 1 km global land cover products, *Int. J. Remote Sens.* 21, 1365–1373.
- Hertel, O., Skjøth, C.A., Løfstrøm, P., Geels, C., Frohn, L.M., Ellermann, T., Madsen, P.V., 2006. Modelling nitrogen deposition on a local scale—a review of the current state of the art. *Environ. Chemistry*, 3(5), 317-337.
- Hettelingh, J.-P., de Vries, W., Schopp, W., Downing, R.J., de Smet, P.A.M., 1991. Methods and data in CCE: 1993, Calculation and mapping of critical loads in Europe. *Coordination Centre for Effects Status Report 1993* (Eds. R. J. Downing, J.-P. Hettelingh & P. A. M. de Smet). RIVM report 259101003. RIVM: Bilthoven.
- Hettelingh, J. P., de Vries, W., Posch, M., Reinds, G. J., Slootweg, J., Hicks, W. K., 2014. Development of the critical loads concept and current and potential applications to different regions of the world. In *Nitrogen deposition, critical loads and biodiversity* (pp. 281-293). Springer Netherlands.

- Hicks, B.B., Baldocchi, D.D., Meyers, T.P., Hosker Jr., R.P., Matt, D.R., 1987. A preliminary multiple resistance routine for deriving dry deposition velocities from measured quantities. *Water, Air, Soil Pollut.*, 36.
- Hicks, W.K., Whitfield, C.P., Bealey, W.J., Sutton, M.A., 2011. Nitrogen deposition and Natura 2000: Science and practice in determining environmental impacts. COST office-European Cooperation in Science and Technology.
- Hicks, W.K., Haeuber, R., Sutton, M.A., Aas, W., Barber, M., Baron, J.S., Leach, A., 2014. Workshop on nitrogen deposition, critical loads and biodiversity: scientific synthesis and summary for policy makers. In *Nitrogen Deposition, Critical Loads and Biodiversity* (pp. 507-526). Springer Netherlands.
- Hill, J., 1998. Applications of computational modelling to ammonia dispersion from agricultural sources. PhD Thesis, University of London.
- Hill, P.W., Raven, J.A., Loubet, B., Fowler, D., Sutton, M.A., 2001. Comparison of gas exchange and bioassay determinations of the ammonia compensation point in *Luzula sylvatica* (Huds.) Gaud. *Plant Physiology*, 125, 476–487.
- Hodzic, A., Bessagnet, B., and Vautard, R., 2006. A model evaluation of coarse-mode nitrate heterogeneous formation on dust particles. *Atmos. Environ.*, 40, 4158–4171.
- Hodzic, A., Madronich, S., Bohn, B., Massie, S., Menut, L., Wiedinmyer, C., 2007. Wildfire particulate matter in Europe during summer 2003: meso-scale modeling of smoke emissions, transport and radiative effects, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 4043–4064, doi:10.5194/acp-7-4043-2007.
- Holtslag A.A.M., 1984. Estimates of diabatic wind speed profiles from near surface weather observations. *Boundary-Layer Meteorol.* 29, 225-250.
- Honoré, C., Vautard, R., Beekmann, M., 2000. Low and high NO_x chemical regimes in an urban environment, *Environmental Modelling and Software*, 15, 559-564
- Honoré, C., Rouïl, L., Vautard, R., Beekmann, M., Bessagnet, B., Dufour, A., Elichegaray, C., Flaud, J.-M., Malherbe, L., Meleux, F., Menut, L., Martin, D., Peuch, A., Peuch, V.H., Poisson, N., 2008. Predictability of European air quality: The assessment of three years of operational forecasts and analyses by the PREV’AIR system, *J. Geophys. Res.*, 113, D04301.
- Hordijk, L., 1995. Integrated assessment models as a basis for air pollution negotiations. *Water, Air, & Soil Pollution*, 85(1), 249-260.
- Hunger, W., 1978. Über Absterbeerscheinungen altern Fichtenbeständen in der Nähe einer Schweinemastanlage. *Beitr. Forstwirtsch.*, 4: 188-189.
- Huijsmans, J.F.M., Hol, J.M.G., Vermeulen, G.D., 2003. Effect of application method, manure characteristics, weather and field conditions on ammonia volatilization from manure applied to arable land. *Atmos. Environ.*, 37(26), 3669-3680.
- Hutchings, N.J., Sommer, S.G., Andersen, J.M., Asman, W.A.H., 2001. A detailed ammonia emission inventory for Denmark. *Atmos. Environ.*, 35, 1959–1968.

- Irvine, M.R., Gardiner, B.A., Hill, M.K., 1997. The evolution of turbulence across a forest edge. *Boundary-Layer Meteorology*, 84, 491–496.
- Isakov, V., Touma, J.S., Burke, J., Lobdell, D.T., Palma, T., Rosenbaum, A., Ozkaynak, H., 2009. Combining Regional- and Local-Scale Air Quality Models with Exposure Models for Use in Environmental Health Studies. *J. Air Waste Manage. Assoc.* 59(4), 461-472.
- Janssen A.J., Asman W.A.H., 1988. Effective removal parameters in long-range air pollution transport models. *Atmos. Environ.* 22, 359-367.
- Jarvis, S.C., Pain, B.F., 1990. Ammonia volatilisation from agricultural land. *Proceedings of the Fertiliser Society* 298, 35. The Fertiliser Society, Peterborough.
- Johnston, A.E., Goulding, K.W.T., Poulton, P.R., 1986. Soil acidification during more than 100 years under permanent grassland and woodland at Rothamsted. *Soil use and management*, 2(1), 3-10.
- Jones, S.K., Rees, R.M., Skiba, U.M., Ball, B.C., 2007. Influence of organic and mineral N fertiliser on N₂O fluxes from a temperate grassland. *Agriculture, ecosystems & environment*, 121(1), 74-83.
- Jonges, M., Van Leuken, J., Wouters, I., Koch, G., Meijer, A., Koopmans, M., 2015. Wind-Mediated spread of low-Pathogenic avian influenza virus into the environment during outbreaks at commercial poultry farms. *PloS one*, 10(5), e0125401.
- Kim, Y., Seigneur, C., Duclaux, O., 2014. Development of a plume-in-grid model for industrial point and volume sources: application to power plant and refinery sources in the Paris region, *Geosci. Model Dev.*, 7, 569-585, doi:10.5194/gmd-7-569-2014.
- Klaassen, W., 1991. Average fluxes from heterogeneous vegetated regions. *Boundary-Layer Meteorology*, 58, 329–354.
- König, J., 1896. Der Schutz gegen Flurschädigung durch gewerbliche Einwirkungen. *Arb. Dt. Landwirtsch.-Ges. H.*, 14, 22.
- Konovalov, I.B., Beekmann, M., Kuznetsova, I.N., Yurova, A., Zvyagintsev, A.M., 2011. Atmospheric impacts of the 2010 Russian wildfires: integrating modelling and measurements of an extreme air pollution episode in the Moscow region, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 10031–10056, doi:10.5194/acp-11-10031-2011.
- Kronvang, B., Aertebjerg, G., Grant, R., Kristensen, P., Hovmand, M.F., Kirkegaard, J., 1993. Nation-wide Monitoring of Nutrients and their Ecological Effects. *Ambio*, 22, 176.
- Krupa, S.V., 2003. Effects of atmospheric ammonia (NH₃) on terrestrial vegetation: a review. *Environ. Pollution.*, 124(2), 179-221.
- Kuenen, J.J.P., Visschedijk, A.J.H., Jozwicka, M., Denier van der Gon, H.A.C., 2014. TNO-MACC_II emission inventory; a multi-year (2003–2009) consistent high-resolution European emission inventory for air quality modelling, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 10963-10976, doi:10.5194/acp-14-10963-2014.

- Kukkonen, J., Olsson, T., Schultz, D. M., Baklanov, A., Klein, T., Miranda, A. I., Peuch, V. H., 2012. A review of operational, regional-scale, chemical weather forecasting models in Europe. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(1), 1-87.
- Lacressonnière, G., Foret, G., Beekmann, M., Siour, G., Engardt, M., Gauss, M., Watson, L., Andersson, C., Colette, A., Josse, B., Marécal V., Nyiri, A., Vautard, R., 2016. Impacts of regional climate change on air quality projections and associated uncertainties, *Climatic Change*, 136:309–324, DOI 10.1007/s10584-016-1619-z.
- Lazrak, E.G., Mari, J.F., Benoit. M., 2010. Landscape regularity modelling for environmental challenges in agriculture. *Landscape Ecol.*, 25:169–183
- Lazrak, E.-G., Mari, J.-F., Passy, P., Barataud, F., Mignolet, C., 2014. Conception d'une typologie fonctionnelle des paysages pour la modélisation territoriale des flux hydriques et atmosphériques de l'azote. Colloque PAYOTE, 16-17/09/2014, Paris.
- Lee, D.S. Dollard, G.J., 1994. The potential magnitude of non-animal sources of ammonia and uncertainties in the total emission of ammonia from the United Kingdom. *Envir. Poll.* 86, 267-277.
- Loubet, B., Cellier, P., 2001. Experimental assessment of atmospheric ammonia dispersion and short range dry deposition in a maize canopy. *Water Air and Soil Pollution: Focus*, 1, 157–166.
- Loubet, B., Cellier, P., Milford, C., Sutton, M. A., 2006. A coupled dispersion and exchange model for short-range dry deposition of atmospheric ammonia. *Q.J.R. Meteorol. Soc.*, 132, (618), 1733-1763.
- Loubet, B., Asman, W.A.H., Theobald, M.R., Hertel, O., Tang, Y.S., Robin, P., Hassouna, M., Daemmgen, U., Genermont, S., Cellier, P., Sutton, M.A., 2009. Ammonia Deposition Near Hot Spots: Processes, Models and Monitoring Methods, p 205-267.
- Marticorena B., Bergametti, G., 1995. Modeling the atmospheric dust cycle: 1-Design of a soil derived dust production scheme, *J. Geophys. Res.*, 100, 16415-16430.
- Menut, L., Chiapello, I., Moulin, C., 2009. Previsibility of mineral dust concentrations: The CHIMERE-DUST forecast during the first AMMA experiment dry season. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, in-press.
- Menut, L., Bessagnet, B., Colette, A., Khvorostyanov, D., 2013. On the impact of the vertical resolution on chemistry transport modelling. *Atmos. Environ.*, 67, 370–384
- Menut, L., Bessagnet, B., Khvorostyanov, D., Beekmann, M., Blond, N., Colette, A., Coll, I., Curci, G., Foret, G., Hodzic, A., Mailler, S., Meleux, F., Monge, J-L., Pison, I., Siour, G., Turquety, S., Valari, M., Vautard, R., Vivanco, M.G., 2014. CHIMERE 2013: a model for regional atmospheric composition modelling. *Geoscientific Model Development*, 6(4), 981-1028.
- Metcalf, S.E. , Whyatt, J.D., Derwent R.G., 1995. A comparison of model and observed network estimates of sulphur deposition across Great Britain for 1990 and its likely source attribution. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 121 (1995), pp. 1387–1411

- Milford, C., Theobald, M.R., Nemitz, E., Sutton, M.A., 2001. Dynamics of ammonia exchange in response to cutting and fertilising in an intensively-managed grassland. *Water Air and Soil Pollution: Focus*, 1(5–6), 167–176.
- Moal, J.-F., Martinez, J., Guiziou, F., Coste, C.-M., 1995. Ammonia emission following surface-applied pig and cattle slurry in France. *J. Agric. Sci. Camb.* 125, 245–252.
- MOI, 1982-83. United States-Canada Memorandum of Intent on transboundary Air Pollution: Final Reports by the Impact Assessment Work Group I, Atmospheric modelling Work Group 2; Strategies Development and Implementation Work Group 3A. U.S. Department of State and Embassy Canada, Washington, D.C.
- Monin-Obukhov, 1954. The main features of turbulent mixing in the surface atmospheric layer. *Trudy Inst. Geophys. Acad. Sci. USSR*, vol 24.
- Monin, A.S., Zilitinkevich, S.S., 1974. Similarity theory and resistance laws for the planetary boundary layer. *Boundary-Layer Meteorology*, 7(3), 391-397.
- Murlis, J., 1995. Critical loads: the policy background. In: *Acid rain and its impact: the critical loads debate* (edited by R. W. Battarbee), 91–95. *Ensis: London*.
- Murphy, J., 1999. An evaluation of statistical and dynamical techniques for downscaling local climate. *Journal of Climate*, 12(8), 2256-2284.141-158.
- Myrup, L.O., Ranzieri, A.J., 1976. A consistent scheme for estimating diffusivities to be used in air quality models (No. FHWA-CA-76-32 Intrm Rpt.).
- NAPAP, 1989. Assessment Plan Update. National Acid Precipitation Assessment Program, Washington, D.C. 180p.
- Neirynek, J., Kowalski, A.S., Carrara, A., Ceulemans, R., 2005. Driving forces for ammonia fluxes over mixed forest subjected to high deposition loads. *Atmos. Environ.*, 39(28), 5013-5024.
- Nemitz, E., Sutton, M.A., Gut, A., San, José, R., Husted, S., Schjoerring, J.K., 2000a. Sources and sinks of ammonia within an oilseed rape canopy. *Agricultural and Forest Meteorology (Ammonia Exchange Special Issue)*, 105(4), 385–404.
- Nemitz, E., Sutton, M.A., Schjoerring, J.K., Husted, S., Wyers, G.P., 2000b. Resistance modelling of ammonia exchange over oilseed rape. *Agricultural and Forest Meteorology (Ammonia Exchange Special Issue)*, 105(4), 405–425.
- Nemitz, E., Gallagher, M.W., Duyzer, J.H., Folwer, D., 2002. Micrometeorological measurements of particle deposition velocities to moorland vegetation. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 128(585), 2281–2300.
- Nemitz, E., Sutton, M.A., Wyers, G.P., Jongejan, P.A.C., 2004a. Gas-particle conversions above a Dutch heathland: I. Surface exchange fluxes of NH₃, SO₂, HNO₃ and HCl. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 4, 989–1005.

- Nemitz, E., Sutton, M.A., Wyers, G.P., Mennen, M.G., van Putten, E.M., Gallagher, M.W., 2004b. Gas-particle conversions above a Dutch heathland: II. Concentrations and surface exchange fluxes of atmospheric particles. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 4, 1007–1024.
- Nemitz, E., Sutton, M.A., 2004. Gas-particle interactions above a Dutch heathland: III. Modelling the influence of the $\text{NH}_3\text{-HNO}_3\text{-NH}_4\text{BO}_3$ equilibrium on size-segregated particle fluxes. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 4, 1025–1045.
- Oenema, O., Van Liere, L., Plette, S., Prins, T., Van Zeijts, H., Schoumans, O., 2004. Environmental effects of manure policy options in the Netherlands. *Water Science and Technology*, 49(3), 101-108.
- Olesen, J.E., Sommer, S.G., 1993. Modelling effects of wind-speed and surface cover on ammonia volatilization from stored pig slurry. *Atmos. Environ.*, 27, 2567–2574.
- Oudendag, D.A., Luesink, H.H., 1998. The manure model: manure, minerals (N, P and K), ammonia emission, heavy metals and the use of fertiliser in Dutch agriculture. *Environmental Pollution*, 102(S1), 241–246
- OTA. 1984. Final report on Acid Rain and Transported Air Pollutants: Implications for Public Policy. Congressional Office of Technology Policy, Washington D.C. 80p.
- Oxley, T., ApSimon, H. M., 2007. Space, time and nesting integrated assessment models. *Environ. Model. Softw.* 22(12), 1732-1749.
- Pain, B.F., van der Weerden, T.J., Chambers, B.J., Phillips, V.R., Jarvis S.C., 1998. A new inventory for ammonia emissions from UK agriculture. *Atmos. Environ.*, 32, 309–313.
- Park S.U., Lee Y.H., 2002. Spatial distribution of wet deposition of nitrogen in South Korea. *Atmos. Environ.*, 36, 619–628.
- Pasquill F., 1974. *Atmospheric Diffusion*. Ellis Horwood.
- Persson, C., Ressner, E., Klein, T. 2004. Nationell miljöövervakning–MATCH Sverige modellen. SMHI Meteorologi, 113.
- Phillips, S. B., Arya, S. P., Aneja, V. P., 2004. Ammonia flux and dry deposition velocity from near-surface concentration gradient measurements over a grass surface in North Carolina. *Atmospheric Environment*, 38(21), 3469-3480.
- Pitcairn, C.E., Leith, I.D., van Dijk, N., Sheppard, L.J., Sutton, M.A., Fowler, D., 2009. The application of transects to assess the effects of ammonia on woodland groundflora. In *Atmos. ammonia Springer Netherlands*, 59-69.
- Putaud, J.P., Van Dingenen, R., Alastuey, A., Bauer, H., Birmili, W., Cyrys, J., Harrison, R. M., 2010. A European aerosol phenomenology–3: Physical and chemical characteristics of particulate matter from 60 rural, urban, and kerbside sites across Europe. *Atmos. Environ.*, 44(10), 1308-1320.

- Raes F., Van Dingenen R., Wilson J., Saltelli A., 1993. Dimethyl Sulphide, Oceans, Atmosphere and Climate (Restelli G. and Angeletti G. (eds.). Kluwer, Dordrecht, The Netherlands, pp. 311–322.
- Riddick, S.N., Blackall, T.D., Dragosits, U., Daunt, F., Newell, M., Braban, C.F., Trathan, P., 2016. Measurement of ammonia emissions from temperate and sub-polar seabird colonies. *Atmospheric Environment*, 134, 40-50.
- Rohde, L., Johansson, S., 1996. Urin-spridningsteknik, ammoniakavgång och vaxtnäringsutnyttjande (Ammonia emission and nutrient utilization from urine using different techniques for application). JTI-rapport, Landbruk & Industri Nr. 217. Jordbrukstekniska institutet, S-Uppsala, pp.107
- Rosnoblet, J., Theobald, M., Générmont S., Gabrielle B., Cellier P., 2007. How the use of a mechanistic model of ammonia volatilisation in the field may improve national ammonia volatilization inventories. In: Monteny G.J. (ed.) *Ammonia emissions in agriculture*. Wageningen Academic Publishers, Wageningen, The Netherlands.
- Rouil, L., Honore, C., Vautard, R., Beekmann, M., Bessagnet, B., Malherbe, L., Menut, L., 2009. PREV'AIR. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 90(1), 73.
- Riedo, M., Milford, C., Schmidt, M., Sutton, M.A., 2002. Coupling soil-plant-atmosphere exchange of ammonia with ecosystem functioning in grasslands. *Ecological Modelling*, 158, 83–110.
- Sandnes, H., 1993. Corrigendum to EMEP/MSC-w Report 1/92 (Appendix C). EMEP/MSC-W Report 1/92, The Norwegian Meteorological Institute.
- Sauter, F., Van Jaarsveld, H., Van Zanten, M., Van der Swaluw, E., Aben, J., de Leeuw, F., 2015. The OPS-model. Description of OPS 4.4.4. RIVM Report, National Institute for Public Health and the Environment (RIVM), Bilthoven, The Netherlands. 113 pp. <http://www.rivm.nl/media/ops/v4.4.4/OPS-model-v4.4.4.pdf>
- Schaap, M., Timmermans, R.M., Roemer, M., Boersen, G.A.C., Builtjes, P., Sauter, F., Velders, G., Beck, J., 2008. The LOTOS-EUROS model: description, validation and latest developments. *International Journal of Environment and Pollution*, 32(2), 270-290.
- Schindler, D.W., Fee, E.J., 1974. Experimental lakes area: whole-lake experiments in eutrophication. *Journal of the Fisheries Board of Canada*, 31(5), 937-953.
- Schjoerring, J.K., Husted, S., Mattsson, M., 1998. Physiological parameters controlling plant-atmosphere ammonia exchange. *Atmos. Environ. (Ammonia Special Issue)*, 32(3), 491-498.
- Schmidt, H., Derognat, C., Vautard, R., Beekmann, M., 2001. A comparison of simulated and observed ozone mixing ratios for the summer of 1998 in Western Europe. *Atmos. Environ.*, 35, 6277–6297.

- Schou, J.S., Tybirk, K., Løfstrøm, P., and Hertel, O., 2006. Economic and environmental analysis of buffer zones as an instrument to reduce ammonia loads to nature areas, *Land Use Policy*, 23, 533–541.
- Sharpe, R.R., Harper, L.A., 1995. Soil, plant and atmospheric conditions as they relate to ammonia volatilization. In *Nitrogen Economy in Tropical Soils* (pp. 149-158). Springer Netherlands.
- Seedorf, J., Hartung, J., Schröder, M., Linkert, K. H., Pedersen, S., Takai, H., Johnsen, J.O., Metz, J.H.M., Groot Koerkamp, P.W.G., Uenk, G.H., 1998. A survey of ventilation rates in livestock buildings in Northern Europe. *Journal of Agricultural Engineering Research*, 70(1), 39-47.
- Seinfeld, J.H., Pandis, S.N., 1998. *Atmospheric chemistry and physics. From air pollution to climate change*. Wiley, New York.
- Simpson, D., Fagerli, H., Jonson, J. E., Tsyro, S., Wind, P., Tuovinen, J-P., 2003. Transboundary Acidification, Eutrophication and Ground Level ozone in Europe, PART I, Unified EMEP Model Description. 1, pp. 1-104. 1-8-2003.
- Simpson, D., Benedictow, A., Berge, H., Bergström, R., Emberson, L.D., Fagerli, H., Flechard, C.R., Hayman, G.D., Gauss, M., Jonson, J.E., Jenkin, M.E., Ny'iri, A., Richter, C., Semeena, V.S., Tsyro, S., Tuovinen, J.P., Valdebenito, A., Wind, P., 2012. The EMEP MSC-W chemical transport model – technical description, *Atmos. Chem. Phys.* 12, 7825–7865.
- Singles, R., Sutton, M.A., Weston, K.J., 1998. A multi-layer model to describe the atmospheric transport and deposition of ammonia in Great Britain. *Atmos. Environ.*, 32(3), 393-399
- Skamarock, W., Klemp, J., Dudhia, J., Gill, D., Barker, D., Wang, W., Powers, J., 2007. A Description of the Advanced Research WRF Version 2, NCAR Technical Note, Boulder, Colorado, USA.
- Skjøth, C.A., Ellermann, T., Hertel, O., Gyldenkerne, S., Mikkelsen, M.H., 2008. Footprints on ammonia concentrations from environmental regulations. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 58(9), 1158-1165.
- Soderlund, R., Svensson, B.H., 1976. The global nitrogen cycle In *Nitrogen and Sulphur-Global Cycles* (edited by Soderlund, R. and Svensson, B.H.), SCOPE report 7, Ecol. Bull., Stockholm 22, 23-73.
- Sommer, S.G., Olesen, J.E., 1991. Effect of dry matter content and temperature on NH₃ loss from surface-applied cattle slurry. *J. Environ. Qual.* 20, 679–683.
- Sommer, S.G., Friis, E., Bak, A.B., Schjørring, J.K., 1997. Ammonia emission from pig slurry applied with trail hoses or broadcast to winter wheat: Effects of crop developmental stage, microclimate, and leaf ammonia absorption. *J. Environ. Qual.* 26, 1153–1160.
- Sommer, S.G., Générmont, S., Cellier, P., Hutchings, N.J., Olesen, J.E., Morvan, T., 2003. Processes controlling ammonia emission from livestock slurry in the field. *European Journal of Agronomy*, 19(4), 465-486.

- Sommer, S.G., Østergård, H.S., Løfstrøm, P., Andersen, H.V., Jensen, L.S., 2009. Validation of model calculation of ammonia deposition in the neighbourhood of a poultry farm using measured NH₃ concentrations and N deposition. *Atmos. Environ.* 43 (4), 915e920.
- Soulhac, L., Puel, C., Duclaux, O., Perkins, R.J., 2003. Simulations of atmospheric pollution in Greater Lyon an example of the use of nested models. *Atmos. Environ.*, 37(37), 5147-5156.
- Stein, A.F., Isakov, V., Godowitch, J. Draxler, R.R., 2007. A hybrid modeling approach to resolve pollutant concentrations in an urban area. *Atmos. Env.*, 41(40):9410{9426. 36
- Stohl, A., 1998. Computation, accuracy and applications of trajectories - a review and bibliography. *Atmos. Environ.*, 32, 947–966.
- Stull, R.B., 2012. An introduction to boundary layer meteorology (Vol. 13). Springer Science & Business Media.
- Sutton, M.A., Fowler, D., Moncreiff, J.B., Storeton-West, R.L. 1993a. The exchange of atmospheric ammonia with vegetated surfaces. I. Fertilized vegetation. *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 119, 1047–1070.
- Sutton, M.A., Fowler, D., Moncreiff, J.B., 1993b. The exchange of atmospheric ammonia with vegetated surfaces. I: Unfertilized vegetation. *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 119, 1023–1045.
- Sutton, M.A., Asman, W.A.H., Schjoerring, J.K., 1993c. Dry deposition of reduced nitrogen. In: Lövblad, G., Erisman, J.W., Fowler, D., (eds.) *Models and methods for the quantification of atmospheric input to ecosystems*. (Report of the UNECE Göteborg Workshop, 11/1992), Nordic Council of Ministers, Copenhagen, pp. 125–143. [Revised version published in *Tellus* 46B, 255–273].
- Sutton, M.A., Schjorring, J.K., Wyers, G.P., 1995a. Plant-atmosphere exchange of ammonia. *Philosophical Transactions of the Royal Society London Series A*, 351, 261–278.
- Sutton, M.A., Burkhardt, J.K., Guerin, D., Fowler, D., 1995b. Measurement and modelling of ammonia exchange over arable croplands. In: Heij, G.J., Erisman, J.W., (eds.) *Acid rain research: do we have enough answers?* Elsevier, Amsterdam, The Netherlands, pp. 71–80.
- Sutton, M.A., Place, C.J., Eager, M., Fowler, D., Smith, R. I., 1995c. Assessment of the magnitude of ammonia emissions in the United Kingdom. *Atmos. Environ.*, 29(12), 1393-1411.
- Sutton, M.A., Milford, C., Dragosits, U., Place, C.J., Singles, R.J., Smith, R.I., Pitcairn, C.E.R., Fowler, D., Hill, J., ApSimon, H.M., Ross, C., Hill, R., Jarvis, S.C., Pain, B.F., Phillips, V.C., Harrison, R., Moss D., Webb, J., Espenhahn, S.E., Lee, D.S., Hornung, M., Ullyett, J., Bull, K.R., Emmett, B.A., Lowe, J., Wyers, G.P., 1998. Dispersion, deposition and impacts of atmospheric ammonia: quantifying local budgets and spatial variability. *Environ. Pollut.*, 102, 349–361.
- Sutton, M.A., Dragosits, U., Tang, Y.S., Fowler, D., 2000. Ammonia emissions from non-agricultural sources in the UK. *Atmos. Environ.*, 34(6), 855-869.
- Sutton, M.A., Milford, C., Nemitz, E., Theobald, M.R., Hill, P.W., Fowler, D., Schjoerring, J.K., Mattsson, M.E., Nielsen, K.H., Husted, S., Erisman, J.W., Otjes, R., Hensen, A., Mosquera, J.,

Cellier, P., Loubet, B., David, M., Genermont, S., Neftel, A., Blatter, A., Herrmann, B., Jones, S.K., Horvath, L., Fuhrer, E.C., Mantzanas, K., Koukoura, Z., 2001. Biosphere-atmosphere interactions of ammonia with grasslands: experimental strategy and results from a new European initiative. *Plant and Soil*, 228(1), 131-145.

Tennekes H., 1973. A model for the dynamics of the inversion above a convective boundary layer. *J. Atmos. Sci.* 30, 558-567.

Terrenoire, E., Bessagnet, B., Rouil, L., Tognet, F., Pirovano, G., Létinois, L., Beauchamp, M., Colette, A., Thunis, P., Amann, M., and Menut, L., 2015. High-resolution air quality simulation over Europe with the chemistry transport model CHIMERE, *Geosci. Model Dev.*, 8, 21-42, doi:10.5194/gmd-8-21-2015.

Tesche, M., Schmidtchen, A., 1978. Schädigungen an Koniferen in der Umgebung von Anlagen der Industriemässigen Hühnerhaltung. *Arch. Phytopathol. Pflanzenschutz*, 5: 327-332.

Theobald, M.R., Milford, C., Hargreaves, K.J., Sheppard, L.J., Nemitz, E., Tang, Y.S., Phillips, V.R., Sneath, R., McCartney, L., Harvey, F.J., Leith, I.D., Cape, J.N., Fowler, D., Sutton, M.A., 2001. Potential for ammonia recapture by farm woodlands: design and application of a new experimental facility. *The Scientific World*, 1(S2), 791–801

Theobald, M.R., Dragosits, U., Place, C.J., Smith, J.U., Sozanska, M., Brown, L., Scholefield, D., Del prado, A., Webb, J., Whitehead, P.G., Angus, A., Hodge, I.D., Fowler, D., Sutton, M.A., 2004. Modelling nitrogen fluxes at the landscape scale. *Water Air Soil Pollut. Focus* 4 (6), 135e142.

Theobald, M.R., Løfstrøm, P., Walker, J., Andersen, H.V., Pedersen, P., Vallejo, A., Sutton, M.A., 2012. An intercomparison of models used to simulate the short-range atmospheric dispersion of agricultural ammonia emissions. *Environ. Model. Softw.*, 37, 90-102.

Troen, I. and Mahrt, L., 1986. A simple model of the atmospheric boundary layer: Sensitivity to surface evaporation. *Boundary-Layer Meteorology*, 37:129–148.

Tuovinen, J.-P., Barrett, K., Styve, H., 1994. Transboundary Acidifying Pollution in Europe, Meteorological Synthesizing Centre-West, Norway.

Turquety, S., Menut, L., Bessagnet, B., Anav, A., Viovy, N., Maignan F., Wooster, M., 2014. APIFLAME v1.0: High resolution fire emission model and application to the Euro-Mediterranean region, *Geosci.Model., Dev* , 7, 587-612.

UBA (Umweltbundesamt), 1993. Manual on methodologies and criteria for mapping critical loads/levels and geographical areas where they are exceeded. Federal Environmental Agency: Berlin.

UBA, 2004: Qualitätssicherungs-Handbuch des UBA-Messnetzes (in German), UBA Texte 28/04, (Federal Environmental Agency), Dr. Klaus Nienerowski, Umweltbundesamt, Berlin, Germany

Valari, M., Menut, L., 2008. Does an Increase in Air Quality Models' Resolution Bring Surface Ozone Concentrations Closer to Reality? *J. Atmos. Oceanic Technol.*, 25, 1955–1968.

- Valari, M., Menut, L., 2010. Transferring the heterogeneity of surface emissions to variability in pollutant concentrations over urban areas through a chemistry-transport model, *Atmos. Environ.*, 44(27), 3229-3238, doi:10.1016/j.atmosenv.2010.06.001.
- Valari, M., Menut, L., Chatignoux, E., 2011. Using a Chemistry Transport Model to Account for the Spatial Variability of Exposure Concentrations in Epidemiological Air Pollution Studies, *Air and Waste Management Association*, 61(2).
- van Breemen, N., Burrough, P.A., Velthorst, E.V., Van Dobben, H.F., de Wit, T., Ridder, T. D., Reijnders, H.F.R., 1982. Soil acidification from atmospheric ammonium sulphate in forest canopy throughfall. *Nature* 299: 548-550
- van Damme, M., Wichink Kruit, R. J., Schaap, M., Clarisse, L., Clerbaux, C., Coheur, P. F., Erismann, J. W., 2014. Evaluating 4 years of atmospheric ammonia (NH₃) over Europe using IASI satellite observations and LOTOS-EUROS model results. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 119(15), 9549-9566.
- van Hove, L.W.A., Adema, E.H., Vredenberg, W.J., Pieters, G.A., (1989). A study of the adsorption of NH₃ and SO₂ on leaf surfaces. *Atmos. Environ.*, 23, 1479–1486.
- van Jaarsveld J.A., Bleeker A., Hoogervorst N.J.P., 2000. Evaluatie ammoniak missiesredukties met behulp van metingen en modelberekeningen (evaluation of ammonia emission reductions using measurements and model calculations). Report 722108025, National Institute of Public Health and the Environment, Bilthoven, The Netherlands, 62 pp.
- van Jaarsveld, J.A., 2004. The Operational Priority Substances model. Description and validation of OPS-Pro 4.1. RIVM-report 500045001. RIVM, Bilthoven, The Netherlands
- van Leer, B., 1979. Towards the Ultimate Conservative Difference Scheme V: A Second-Order Sequel to Godunov's Method, *J. Comput. Phys.* Vol.32, pp. 101–136.
- van Pul, W.A.J., Van Jaarsveld, J.A., Vellinga, O.S., Van den Broek, M., Smits, M.C.J., 2008. The VELD experiment: an evaluation of the ammonia emissions and concentrations in an agricultural area. *Atmos. Environ.* 42 (34), 8086e8095.
- van Pul, A., Reis, S., Dore, T., Xuejun, L., Hilde, F., Geels, C., Vieno, M. 2009. Modelling the national and regional transport and deposition of ammonia. In *Atmospheric Ammonia* (pp. 409-421). Springer Netherlands.
- van Ulden, A.P., Holtslag, A.A.M., 1985. Estimation of atmospheric boundary layer parameters for diffusion applications. *J. Climate Appl. Meteorol.* 24, 1196-1207.
- van Zanten M.C., Sauter F.J., Wichink Kruit R.J., van Jaarsveld J.A., van Pul W.A.J., 2010. Description of the DEPAC module, Dry deposition modelling with DEPAC_GC2010, RIVM report 680180001, RIVM, Bilthoven.
- Vautard, R., Beekmann, M., Roux, J., Gombert, D., 2001. Validation of a Hybrid Forecasting System for the Ozone Concentrations over the Paris Area; *Atmos. Environ.*, 35, 2449-2461

- Vautard, R., Honore, C., Beekmann, M., Rouil, L., 2005. Simulation of ozone during the august 2003 heat wave and emission control scenarios. *Atmos. Environ.* 39, 3291-3303.
- Venkatram, A., Isakov, V., Seila, R., Baldauf, R. (2009). Modeling the impacts of traffic emissions on air toxics concentrations near roadways. *Atmos. Environ.*, 43(20):3191-3199. 36
- Vieno, M., Wind, P., Weston, K.J., Dore, A. J., Tarrasón, L., Sutton, M.A., 2005. Fine scale application of the EMEP unified air pollution model to the United Kingdom. In 10th Harmonisation conference proceedings, Crete. < <http://www.harmo.org/harmo10>.
- Vieno, M., Dore, A. J., Wind, P., Di Marco, C., Nemitz, E., Phillips, G., Sutton, M. A., 2009. Application of the EMEP Unified Model to the UK with a horizontal resolution of $5 \times 5 \text{ km}^2$. In *Atmospheric Ammonia* (pp. 367-372). Springer Netherlands.
- Vieno, M., Dore, A.J., Stevenson, D.S., Doherty, R., Heal, M.R., Reis, S., Hallsworth, S., Tarrason, L., Wind, P., Fowler, D., Simpson, D., Sutton, M.A., 2010. Modelling surface ozone during the 2003 heat-wave in the UK. *Atmos. Chemistry and Phys.*, 10(16), 7963-7978.
- Vitousek, P. M., Howarth, R.W., 1991. Nitrogen limitation on land and in the sea: how can it occur?. *Biogeochemistry*, 13(2), 87-115.
- WallisDeVries, M. F., Bobbink, R., 2017. Nitrogen deposition impacts on biodiversity in terrestrial ecosystems: Mechanisms and perspectives for restoration.
- Wang, Y., McElroy, M., Jacob, D., Yantosca, R., 2004. A nested grid formulation for chemical transport over Asia: Applications to CO. *J. Geophys. Res.*, 109(D22).
- Wathes, C.M., Phillips, V.R., Holden, M.R., Sneath, R.W., Short, J.L., White, R.P., Hartung, J., Seedorf, J., Schroder, M., Linkert, K.H., Pedersen, S., Takai, H., Johnsen, J.O., Groot Koerkamp, P.W.G., Uenk, G.H., Metz, J.H.M., Hinz, T., Caspary, V., Linke, S., 1998. Emissions of aerial pollutants in livestock buildings in Northern Europe: Overview of a multinational project. *J. Agricultural Eng. Res.*, 70, 3-9
- Wesely M.L. Hicks, B.B., 1977. Some factors that affect the deposition rates of sulfur dioxide and similar gases on vegetation. *J. Air Pollut. Control Assoc.* 27, 1110-1116.
- Wesely, M., 1989. Parameterization of Surface Resistances to Gaseous Dry Deposition in Regional-Scale Numerical Models. *Atmos. Environ.* 23, 1293-1304.
- WHO: 1987 Air Quality Guidelines for Europe. WHO: Copenhagen
- Wichink Kruit, R.J., Van Pul, W.A.J., Sauter, F.J., Van den Broek, M., Nemitz, E., Sutton, M.A., Krol, M., Holtslag, A.A.M., 2010. Modeling the surface-atmosphere exchange of ammonia, *Atmos. Environ.*, 44, 945-957.
- Wichink Kruit, R.J., Schaap, M., Sauter, F.J., van Zanten, M.C., van Pul, W.A.J., 2012. Modeling the distribution of ammonia across Europe including bi-directional surface-atmosphere exchange. *Biogeosciences* 9, 5261-5277.

Wieringa, J., Rijkoort, P.J., 1983. Windklimaat van Nederland, Staatsuitgeverij, Den Haag, the Netherlands.

Zhang, L., Gong, S., Padro, J., and Barrie, L., 2001. A size-segregated particle dry deposition scheme for an atmospheric aerosol module, *Atmos. Environ.*, 35, 549–560.

Publications et conférences

- **3ème Assemblée générale ECALIRE Zagreb, Croatie 22 – 24 Octobre, 2013.**

Niramson Azouz^a, Jean Louis Drouet^a, Matthias Beekmann^b, Pierre Cellier^a

^a UMR ECOSYS, INRA, AgroParisTech, Université Paris-Saclay, F-78850, Thiverval-Grignon, France

^b UMR LISA UMR7583, CNRS, UPEC, UPD, F-94010, Créteil, France

- **4ème Assemblée générale ECLAIRE et conférence scientifique, Budapest, Hongrie, 29 Septembre – 2 Octobre 2014. (poster)**

Niramson Azouz^a, Jean Louis Drouet^a, Matthias Beekmann^b, Pierre Cellier^a

^a UMR ECOSYS, INRA, AgroParisTech, Université Paris-Saclay, F-78850, Thiverval-Grignon, France

^b UMR LISA UMR7583, CNRS, UPEC, UPD, F-94010, Créteil, France

- **5ème Assemblée générale ECLAIRE et conférence scientifique, Edinbourg, Ecosse, 31 Août – 4 Septembre 2015 (poster)**

Niramson Azouz^a, Jean Louis Drouet^a, Matthias Beekmann^b, Pierre Cellier^a

^a UMR ECOSYS, INRA, AgroParisTech, Université Paris-Saclay, F-78850, Thiverval-Grignon, France

^b UMR LISA UMR7583, CNRS, UPEC, UPD, F-94010, Créteil, France

- **19Nitrogenws, Skara, Suède, 27-29 Juin 2016. (poster)**

Niramson Azouz^a, Jean Louis Drouet^a, Matthias Beekmann^b, Pierre Cellier^a

^a UMR ECOSYS, INRA, AgroParisTech, Université Paris-Saclay, F-78850, Thiverval-Grignon, France

^b UMR LISA UMR7583, CNRS, UPEC, UPD, F-94010, Créteil, France

- **Environmental Modelling and Software à Toulouse, France, 10-14 Juillet 2016. (Présentation orale)**

Niramson Azouz^a, Jean Louis Drouet^a, Matthias Beekmann^b, Pierre Cellier^a

^a UMR ECOSYS, INRA, AgroParisTech, Université Paris-Saclay, F-78850, Thiverval-Grignon, France

^b UMR LISA UMR7583, CNRS, UPEC, UPD, F-94010, Créteil, France

- **1^{er} article : Evaluation of the sub-grid variability of models simulating atmospheric ammonia fluxes at regional scale from models integrating processes at landscape scale (in progress)**

Niramson Azouz^a, Jean Louis Drouet^a, Matthias Beekmann^b, Guillaume Siour^b, Roy Wichink Kruit^c, Pierre Cellier^a

^a UMR ECOSYS, INRA, AgroParisTech, Université Paris-Saclay, F-78850, Thiverval-Grignon, France

^b UMR LISA UMR7583, CNRS, UPEC, UPD, F-94010, Créteil, France

^c RIVM, 3720 BA Bilthoven, The Netherlands

- **2^{ème} article: Effect of the sub-grid variability on the ammonia deposition impact assessment (in progress)**

Niramson Azouz^a, Jean Louis Drouet^a, Matthias Beekmann^b, Pierre Cellier^a

^a UMR ECOSYS, INRA, AgroParisTech, Université Paris-Saclay, F-78850, Thiverval-Grignon, France

^b UMR LISA UMR7583, CNRS, UPEC, UPD, F-94010, Créteil, France

Résumé :

La dispersion et le transport atmosphérique d'ammoniac (NH_3) émis par les sources agricoles et son dépôt sec sur le sol et la végétation peuvent entraîner la dégradation des écosystèmes sensibles, ainsi que l'acidification des sols. Les concentrations atmosphériques et les dépôts secs de NH_3 sont généralement plus élevés à côté des sources d'émission, et les impacts environnementaux sur les écosystèmes sensibles sont souvent les plus importants à ces endroits. Pour mieux évaluer les impacts et leur étendue à l'échelle de paysages agricoles, des revues scientifiques sur les méthodes d'évaluation des impacts de NH_3 ont recommandé une comparaison entre différents types de modèles à différentes échelles spatiales. Dans ce contexte, nous avons comparé les flux de NH_3 simulés par deux modèles de dispersion, de transport et de dépôt par voie atmosphérique (CHIMERE et OPS-ST), pour différents scénarios théoriques et semi-réels et pour différentes tailles de maille des modèles. Les résultats de simulations montrent que les dépôts secs annuels de NH_3 , moyennés sur le domaine d'étude, sont comparables pour des tailles de maille correspondant aux tailles pour lesquelles les modèles ont été conçus. Cela implique que les modèles eulériens fonctionnant à des résolutions kilométriques peuvent être utilisés pour simuler l'impact du NH_3 sur la composition chimique de l'atmosphère. Les résultats divergent entre les modèles à proximité des sources. Les conditions météorologiques et la taille des mailles sont les facteurs ayant les effets les plus marqués sur les résultats des deux modèles. Enfin, nos résultats montrent que la détection des dépassements de charges critiques à proximité des sources est mieux représentée avec OPS-ST qu'avec CHIMERE, avec lequel on observe une surestimation des surfaces dépassant les charges critiques.

Mots clés : ammoniac atmosphérique, modèle de dispersion et de transport, dépôt sec, résolution spatiale, charges critiques

Modeling approaches for ammonia fluxes at local and regional scales in heterogeneous landscapes

Abstract:

Short-range atmospheric dispersion of ammonia emitted by agricultural sources and its subsequent deposition to soil and vegetation can lead to the degradation of sensitive ecosystems as well as soil acidification. Atmospheric concentrations and dry deposition rates of NH_3 are generally higher near the emission source and environmental impacts on sensitive ecosystems are often largest at these locations. To better evaluate the impacts and their extent at the agricultural landscapes scale, scientific reviews of NH_3 assessment methods recommended a comparison between different types of models at different spatial scales. In this context, we compared NH_3 fluxes simulated by two atmospheric dispersion, transport and deposition models (CHIMERE and OPS-ST) for different theoretical and semi-real scenarios and for different grid cell sizes. The simulation results show that the averaged NH_3 dry deposition over the investigated domains is comparable for grid cell sizes for which the models were designed. This implies that eulerian models with a km scale horizontal resolution can be used for studying the larger scale impact of NH_3 on atmospheric composition despite an inadequate treatment of near source dry deposition, for which the models diverge. Meteorological conditions and grid cell size are the factors having the strongest effects on the results of the two models. NH_3 dry deposition predictions can be used to map critical load exceedances, our results show that the detection of these exceedances near to the sources is better represented with OPS-ST than with CHIMERE, the latter showing an overestimation of the surfaces exceeding critical loads.

Keywords: atmospheric ammonia, dispersion model, dry deposition, spatial resolution, critical loads