



**Unité Environnement et  
Grandes Cultures**

20 OCT. 2000  
MINISTÈRE DE L'AGRICULTURE  
I.N.R.A. - Site AGROPARC  
Unité de Bioclimatologie  
Domaine Saint-Paul  
84914 AVIGNON CEDEX 9  
FRANCE

AI TH4  
BIBLIOTHÈQUE

UNIVERSITÉ  
PAUL  
SABATIER



TOULOUSE III

**Laboratoire  
d'Aérodynamique**

**THESE**

Présentée en vue de l'obtention du  
Doctorat de l'Université Paul Sabatier

Par

**Benjamin Loubet**

**Modélisation du dépôt sec  
d'ammoniac atmosphérique à proximité  
des sources**

Soutenue le 14 Avril 2000 devant la commission d'examen :

<b>R. Rosset</b> : Professeur, Université Paul Sabatier, Toulouse	Président
<b>A. Weill</b> : Directeur de Recherche, CNRS / CETP, Paris	Rapporteur
<b>B. Saugier</b> : Professeur, Université Paris VI	Rapporteur
<b>R. Delmas</b> : Professeur, Université Paul Sabatier, Toulouse	Examineur
<b>Y. Brunet</b> : Directeur de Recherche, INRA, Bordeaux	Examineur
<b>P. Cellier</b> : Directeur de Recherche, INRA, Grignon	Directeur de thèse



Unité Environnement et  
Grandes Cultures

MINISTÈRE DE L'AGRICULTURE  
I.N.R.A. - Site AGROPARC  
Unité de Bioclimatologie  
Domaine Saint-Paul  
84914 AVIGNON CEDEX 9  
FRANCE

UNIVERSITÉ  
PAUL  
SABATIER



TOULOUSE III

Laboratoire  
d'Aérodynamique

BIBLIOTHÈQUE

20 OCT. 2000

THESE

Présentée en vue de l'obtention du  
Doctorat de l'Université Paul Sabatier

Par

**Benjamin Loubet**

# Modélisation du dépôt sec d'ammoniac atmosphérique à proximité des sources

Soutenue le 14 Avril 2000 devant la commission d'examen :

**R. Rosset** : Professeur, Université Paul Sabatier, Toulouse  
**A. Weill** : Directeur de Recherche, CNRS / CETP, Paris  
**B. Saugier** : Professeur, Université Paris VI  
**R. Delmas** : Professeur, Université Paul Sabatier, Toulouse  
**Y. Brunet** : Directeur de Recherche, INRA, Bordeaux  
**P. Cellier** : Directeur de Recherche, INRA, Grignon

Président  
Rapporteur  
Rapporteur  
Examineur  
Examineur  
Directeur de thèse

## REMERCIEMENTS

Mes remerciements vont d'abord au **département Environnement et Agronomie de l'INRA**, qui a ouvert un poste d'ASC sur ce sujet de thèse, et qui a financé l'ensemble de ce projet, avec des conditions matérielles très appréciables.

Ma plus grande gratitude va à **Pierre Cellier** qui m'a aidé tout au long de cette étude, avec ses conseils et ses encouragements, mais aussi en participant activement aux expérimentations. Il a su encadrer ce travail, en y apportant son expérience scientifique, sur une thématique nouvelle pour son équipe. J'ai beaucoup apprécié sa disponibilité et ses qualités humaines et professionnelles, ainsi que la confiance qu'il a voulu m'accorder. Je le remercie également d'avoir entièrement relu et commenté ce mémoire. Qu'il trouve ici toute ma gratitude.

Cette thèse n'aurait pu voir le jour sans l'aide de mes collègues de l'équipe « **Atmosphère-Biosphère** » de l'unité mixte de recherche EGC de l'INRA à Grignon. Je tiens particulièrement à remercier **Brigitte Durand, Dominique Flura et Sylvie Masson**, qui ont apporté tout leur savoir-faire et leur bonne humeur, dans la préparation et la réalisation des expérimentations de terrain. Je les remercie chaleureusement pour leur disponibilité de tous les jours. Je remercie également, pour leur participation aux expérimentations, **Patricia Laville et Jean Vacher**. Merci à **M. de Chavagnac et M. Roveyaz** pour nous avoir aimablement donné accès au champ de maïs.

Je tiens à remercier particulièrement **Sophie Générmont**, dont l'expérience sur les émissions d'ammoniac m'a été précieuse, au niveau expérimental et bibliographique. Son aide au cours des différentes expérimentations ainsi que son mémoire de thèse m'ont été très utiles.

Je remercie aussi **Robert Goujet**, dont j'ai abusé de la gentillesse pour résoudre tous les petits problèmes techniques qui ont jalonné ce travail. Mes remerciements à **Mickael Chelle** qui m'a initié à la programmation C++, ainsi qu'à **Daniel Poudroux**, qui a donné de son temps pour résoudre les problèmes informatiques, malgré un emploi du temps chargé. Je n'oublie pas **Marina Pavlides et Claudine Lauransot**, qui gèrent avec efficacité et bonne humeur la bibliothèque.

Je remercie **Robert Rosset**, d'avoir accepté d'être mon directeur de thèse, et d'avoir toujours été disponible pour discuter des orientations scientifiques de cette thèse, et pour m'aider dans les démarches administratives compliquées par mon éloignement. Je remercie également **Yves Brunet** qui m'a aidé dans le choix d'un modèle de dispersion, au début de ma thèse. J'ai apprécié les commentaires des rapporteurs **Bernard Saugier et Alain Weill** sur le mémoire de thèse. Je les en remercie. Je remercie également **Robert Delmas** d'avoir accepté

de participer au jury de thèse.

Il m'est agréable de remercier ici **Mark Sutton** et **Celia Milford** (CEH, Edimbourg), qui m'ont donné accès aux résultats expérimentaux « Burrington Moor 1997 », que j'ai utilisé pour valider le modèle. Merci également pour leurs conseils sur ce travail. Je n'oublie pas **Martin Ferm**, qui nous avoir exposé ses travaux sur les tubes à diffusion, ainsi que **Jan Schjørring**, **Søren Husted** et **Marie Mattsson** (RVAU, Copenhague), qui nous ont présenté leurs travaux sur le point de compensation de l'ammoniac, au début de cette thèse.

Mes remerciements à **Frédéric Huard** du STEFCE, qui a fourni les données météorologiques utilisées dans l'étude du Chapitre VI. J'ai apprécié sa gentillesse et son efficacité.

Je remercie aussi le département Environnement et Agronomie de l'INRA et l'INSU/CNRS (Programme National Chimie Atmosphérique ; PNCA) pour le financement des expérimentations.

Merci à tous mes **collègues de Grignon**, qui ont participé de près ou de loin à la réussite de cette thèse. Merci à tous **mes amis** qui m'ont encouragé. Un grand merci à **ma famille** et **ma belle-famille** pour leur soutien, ainsi que pour leur présence le jour de ma soutenance. Un clin d'œil personnel à mon père pour m'avoir transmis l'envie de faire de la recherche.

Et enfin, mais avant tout, un très grand merci à **Sabine**, qui m'a toujours entouré de sa confiance, et encouragé, au long de ces années de thèse.

## TABLE DES MATIÈRES

LISTE DES FIGURES .....	V
LISTE DES TABLEAUX .....	XV
SYMBOLES.....	XIX
RESUME.....	XXV
ABSTRACT .....	XXVI
<hr/>	
<b>I. INTRODUCTION .....</b>	<b>1</b>
<b>I.1 Historique.....</b>	<b>1</b>
I.1.1 Premiers travaux sur l'ammoniac atmosphérique.....	1
I.1.2 Regain d'intérêt après guerre .....	2
I.1.3 Intérêts récent pour l'environnement .....	3
I.1.4 Le dépôt sec dans le contexte actuel.....	4
<b>I.2 Principales sources d'ammoniac atmosphérique.....</b>	<b>5</b>
I.2.1 Répartition des émissions par "secteurs".....	6
I.2.2 Distribution régionale des émissions.....	8
I.2.3 Variabilité spatiale des émissions.....	9
I.2.4 Tendances passées et à venir.....	10
I.2.5 Facteurs d'émissions et incertitudes.....	10
<b>I.3 L'ammoniac dans le cycle de l'azote .....</b>	<b>11</b>
I.3.1 Fixation de l'azote .....	11
I.3.2 L'ammoniac dans le sol .....	13
I.3.3 Nitrification.....	14
I.3.4 Dénitrification .....	14
I.3.5 Emission d'ammoniac par les plantes .....	14
I.3.6 Dispersion et dépôt de l'ammoniac.....	14
I.3.7 Réactions chimiques dans l'atmosphère, formation d'aérosols .....	15
<b>I.4 Dépôts d'ammoniac atmosphérique .....</b>	<b>15</b>
I.4.1 Dépôts humides.....	15
I.4.2 Dépôts secs.....	16
I.4.3 Bilans nationaux d' $\text{NH}_3$ atmosphérique.....	16
I.4.4 Variabilité spatiale et temporelle des dépôts secs .....	17
<b>I.5 Impact des dépôts d'ammoniac sur l'environnement.....</b>	<b>19</b>
I.5.1 Eutrophisation des écosystèmes semi-naturels - effets sur la biodiversité.....	20
I.5.2 Acidification des sols et eaux douces .....	22
I.5.3 Baisse de la résistance aux stress abiotiques des plantes.....	23
I.5.4 Effets bénéfiques des dépôts d' $\text{NH}_x$ ?.....	24
<b>I.6 Objectifs de la thèse.....</b>	<b>24</b>
<b>I.7 Bibliographie.....</b>	<b>25</b>

<b>II. LES MÉCANISMES DU DÉPÔT SEC D'AMMONIAC .....</b>	<b>31</b>
II.1 Dispersion de polluants dans la couche limite atmosphérique.....	32
II.1.1 Structure de la couche limite atmosphérique.....	32
II.1.2 Moyennes de Reynolds.....	35
II.1.3 Flux dans la couche limite de surface.....	37
II.1.4 Relations flux-gradient.....	38
II.1.5 Relations de similitude dans la CLS.....	40
II.1.6 Profils de vitesse du vent dans la CLS.....	42
II.1.7 Variances de vitesse du vent dans la CLS.....	44
II.1.8 Echelles de temps et de longueur dans la CLS.....	50
II.1.9 Dispersion de polluants depuis la surface.....	56
II.2 Transferts turbulents à l'interface végétation-atmosphère.....	60
II.2.1 Transfert dans la sous couche de rugosité.....	61
II.2.2 Profils de $\bar{u}$ et $\sigma_{u,v,w}$ dans les couverts.....	64
II.2.3 Echelles de longueur et de temps caractéristiques dans les couverts.....	67
II.2.4 Dissipation d'énergie turbulente dans le couvert.....	70
II.2.5 Caractère intermittent des échanges dans les couverts.....	71
II.2.6 Effet d'un changement de rugosité.....	78
II.3 Echanges foliaires et dépôts surfaciques de l'ammoniac dans un couvert végétal.....	79
II.3.1 Diffusion à travers la couche limite pseudo-laminaire.....	81
II.3.2 Échange d'ammoniac par voie stomatique.....	89
II.3.3 Le point de compensation stomatique pour l'ammoniac.....	94
II.3.4 Dépôt d'ammoniac sur la surface des feuilles.....	101
II.4 Conclusions.....	105
II.5 Bibliographie.....	107
<b>III. MODÉLISATION DU DÉPÔT SEC D'NH<sub>3</sub> A PROXIMITÉ DES SOURCES .....</b>	<b>119</b>
III.1 Introduction.....	120
III.2 Approche.....	120
III.2.1 Domaine spatial.....	121
III.2.2 Stationnarité.....	122
III.2.3 Approche lagrangienne de la dispersion.....	122
III.2.4 Principe de superposition.....	123
III.2.5 Modèle de dispersion et d'échange, couplage.....	123
III.3 Historique.....	124
III.3.1 Origines : mouvement Brownien (Einstein) et Théorie de la diffusion par mouvement continu (Taylor).....	124
III.3.2 Premières applications des modèles LS à la turbulence.....	126
III.3.3 Normalisation des fondements théoriques : Thomson (1987).....	127
III.3.4 Les modèles de dispersion dans la CLP.....	128
III.3.5 Les modèles de dispersion dans la couche limite stable.....	128
III.3.6 Les modèles de dispersion dans le couvert végétal.....	129
III.3.7 Problèmes divers, et ouverts.....	130
III.4 Construction d'un modèle de dispersion lagrangien stochastique.....	132
III.4.1 Théorie statistique.....	132
III.4.2 Application pratique au cas stationnaire.....	133
III.4.3 Processus de Markov et équation différentielle stochastique.....	135
III.4.4 Equation de Fokker-Planck.....	135
III.4.5 Estimation du paramètre de diffusion $b$ et matrice de "diffusion" $B$ .....	136
III.4.6 Estimation du paramètre de dérive $a$ - critère d'entropie.....	138
III.4.7 Modélisation stochastique de l'équation de diffusion turbulente.....	140
III.4.8 Conditions aux limites - schéma d'intégration numérique.....	141
III.4.9 Paramétrisation de l'écoulement turbulent.....	142

III.4.10	Conclusions sur le modèle de dispersion .....	150
III.5	Modèle d'échange foliaire.....	151
III.5.1	Choix du modèle d'échange foliaire .....	151
III.5.2	Découplage des émissions et des dépôts .....	153
III.5.3	Paramétrisation des résistances et du point de compensation.....	154
III.5.4	Paramétrisation du couvert et du microclimat .....	160
III.6	Couplage dispersion-absorption .....	162
III.6.1	Discretisation du domaine d'étude et du couvert .....	162
III.6.2	Répartition des sources et des puits.....	163
III.6.3	Couplage du modèle de dispersion et d'échange .....	164
III.7	Mise en œuvre du modèle.....	166
III.7.1	Calcul de la concentration moyenne dans une maille .....	166
III.7.2	Schéma algorithmique.....	167
III.8	Conclusions .....	168
III.9	Bibliographie.....	169
<b>IV.</b>	<b>EXPÉRIMENTATIONS.....</b>	<b>175</b>
IV.1	Introduction .....	176
IV.2	Matériel et méthode .....	178
IV.2.1	Description générale.....	178
IV.2.2	Source d'ammoniac gazeux .....	181
IV.2.3	Mesures micrométéorologiques.....	183
IV.2.4	Mesure continue des gradients de concentration en NH <sub>3</sub> .....	187
IV.2.5	Mesure de la concentration moyenne en NH <sub>3</sub> .....	188
IV.2.6	Mesures de la turbulence dans le couvert.....	192
IV.2.7	Hauteur du couvert, surface foliaire, et résistance stomatique .....	193
IV.3	Résultats 195	
IV.3.1	Conditions micrométéorologiques générales.....	195
IV.3.2	Température du couvert .....	198
IV.3.3	Croissance du couvert .....	199
IV.3.4	Bilan d'énergie et résistances R <sub>a</sub> , R <sub>b</sub> et R <sub>s</sub> .....	199
IV.3.5	Gradients d'NH <sub>3</sub> au-dessus du couvert .....	202
IV.3.6	Conditions d'échange dans le couvert.....	205
IV.3.7	Concentrations moyennes dans le couvert.....	210
IV.3.8	Bilan des données moyennes sur chaque série .....	219
IV.4	Discussion .....	220
IV.4.1	Dispersion en aval de la source .....	221
IV.4.2	Estimation des dépôts secs d'NH <sub>3</sub> .....	225
IV.5	Conclusions .....	232
IV.6	Autres résultats expérimentaux.....	233
IV.7	Bibliographie.....	234
<b>V.</b>	<b>VALIDATION ET SENSIBILITÉ DU MODÈLE DE DÉPÔT SEC.....</b>	<b>239</b>
V.1	Introduction .....	240
V.2	"Validation" sur prairie.....	241
V.2.1	Données de "Burrington Moor" .....	241
V.2.2	Données "Bretagne98" .....	246
V.3	"Validation" sur maïs.....	250

TABLE DES MATIERES

V.3.1	Paramétrisation du modèle pour le maïs.....	251
V.3.2	Profils verticaux de concentration en aval de la source.....	253
V.3.3	Profils horizontaux de concentration dans le couvert.....	259
V.4	Discussion sur la validation du modèle .....	261
V.5	Etude de sensibilité du modèle .....	263
V.5.1	Choix des paramètres étudiés .....	263
V.5.2	Sensibilité aux paramètres d'intégration numérique .....	264
V.5.3	Sensibilité à la paramétrisation de la turbulence .....	267
V.5.4	Sensibilité aux paramètres du couvert et du microclimat .....	272
V.5.5	Conclusions sur la sensibilité du modèle.....	276
V.6	Conclusions .....	277
V.7	Bibliographie.....	278
<b>VI.</b>	<b>APPLICATION DU MODÈLE - DISCUSSION .....</b>	<b>281</b>
VI.1	Introduction .....	282
VI.2	Effets <u>distincts</u> des facteurs liés à la plante et au climat sur les dépôts locaux .....	282
VI.2.1	Influence de la hauteur du couvert et de la position de la source .....	282
VI.2.2	Influence de la vitesse du vent, de la stratification thermique, et des résistances.....	286
VI.2.3	Saturation du couvert ?.....	291
VI.3	Influence de la variabilité saisonnière et diurne sur les dépôts locaux sous différents climats.....	294
VI.3.1	Méthode .....	295
VI.3.2	Résultats - discussion .....	307
VI.4	Conclusion.....	311
VI.5	Bibliographie.....	313
<b>VII.</b>	<b>CONCLUSIONS GÉNÉRALES .....</b>	<b>317</b>
<b>A.</b>	<b>ANNEXES.....</b>	<b>319</b>
A.1	Diffusivités moléculaires et nombres adimensionnés associés .....	319
A.2	Température potentielle.....	320
A.3	Equation différentielle stochastique (EDS) de Itô .....	321
A.4	Différentiation au sens de Itô.....	322
A.5	Modélisations des fdp non gaussiennes .....	322
A.6	Origine, effets, et mesure de la stratification thermique dans la CLS .....	325
A.7	Equations bilans de la turbulence .....	327
A.7.1	Bilan du flux turbulent de scalaire.....	327
A.7.2	Non-validité des relations flux gradients.....	327
A.7.3	Bilan des variances de la vitesse du vent.....	328
A.8	Bibliographie des annexes.....	329

## LISTE DES FIGURES

- Figure I.1.** Dépôt humide d'ammonium à Rothamsted (Grande-Bretagne) depuis 1870. Les points correspondent aux mesures (Brimblecombe et Pitman, 1980 ; Goulding *et al.*, 1986 cités dans Sutton *et al.*, 1993). La courbe est obtenue par modélisation (Asman *et al.*, 1988). D'après Sutton *et al.* (1993). 2
- Figure I.2.** Schématisation du cycle simplifié de l'ammoniac, dans le contexte plus général du cycle de l'azote. (1) nitrification aérobie; (2) dénitrification; (3) lessivage (a) des anions, et (b) des cations libérés par l'apport de  $\text{NH}_4^+$  et  $\text{K}^+$ ; (4) minéralisation; (5) organisation; (6) émissions d' $\text{NH}_3$  par (a) le sol, (b) la plante; (7) émissions de  $\text{N}_2\text{O}$  et  $\text{NO}$  au cours de la nitrification; (8) émissions de  $\text{N}_2\text{O}$  et  $\text{N}_2$  pendant la dénitrification; (9) absorption racinaire d' $\text{NH}_4^+$  et d' $\text{NO}_3^-$ ; (10) fixation symbiotique et non symbiotique; (11) dépôt sec (a) à proximité directe des sources et (b) après transport dans l'atmosphère; (12) dépôt humide par "lessivage" par la pluie; (13) dépôt humide; équilibre gaz/aérosols avec (14)  $\text{NH}_4\text{NO}_3$ , (15)  $\text{NH}_4\text{Cl}$ , et (16)  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ ; (17) oxydation d' $\text{NH}_3$  par les radicaux hydroxydes  $\text{OH}^\bullet$  en  $\text{NO}_x$ ; (18) oxydation de  $\text{SO}_2$  par  $\text{O}_3$  et  $\text{H}_2\text{O}_2$ , catalysée par  $\text{NH}_3$ . 13
- Figure I.3.** Dépôts moyens annuels d'ammoniac à proximité d'un bâtiment d'élevage émettant  $4800 \text{ kg N-NH}_3 \text{ an}^{-1}$ . Les dépôts sont calculés avec le modèle LADD (Hill, 1997), et sont basés sur de statistiques annuelles de direction et vitesse de vent et de classes de stabilité estimées avec des données mesurés sur une station micrométéorologique proche du site. Adapté de Fowler *et al.* (1998). 18
- Figure I.4.** Rayons critiques autour d'une source correspondant à différents niveaux de risque de dommage, en fonction des émissions. Le niveau de risque est estimé à l'aide de la dose d'ammoniac reçue par la plante. La dose est la concentration multipliée par la durée d'exposition. Adapté de van der Eerden *et al.* (1998). 19
- Figure I.5.** Concentration foliaire en azote (% poids sec) dans des mousses en fonction de la concentration en ammoniac dans l'air à proximité de 4 bâtiments d'élevage. Repris de Pitcairn *et al.* (1998). 22
- Figure I.6.** Effets des dépôts atmosphériques d' $\text{NH}_3$  ou d' $\text{NH}_4^+$  sur le bilan de protons du sol. La production d' $\text{H}^+$  dépend de la forme de dépôt d' $\text{NH}_x$  et du devenir de l'ion  $\text{NH}_4^+$ .  $\text{M}^+$  représente les cations du sol ( $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{K}^+$ ). Le bilan correspond à la somme des contributions positives et négatives. Les chiffres entre parenthèses correspondent aux mesures de Yin *et al.* (1997) pour une plante en  $\text{C}_4$  et en  $\text{C}_3$  de gauche à droite. Le bilan correspondant, au-dessus, conduit à une acidification plus importante du sol. En revanche, la dénitrification ou la minéralisation (traits pointillés) conduisent à une acidification moins importante. Adapté de Sutton *et al.* (1993). 23
- Figure II.1.** Schéma simplifié des différentes sous-couches de la couche limite atmosphérique, avec les hauteurs caractéristiques de jour, où  $h_0$  est la hauteur caractéristique des éléments de rugosité,  $\nu$  est la viscosité cinématique de l'air, et  $u_*$  la vitesse de frottement. 32
- Figure II.2.** Profils caractéristiques de vitesse du vent  $U$ , direction du vent  $d$ , et température potentielle  $\theta$ , dans la couche limite atmosphérique, de jour par ciel dégagé, repris de Kaimal et Finnigan (1994). 33
- Figure II.3.** Evolution théorique de la hauteur  $h_0$  de la couche limite de surface.  $h_0$  est calculée à partir de l'Eqn. II.2, avec  $\delta = 10\%$ , en fonction de la vitesse de frottement, et de la latitude du lieu considéré. Le vent géostrophique est fixé à  $10 \text{ m s}^{-1}$ , mais en réalité il est lié à  $u_*$ . 34
- Figure II.4.** Spectre caractéristique de la vitesse horizontale  $[(\omega / 2\pi) E(\omega) = f S_u(f)]$  à une altitude de 100 m, en fonction de la période en heures.  $f = \omega / 2\pi$  est la fréquence, D'après Van der Hoven, 1957. 36
- Figure II.5.** Temps d'intégration ( $T_m$ ) nécessaire pour calculer la vitesse moyenne du vent horizontal en fonction de la hauteur dans un couvert de maïs, calculé à partir de l'Eqn. II.5, et des données de Wilson *et al.* (1982), en prenant comme échelle de temps lagrangienne  $T_L = 0.3 \text{ h} / u_*$  (Raupach *et al.*, 1996). L'intensité de turbulence  $\sigma_u / \bar{u}$  est de l'ordre de 1 en haut du couvert et augmente jusqu'à 4 à  $z/h = 0.2$ . 37

- Figure II.6.** Illustration de la relation entre flux turbulent et processus de diffusion. Le profil est typique d'un profil de concentration en vapeur d'eau ou température moyenne à proximité de la surface de jour. Voir dans le texte pour une explication. 39
- Figure II.7.** Profil de vitesse du vent caractéristique au-dessus d'un couvert de maïs développé, pour une stratification stable, neutre, et instable. Les profils sont calculés à partir des Eqns. II.16a et II.16b, avec  $z_0 = 0.1$  m. En conditions stables,  $u_* = 0.26$  m s<sup>-1</sup>,  $L = 10$  m. En conditions neutres,  $u_* = 0.36$  m s<sup>-1</sup>,  $L = \infty$  m. En conditions instables,  $u_* = 0.30$  m s<sup>-1</sup>,  $L = -10$  m. Ici  $Z$  est la hauteur au-dessus de la hauteur de déplacement. 43
- Figure II.8.** Vitesse de frottement  $u_*$  en fonction de la longueur de rugosité  $z_0$  pour différentes conditions de stratification thermique. La vitesse du vent à 50 m au-dessus du couvert est fixée à 15 m s<sup>-1</sup>. Les cas stables, neutres et instables correspondent respectivement à  $L = 10$  m,  $L = -1 \times 10^5$  m, et  $L = -10$  m. 44
- Figure II.9.** Variances de vitesse du vent, en fonction de  $Z/L$ . Les points correspondent aux mesures de Yee *et al.* (1995), mesurées sur prairie semi-désertique ( $z_0$  allant de 0.07 à 0.15 m), avec des arbustes épars de 0.5 à 1 m de hauteur, et un fetch supérieur à 5 km. 46
- Figure II.10.** Profils de  $\sigma_w/u_*$  dans la CLS et la Couche de mélange. Profils obtenus (en gras) à partir d'une paramétrisation de Kaimal et Finnigan (1994) dans la CLS (pointillés dans la couche de mélange), et d'une paramétrisation de Gryning *et al.* (1987) dans la couche de mélange (tirets dans la CLS). Le cas stable correspond à  $h_n/L = 5$  et le cas instable à  $z_i/L = -50$ . 49
- Figure II.11.** Spectre d'énergie typique de la vitesse horizontale du vent dans la CLS. Représentation basée sur l'expression proposée par Kaimal et Finnigan (1994; p 44). Ici,  $f$  est la fréquence cyclique (Hz),  $S_u(f)$  est la densité spectrale d'énergie de  $u$  (m<sup>2</sup> s<sup>-1</sup>). L'intégrale de  $S_u(f)$  sur tout le spectre est égal à  $\sigma_u^2$ . Le spectre d'énergie peut être divisé en trois zones, une zone de production de turbulence par le mouvement moyen (P), une zone de transfert d'énergie vers les grosses structures, ou zone inertielle (T), et une zone de dissipation par frottement visqueux (D). La représentation en  $f S_u(f)$  dans un graphique semi-log, permet de conserver les surfaces (changement de variable  $f \rightarrow \ln(f)$ ): la surface sous la courbe est égale à 1. 50
- Figure II.12.** Echelle de temps lagrangienne adimensionnée  $T_L u_* / (z-d)$  en fonction du paramètre de stabilité  $Z/L$ , estimée à partir de deux paramétrisations du Tableau II.5. Légende : K&F, Kaimal et Finnigan (1994) et W&S, Wilson *et al.* (1981). 55
- Figure II.13.** (a) Concentration de surface estimée à partir d'un modèle Gaussien avec présence de "sources miroir" symétriques par rapport au sommet de la couche limite, afin de reproduire l'effet de stratification thermique (reproduit de Csanady, 1980 ; pp. 168). La source est située à la hauteur  $h_s$ . (b) illustration qualitative des panaches en conditions instables, avec des vitesses de vent variées (reproduit de Csanady, 1980 ; pp. 207). 59
- Figure II.14.** Bilan d'énergie cinétique de la turbulence ( $\overline{e}$ , ECT) dans un couvert de blé. D'après Brunet *et al.* (1994). Les termes sont définis par :  $\varepsilon$ , dissipation d'ECT en chaleur ;  $P_s$ , production d'ECT par le mouvement moyen ;  $P_w$ , production d'ECT par traînée de pression ;  $T_T$ , Transport turbulent d'ECT ;  $T_p$ , transfert d'ECT par l'action des fluctuations de pression. 62
- Figure II.15.** Profils en fonction de la hauteur normalisée  $z/h$ , de (a)  $\bar{u}/U_h$ , (b)  $-\overline{u'w'}/u_*^2$ . Reproduit de Raupach *et al.* (1991). 64
- Figure II.16.** Profils de variances de vitesses du vent dans plusieurs couverts végétaux, (c)  $\sigma_u/u_*$ , et (d)  $\sigma_w/u_*$ . Les légendes sont les mêmes que dans la Figure II.15. Reproduit de Raupach *et al.* (1991) 66
- Figure II.17.** Profils d'échelle de longueur intégrale eulérienne  $L_u$  et  $L_w$  dans le couvert, normalisés par la hauteur du couvert  $h$ .  $L_u$  et  $L_w$  correspondent respectivement à  $A_u$  et  $A_w$  dans le texte et dans les Eqns. II.19 et II.20. Repris de Raupach *et al.* (1991). 68
- Figure II.18.** Relation entre la distance horizontale moyenne séparant deux structures cohérentes  $A_x$ , et l'échelle de cisaillement  $L_s$ . D'après Raupach *et al.* (1996). 69

- Figure II.19.** Profils de température moyenne ( $\bar{\theta}$ ), rapport de mélange en vapeur d'eau ( $\bar{r}$ ), concentration en CO<sub>2</sub> ( $\bar{c}$ ), et flux turbulents à deux niveaux ( $W m^{-2}$  pour  $\lambda_0 E$  et H), observés dans une forêt sur une période de 1 heure, à midi. D'après Denmead et Bradley (1985). 72
- Figure II.20.** Visualisation d'une rampe par filtrage du signal turbulent à l'aide de transformées en ondelettes. Données mesurées au-dessus d'un couvert de maïs (a) de jour, et (b) de nuit. Le jour une incursion d'air venant d'au-dessus s'accompagne d'une baisse de température (gradient thermique négatif), et de nuit c'est l'inverse (gradient thermique positif). On note que les signaux ne passent pas exactement par 0 au même instant, entraînant parfois des corrélations de signe inverse à la normale. Repris de Brunet et Collineau (1994). 73
- Figure II.21.** Visualisation d'une période de Balayage dans une forêt. Les traits indiquent les isothermes en dessous (pointillés) et au-dessus (trait plein) de la température moyenne, et les flèches représentent les vecteurs vitesse de l'air. De l'air froid pénètre dans le couvert, et chasse l'air chaud présent. Noter que l'axe des temps est inversé. Repris de Kaimal et Finnigan (1994). 74
- Figure II.22.** Cospectres d'énergie des flux turbulents de chaleur et de quantité de mouvement, au-dessus d'un couvert de maïs. Le pic spectral,  $f = 0.1-0.2$  Hz, correspond au temps moyen entre deux rampes 5 à 15 s. Noter la grande variabilité du signal dans les bases fréquence, et la corrélation des spectres à ces fréquences. Noter également l'inversion de signe du spectre aux fréquences élevées. D'après Brunet et Collineau (1994). 75
- Figure II.23.** Profils types de coefficients d'asymétrie  $Sk_u$  et  $Sk_w$ . Repris de Raupach *et al.* (1996). 76
- Figure II.24.** Schématisation des voies d'échanges d'ammoniac à l'échelle de la plante. 80
- Figure II.25.** Visualisation d'un écoulement d'air autour d'une feuille de peuplier fixe en soufflerie. Coupe transversale. L'écoulement externe est laminaire. D'après Grace et Wilson (1976). 82
- Figure II.26.** Résistance de couche limite de la feuille en fonction de la vitesse du vent  $u$  (courbes en gras), et fraction du temps  $f_r$  pendant lequel la vitesse du vent est inférieure à  $\bar{u}$  pour trois hauteurs (courbes indiquées par des flèches).  $f_r$  est calculé en supposant une turbulence gaussienne,  $\sigma_u / u_* = 2.4$  au-dessus du couvert, et une décroissance exponentielle de  $\sigma_u / u_*$  dans le couvert (Aylor *et al.*, 1993). La dimension caractéristique de feuille est  $d = 0.1$  m. En régime de convection libre, l'écart de température entre couvert et air est supposé de 1°C, et la température de l'air de 20°C. 88
- Figure II.27.** (a) Représentation schématique d'une coupe transversale de feuille autour d'un stomate, et des différents organes internes ayant un rôle dans les échanges gazeux entre la plante et l'atmosphère, et (b) proportion du gaz absorbé en fonction de la distance à l'entrée, pour trois polluants gazeux de solubilité dans l'eau différente : HNO<sub>3</sub>, ∞; SO<sub>2</sub>, 3559; O<sub>3</sub>, 21.9 μmol cm<sup>-3</sup>. L'ammoniac ayant une solubilité de 52789 μmol cm<sup>-3</sup> se situerait donc entre le SO<sub>2</sub> et l'HNO<sub>3</sub>. D'après Taylor *et al.* (1988). 91
- Figure II.28.** (a) Conductance stomatique pour l'ammoniac  $g_{NH_3}$  en fonction de la conductance stomatique pour la vapeur d'eau  $g_{H_2O}$  pour du colza à faible statut azoté, et (b) rapport  $g_{NH_3} / g_{H_2O}$  en fonction du stade de développement sur deux variétés d'orge. Dans le (a), l'NH<sub>3</sub> est absorbé par la plante, alors que dans le (b), il est émis et absorbé suivant la période. Une conductance stomatique plus forte pour NH<sub>3</sub> indique un flux plus important. Noter que dans le (a) la conductance est exprimée en unité de flux, et doit donc être divisée par la concentration pour obtenir la conductance en m s<sup>-1</sup>. Repris de Schjørring (1997). 92
- Figure II.29.** Schématisation de l'équilibre thermodynamique chimique dans la cavité sous stomatique. En haut la phase gazeuse, au milieu l'apoplasme (solution intercellulaire), et en bas les cellules (cytoplasme). En gras sont représentés les équilibres thermodynamiques et chimiques (voir texte), et en clair, les facteurs environnementaux influant sur chacun des équilibres. 95
- Figure II.30.** Cycles de glutamate synthase (GOGAT) et glutamine synthétase (GS). D'après Schjørring (1991). 99
- Figure II.31.** Evolution saisonnière du point de compensation stomatique pour l'ammoniac  $C_{sNH_3}$ . D'après (Husted *et al.*, 1996). 100

- Figure II.32.** Résistance cuticulaire en fonction de l'humidité relative de l'air (RH), et  $1/F_w$  pour plusieurs types de surfaces. D'après Sutton *et al.* (1995a). 102
- Figure II.33.** Représentation schématique du champ d'humidité à la surface d'une aiguille de pin (repris de Burkhardt et Eiden, 1994 ; d'une référence plus ancienne ; Meidner et Mansfield, 1968) . Distance entre stomates, 50  $\mu\text{m}$ , épaisseur de couche limite, 130  $\mu\text{m}$ , humidité relative de l'air 50%. 103
- Figure III.1.** Illustration du principe de superposition. Les particules passant sur les sources  $S_1$  et  $S_2$  sont "marquées", et déterminent une densité de probabilité de présence en aval,  $P_1$  et  $P_2$  respectivement. Le principe de superposition édicte que la densité de présence des deux sources prises ensemble est égale à la somme de  $P_1$  et  $P_2$ . En d'autres termes, les particules passant en  $S_1$  et celles passant en  $S_2$  n'interagissent pas entre elles. On voit par exemple que la dispersion de deux gaz réactifs l'un à l'autre ne vérifie pas ce principe. 123
- Figure III.2.** Profil de concentration pour une source verticale homogène  $S = \overline{U.C}$  et  $C = 1$ , avec réflexion totale en haut et en bas du domaine, dans la CLS, en conditions neutres. Comparaison de différents schémas d'intégration numérique. (a), schéma explicite,  $\Delta t = 0.025 T_L^0$  ; (b), schéma explicite,  $\Delta t = 0.025 T_L$  ; (c), schéma implicite,  $\Delta t = 0.025 T_L$  ; (d), schéma semi-implicite  $s1$ ,  $\Delta t = 0.025 T_L$  ; (e), schéma semi-implicite  $s2$ ,  $\Delta t = 0.001 T_L$ . 142
- Figure III.3.** Variation de  $h_w/h$  en fonction de  $\zeta$ , d'après les Eqns. III.51 et III.52 pour différents cas de stabilité; *Stable*,  $L = 5$  ; *Instable*,  $L = -5$  ; et *Neutre*,  $L = \infty$ . Estimations obtenues en posant  $d/h = 0.75$ , et  $z_0/h = 0.1$ . 143
- Figure III.4.** Profils normalisés d'écart-types des composantes horizontales et verticales de la vitesse du vent,  $\sigma_u/(b_u u^*)$  et  $\sigma_w/(b_w u^*)$ , dans le couvert, pour différentes valeurs de LAI. Les profils correspondent aux Eqns. III.53a,b,c. 146
- Figure III.5.** Profils normalisés de vitesse moyenne et d'écart-types des composantes horizontales et verticales de la vitesse du vent, pour différents états de stratification de l'atmosphère. *Stable*,  $L = 10$  m; *Neutre*,  $L = -10^5$  m; *Instable*,  $L = -10$  m.  $\zeta = 3$ , LAI = 3, et  $h_{wl}/h = 0.8$ . 147
- Figure III.6.** Profils normalisés de dissipation d'ECT,  $\varepsilon h/u_*^3$ , et d'échelle de temps lagrangienne de la vitesse verticale  $T_{Lw} h/u_*$ , dans et au-dessus du couvert, pour différents états de stratification. LAI = 4; *Stable*,  $L = 10$  m; *Neutre*,  $L = -10^5$  m; *Instable*,  $L = -10$  m.  $\zeta = 3$ , LAI = 3, et  $h_{wl}/h = 0.8$ . 149
- Figure III.7.** Profils de  $\varepsilon$  et  $T_{Lw}$  normalisés, obtenus à partir des équations (III.64) en prenant en compte le terme de dissipation lié au feuillage  $\varepsilon_d$ . LAI = 4; *Stable*,  $L = 10$  m; *Neutre*,  $L = -10^5$  m; *Instable*,  $L = -10$  m.  $\zeta = 3$ , LAI = 3, et  $h_{wl}/h = 0.8$ . 150
- Figure III.8.** Trois schémas de résistances pour modéliser les échanges plante-atmosphère. (a) N'autorise que du dépôt. (b) Simule les échanges bidirectionnels. (c) Autorise à la fois les échanges stomatiques bidirectionnels et le dépôt sur la surface des feuilles (cuticulaire). Les résistances  $R_b$ ,  $R_w$  et  $R_s$  sont exprimées par unité de surface de sol,  $C_c$  est le point de compensation, et  $C$  est la concentration moyenne dans l'air environnant la feuille. 152
- Figure III.9.** Résistance à l'adsorption d' $\text{NH}_3$  sur les surfaces externes de la plante  $r_w$ , d'après l'Eqn. III.75, en fonction de  $HR$ , pour trois températures de l'air : 0°C, 10°C, et 20°C. 157
- Figure III.10.** Exemple de maillage du domaine. 10 couches équidistantes sont placées dans le couvert. 15 couches d'épaisseur variable (progression géométrique) sont placées au-dessus, et 20 colonnes à progression géométrique découpent le domaine horizontalement. L'échelle n'est pas respectée sur la figure. 163
- Figure III.11.** Représentation schématique des zones sources et puits. La concentration de fond génère une source variable avec l'altitude. Le couvert végétal est une source ou un puits, et les sources volumiques et surfaciques sont des sources locales d' $\text{NH}_3$  (ventilation d'un bâtiment d'élevage, épandage de fertilisants). 164

**Figure III.12.** Illustration de la procédure d'estimation du temps moyen de parcours d'une particule dans chacune des mailles traversées au cours d'un pas de temps  $\Delta t$  entre  $P_i$  et  $P_{i+1}$ . Le temps  $\Delta t_j$  passé dans la maille du milieu est égal à  $l_j/L \times \Delta t$ , où  $l_j$  est la distance parcourue dans cette maille. En vertu du théorème de Thalès, le rapport  $l_j/L$  s'exprime par  $l_j/L = \Delta x_j / \Delta x = \Delta z_j / \Delta z$ . En utilisant cette propriété, le calcul de  $\Delta t_j$  est simplifié. 167

**Figure III.13.** Schéma de principe de l'organisation des différents modules du modèle. Le détail de la méthode est donné dans le texte. 168

**Figure IV.1.** Illustration du problème de la mesure des flux d' $\text{NH}_3$  par la méthode de dilution du  $^{15}\text{N}$  lorsque le flux est la composante de deux flux opposés  $f = f_e - f_s$  ( $f$  compté positivement lorsqu'il y a dépôt). Les flux sortant de  $^{15}\text{NH}_3$  et  $^{14}\text{NH}_3$  sont respectivement  $X f_s$  et  $(1-X) f_s$ , où  $X$  est la fraction de  $^{15}\text{N}$  dans la plante. De même les flux entrant sont respectivement  $X_a f_e$  et  $(1-X_a) f_e$ , où  $X_a$  est la fraction de  $^{15}\text{N}$  dans l'air (abondance naturelle,  $X_a = 0.3663\%$ ; Domenach, 1995). En résolvant le système d'équation obtenu, et en négligeant  $X$  ou  $X_a$  devant 1, il apparaît que la dilution isotopique du  $^{15}\text{N}$  dans la plante est représentative de  $f_e$ , et non de  $f_s$  [ $X(t) = (X_o - X_a) \exp(-f_e t / m) + X_a$ , et vaut  $X_o$  à  $t = 0$  et tend vers  $X_a$  lorsque  $t \rightarrow \infty$ ]. 177

**Figure IV.2.** Carte de la parcelle où a eu lieu l'expérimentation, topographie des alentours, et la localisation des sources d' $\text{NH}_3$  potentielles. P: Parcelle expérimentale. EB: élevage bovin. EV: Volaille pour ponte. ZP: Zone de pâturages. R: Station de recherche de l'INRA. M: mât météorologique du réseau STEFCE. Coordonnées du site 48°52' nord, 1°56' est. Echelles indiquées sur les cartes. 179

**Figure IV.3.** Schéma du dispositif expérimental au champ. ① Source d'ammoniac contrôlée, constituée d'une bouteille d'ammoniac pur sous pression, d'une pompe, et d'un tube de 200 m de longueur, percé de 200 aiguilles. ② Mesure de la vitesse moyenne du vent à 5 niveaux. ③ Mesure de la concentration moyenne avec des "tubes à diffusion" à 6 niveaux. ④ Idem, mais à 3 niveaux. ⑤ Anémomètre sonique dans le couvert. Mesure du gradient de concentration entre deux niveaux situés au-dessus du couvert, et estimations des flux de chaleur par méthode du gradient. ⑥ Mesure de la température de l'air à 5 niveaux par prises ventilées. ⑦ Deux anémomètres soniques dans et au-dessus du couvert. ⑧ Mât météo classique, et mesure des flux de chaleur dans le sol, et des températures de feuilles. 180

**Figure IV.4.** Fréquence des directions du vent pendant toute la période de l'expérimentation, telle qu'elle a été mesurée avec la girouette. Les deux segments ① et ② représentent les axes selon lesquels les mâts étaient alignés respectivement le 24/06 et après. Le Tableau IV.6 détaille ces résultats. 197

**Figure IV.5.** Précipitations, température de l'air  $T_a$ , Rayonnement global cumulé  $R_g$ , et humidité relative de l'air  $HR$ , en Juin / Juillet et Août 1997. Les flèches délimitent la période expérimentale. 197

**Figure IV.6.** Vitesse de frottement estimée avec la méthode aérodynamique simplifiée, en fonction du paramètre de stabilité  $z_m/L$ , où  $z_m$  est la hauteur moyenne de mesure. Données quart-heure entre le 01/07 et le 22/07.  $z_m/L \leq 0$  indique une situation instable, et  $z_m/L \geq 0$  une situation stable. Le nombre de points par unité de surface indique la fréquence d'occurrence. Noter notamment l'enveloppe de la courbe qui donne les valeurs limites de  $u_*$  pour un  $z_m/L$  donné. 198

**Figure IV.7.** Distribution des différences de température entre les feuilles et l'air  $T_c - T_a$  et les feuilles et le sol  $T_c - T_s$ , mesurés sur le mât météo. (a) Comparaison des distributions de  $T_c - T_a$  et  $T_c - T_s$ . (b) Répartition de la fréquence de  $T_c - T_a$  entre nuit ( $R_g \leq 10 \text{ W m}^{-2}$ ) et jour ( $R_g \geq 10 \text{ W m}^{-2}$ ). 199

**Figure IV.8.** Les différents termes du bilan d'énergie:  $R_n$ ,  $H$ ,  $G$ ,  $St$ , et le flux de chaleur latente  $\lambda E$  estimé par défaut de bilan. Deux journées de ciel relativement bien dégagé, et de nuit claire, avec du vent ( $0.4 \geq u_* \geq 0.1$ ).  $G$ ,  $H$  et  $\lambda E$  sont positifs lorsqu'ils sont dirigés vers le haut,  $R_n$  est positif lorsqu'il est dirigé vers le bas. 200

**Figure IV.9.** Distribution des résistances aérodynamique  $R_a(l \text{ m})$ , de pseudo-couche limite de couvert  $R_b$ , et stomatique  $R_s$ , telles qu'elles ont été estimées à partir des flux mesurés.  $R_s^m$  est la résistance stomatique estimée sur la même période à partir du modèle de  $R_s$  (Eqn. IV.24), avec  $p = 25 \text{ W m}^{-2}$  et  $r_{smin} = 157 \text{ s m}^{-1}$ . 201

**Figure IV.10.** (a) Résistance stomatique estimée par inversion du bilan d'énergie (points), et modélisée avec le

- modèle de l'Eqn. IV.24 et les paramètres avec  $p = 25 \text{ W m}^{-2}$  et  $r_{smi} = 157 \text{ s m}^{-1}$ , au cours des deux même journées que sur la Figure IV.8. (b) Comparaison entre valeurs estimées avec le pomètre et par inversion du bilan d'énergie, sauf le 24/07 où le modèle de l'Eqn. IV.24 est utilisé dans la comparaison. 202
- Figure IV.11.** Flux et concentration d' $\text{NH}_3$  mesurés lors de la série  $S_1$ , le 24/06, avec le denuder à flux continu, à la hauteur  $z_m = 0.10 \text{ m}$  (au-dessus de  $d$ ). La densité de source était de  $1514 \mu\text{g m}^{-1} \text{ s}^{-1}$  (Tableau IV.3). 203
- Figure IV.12.** Flux et concentration d' $\text{NH}_3$  mesurés lors des séries  $S_2$  et  $S_3$  le 08/07, avec le denuder à flux continu. À la hauteur  $z_m = 0.55 \text{ m}$  (au-dessus de  $d$ ). La densité de source était de  $1493 \mu\text{g m}^{-1} \text{ s}^{-1}$  pour la série  $S_2$ , et  $829 \mu\text{g m}^{-1} \text{ s}^{-1}$  pour  $S_3$  (Tableau IV.3). L'intensité de la source a été changée à 12h30. 204
- Figure IV.13.** Flux et concentration d' $\text{NH}_3$  mesurés lors des séries  $S_7$  et  $S_8$ , le 17/07, avec le denuder à flux continu. À la hauteur  $z_m = 0.70 \text{ m}$  (au-dessus de  $d$ ). Les densités de source étaient de  $1362 \mu\text{g m}^{-1} \text{ s}^{-1}$  et  $1235 \mu\text{g m}^{-1} \text{ s}^{-1}$  (Tableau IV.3). 204
- Figure IV.14.** Profils de vitesse moyenne du vent dans le couvert, normalisés par la vitesse de frottement,  $u_*$ , mesurée sur le mât MM. (a) Mât bilan de masse à 12 m en aval de la source. (b) Mât micrométéorologique à 162 m en aval de la source. 205
- Figure IV.15.** Profils de vitesse moyenne du vent dans le couvert, normalisés par la vitesse du vent à la hauteur du couvert  $u(h)$ . (a) Mât bilan de masse à 12 m en aval de la source. (b) Mât micrométéorologique à 162 m en aval de la source. 206
- Figure IV.16.** (a) Profils de température moyenne du vent dans le couvert, normalisés par la température moyenne à la hauteur du couvert  $T(h)$ . (b) Hauteur du maximum de température dans le couvert en fonction du rayonnement net. 207
- Figure IV.17.** Distribution 1D des trois composantes de la vitesse du vent (a) dans le couvert (sonique 1) et (b) au-dessus (sonique 3). Distribution calculée sur  $600 \times 60 \times 4$  données avec correction de verticalité le 03/07 entre 9h et 13h. Noter que les axes sont différents sur les Figures (a) et (b). 208
- Figure IV.18.** Spectre de puissance des composantes  $u$ ,  $v$ ,  $w$  de la vitesse du vent sur chaque sonique. Le sonique 3 est à 2.5 m, tandis que les deux autres sont à 0.5 m, au-dessus du sol. (a) le 24/06 à 9h30 et 10h30, sur un couvert de 1.0 m de hauteur,  $u_* = 0.37 \text{ m s}^{-1}$ ,  $L = -50 \text{ m}$ . (b) le 30/07 entre 9h00 et 12h00, sur un couvert de 2.06 m de hauteur,  $u_* = 0.22 \text{ m s}^{-1}$ ,  $L = -22 \text{ m}$ .  $U$  est la vitesse moyenne sur le sonique n°3. Noter l'erreur de repliement de bande qui engendre une remontée du spectre aux hautes fréquences. 209
- Figure IV.19.** Variation du rapport  $\sigma_u / u_*$  en fonction du paramètre de stabilité  $z_m / L$ . Données quart horaires entre le 05/07 et le 24/07, mesurés avec l'anémomètre sonique. 210
- Figure IV.20.** Profils verticaux de concentration moyenne mesurés lors des séries  $S_1$  à  $S_{10}$ . Les barres d'erreur représentent les incertitudes calculées comme indiqué dans le texte, de l'ordre de 5.5%. 212
- Figure IV.21.** Concentration moyennes du mât MM, divisée par le débit de source  $Q_{src}$  en fonction de la direction moyenne du vent sur 15 min. La direction du milieu de la source est matérialisée par le droite (+17°). 214
- Figure IV.22.** Concentration en  $\text{NH}_3$  en fonction de la distance en aval de la source, corrigée de la direction du vent, et normalisée par la hauteur du couvert, pour les séries  $S_1$  à  $S_{10}$ . Les trois hauteurs de mesure correspondent aux hauteurs des petits mâts de Ferm (4 sur la Figure IV.3). 216
- Figure IV.23.** Profil vertical de concentration adimensionnée  $C / C_*$  en fonction de la hauteur adimensionnée sur le mât BM. (a) Adimensionnement utilisant le débit de source  $S_{src}$ . (b) Adimensionnement utilisant le débit de source estimé sur le mât bilan de masse  $S_{BM}$ . Les barres d'erreur ont été omises par souci de clarté. 217
- Figure IV.24.** Profils verticaux de concentration adimensionnée en fonction de la hauteur adimensionnée sur les mâts situés à (a) 37 m, et (b) 162 m en aval de la source.  $C_{hg}$  est la concentration de fond. Les adimensionnements utilisent le débit de source estimé sur le mât bilan de masse  $S_{BM}$ . 218

- Figure IV.25.** Concentration moyenne dans le couvert, adimensionnée par  $S_{source}$ , en fonction de la distance à la source corrigée de la direction du vent et adimensionnée par la hauteur du couvert  $h$ . (a) Représentation log-log. L'intervalle de confiance à 68.3% est représenté par les traits en pointillés. (b) Echelle normale. La fonction puissance obtenue par régression linéaire sur les coordonnées log-log est représentée en pointillée. La gamme d'incertitude sur les paramètres de cette fonction est donnée entre crochets. 219
- Figure IV.26.** Profil de concentration en  $CO_2$  normalisée par  $C_*$ , à deux distances en aval de la source, pour une source située à  $h_s / h = 1$ . Données tirées de Leclerc *et al.* (1988). 222
- Figure IV.27.** Comparaison des gradients horizontaux de concentration normalisée en aval d'une source.  $S_1$ - $S_{10}$ : Mesures de la Figure IV.25. **DH**: concentration en  $SF_6$  mesurées autour d'une source point, sur prairie aride,  $z_0 = 0.03$ , conditions stables (Doran et Horst, 1985). **FO**: concentration moyenne annuelle en  $NH_3$  mesurés autour d'une batterie de volaille dans un couvert forestier (Fowler *et al.*, 1998). **SJ**: concentration en  $NH_3$  moyenne sur 6 semaines, mesurée en aval d'un bâtiment d'élevage sur couvert cultivé (Sommer et Jensen, 1991). Pour les deux bâtiments d'élevages le terme source  $S$  a été estimé comme l'émission moyenne divisée par la dimension latérale de la source (20 m). 223
- Figure IV.28.** Valeur du paramètre  $\Gamma$  en fonction de l'apport d'azote en équivalent  $kg N ha^{-1}$  sur des pieds de maïs en pots sous serre. La quantité d'azote équivalente a été estimée en calculant la quantité d'azote total apporté par plante, et en multipliant cette valeur par la densité de plantes à l'hectare dans la parcelle expérimentale (75000). Résultats tirés de Loubet *et al.* (1999c). 227
- Figure IV.29.** Densité de probabilité de la quantité déposée  $F_{10-150}$  pour les séries (a)  $S_2$  et (b)  $S_7$ . En multipliant la densité de probabilité par le support de la distribution, on obtient la probabilité. On note que les deux distributions sont non gaussienne, avec une plus forte densité dans les valeurs négatives que positives. 231
- Figure IV.30.** Relation entre fraction d' $NH_3$  déposé entre 10 et 150 m en aval de la source, et flux vertical mesuré à 150 m en aval de la source. 231
- Figure V.1.** Comparaison des concentrations à 1.5 m au-dessus d'une prairie intensive, mesurés (points) et simulés (traits), pour les séries R1 à R8. Les variables et paramètres d'entrée du modèle sont repris dans le Tableau V.1. Attention, les unités sur l'axe des ordonnées sont variables. 243
- Figure V.2.** Comparaison des concentrations à 1.5 m au-dessus d'une prairie intensive, mesurés (points) et simulés (traits), pour les séries R9, R10, R11 et R13. Les variables et paramètres d'entrée du modèle sont repris dans le Tableau V.1. Attention, les unités sur l'axe des ordonnées sont variables. 244
- Figure V.3.** Comparaison des concentrations mesurées et simulées, à 1.5 m de hauteur, pour les 12 séries. Le trait plein est la fonction puissance  $y = 1.25 x^{0.9}$  obtenue par régression log-log. Les traits pointillés correspondent à l'écart-type, qui est d'environ 50% pour  $1 \mu g NH_3 m^{-3}$ , 40% pour  $10 \mu g NH_3 m^{-3}$ , 50% pour  $73 \mu g NH_3 m^{-3}$ , et 90% pour  $1000 \mu g NH_3 m^{-3}$ . 246
- Figure V.4.** Comparaison des concentrations à 0.8 m (carrés) et 1.6 m (losanges) de hauteurs, mesurées et simulées, pour les 12 séries de *Bretagne98* (Tableau V.2). 248
- Figure V.5.** Comparaison des concentrations mesurées et simulées, à 0.8 et 1.6 m de hauteur, pour les 12 séries. Le trait plein est la fonction puissance  $y = 2.4 x^{0.85}$ , obtenu par régression log-log. Les traits pointillés correspondent à l'écart-type de la régression, qui est d'environ 30% pour  $1 \mu g NH_3 m^{-3}$ , 24% pour  $10 \mu g NH_3 m^{-3}$ , 22% pour  $100 \mu g NH_3 m^{-3}$ , et 30% pour  $1000 \mu g NH_3 m^{-3}$ . 249
- Figure V.6.** Profils de vitesse moyenne du vent mesurés sur les mâts BM et MM, et profils paramétrés, pour les séries  $S_3$  et  $S_6$  (voir détail dans le texte). On voit clairement que la vitesse dans le couvert, sur le mât BM, est inférieure à celle sur le mât MM, ce qui engendre une survitesse au-dessus ( $S_6$ ). 252
- Figure V.7.** Profils de concentration au mât BM, mesurés et simulés lors des séries  $S_1$  et  $S_2$ . Les directions moyennes du vent étaient respectivement de 5 et 29°, par rapport à l'axe des mâts, et les fluctuations de direction de vent étaient respectivement de 21 et 45°. 253
- Figure V.8.** Profils de concentration au mât BM, mesurés et simulés lors des séries  $S_3$  et  $S_5$ . Les directions

- moyennes du vent étaient respectivement de 31 et 18°, par rapport à l'axe des mâts, et les fluctuations de direction de vent étaient respectivement de 39 et 112°. 254
- Figure V.9.** Profils de concentration au mât BM, mesurés et simulés lors des séries S<sub>6</sub> et S<sub>7</sub>. Les directions moyennes du vent étaient respectivement de -10 et -47°, par rapport à l'axe des mâts. Les fluctuations de direction du vent étaient de 129 et 87° respectivement. 255
- Figure V.10.** Profils de concentration au mât BM, mesurés et simulés lors des séries S<sub>8</sub> et S<sub>10</sub>. Les directions moyennes du vent étaient respectivement de -47 et +34°, par rapport à l'axe des mâts, et les fluctuations de direction du vent étaient respectivement de 118 et 93° 256
- Figure V.11.** Profils de concentration au mât situé à 37 m de la source, mesurés et simulés lors des séries S<sub>1</sub> et S<sub>2</sub>. 256
- Figure V.12.** Profils de concentration au mât situé à 37 m de la source, mesurés et simulés lors des séries S<sub>6</sub>, S<sub>7</sub>, S<sub>8</sub> et S<sub>10</sub>. 257
- Figure V.13.** Profils de concentration au mât situé à 162 m de la source, mesurés et simulés lors des séries S<sub>1</sub> et S<sub>2</sub>. 257
- Figure V.14.** Profils de concentration au mât situé à 162 m de la source, mesurés et simulés lors des séries S<sub>6</sub>, S<sub>7</sub>, S<sub>8</sub> et S<sub>10</sub>. 258
- Figure V.15.** Comparaison des concentrations mesurées et simulées pour l'ensemble des 8 séries, et pour les trois mâts situés à 12 m, 37 m, et 162 m, que l'on distingue partiellement à travers les trois « paquets » de points. Le trait plein est la fonction puissance  $y = 6.4 x^{0.53}$ , obtenue par régression log-log. Les traits pointillés correspondent à l'écart-type de la régression, qui est d'environ 35% pour 1 µg NH<sub>3</sub> m<sup>-3</sup>, 31% pour 10 µg NH<sub>3</sub> m<sup>-3</sup>, 27% pour 100 µg NH<sub>3</sub> m<sup>-3</sup>, et 25% pour 1000 µg NH<sub>3</sub> m<sup>-3</sup>. 259
- Figure V.16.** Comparaison des profils horizontaux de concentration moyenne dans le couvert, mesurés et simulés pour les séries S<sub>1</sub> à S<sub>10</sub>. Les barres d'erreur horizontales correspondent aux variations standard de la distance en aval de la source et indiquent donc la variabilité de la direction du vent. 260
- Figure V.17.** Comparaison des modèles 1D et 2D de Thomson (1987). Les deux graphes correspondent respectivement à la concentration à 12 et 37 m en aval de la source pour la série S<sub>3</sub>. (2D), modèle avec  $\sigma_u$  et  $\sigma_w$ , et (1D) modèle avec  $\sigma_w$  uniquement. Les résultats de la série S<sub>6</sub> sont qualitativement équivalents, mais les différences entre modèles sont moins marquées. 264
- Figure V.18.** Illustration du déplacement "fluctuant" moyen d'une particule fluide dans un modèle 1D et 2D dans la CLS. Pour obtenir le déplacement total il faut ajouter  $\overline{u}(z) \Delta t(z)$ , où  $\Delta t$  est le pas de temps. Afin de satisfaire la conservation de la quantité de mouvement ( $\overline{u'w'} = -u_*'^2$ ), dans le modèle 2D, en moyenne,  $w'$  et  $u'$  sont de signe opposé. 265
- Figure V.19.** Influence du pas de temps  $\Delta t$  sur la concentration à 12 et 37 m en aval de la source pour deux séries de mesures, S<sub>3</sub> et S<sub>6</sub>. Les graphes du haut correspondent à des profils à 12 m de la source, et ceux du bas aux profils à 37 m. Dans la légende, Ref correspond à  $\Delta t / T_{Lw} = 0.3$ , et Dt à  $\Delta t / T_{Lw} = 0.03$ . 266
- Figure V.20.** Influence de  $z_0$  et  $d$  sur la concentration à 12 m en aval de la source pour les séries S<sub>3</sub> et S<sub>6</sub>. Les courbes en pointillés correspondent à  $z_0 = 0.1 h$ , et  $d = 0.7 h$ , avec  $h = 1.34$  et  $1.6$  respectivement pour les séries S<sub>3</sub> et S<sub>6</sub>. Les courbes de référence correspondent à  $z_0 = 0.05$  m et  $d = 1.08$  m, et  $z_0 = 0.07$  m et  $d = 1.10$  m respectivement pour les séries S<sub>3</sub> et S<sub>6</sub>. 268
- Figure V.21.** Profils de vitesse moyenne du vent correspondant aux résultats de la Figure V.20. La même légende est utilisée. Pour la série S<sub>3</sub>, le profil modifié est différent de la référence uniquement au-dessus du couvert, tandis que pour la série S<sub>6</sub>, il est également différent dans le couvert, à cause d'une variation de  $d$ . 268
- Figure V.22.** Influence de  $b_w$  sur la concentration à 12 et 37 m en aval de la source pour la série S<sub>3</sub>. Les résultats sont comparables pour la série S<sub>6</sub>. Le coefficient  $b_w$  est défini par  $\sigma_w = b_w u_*$  au-dessus du couvert. Dans la

- légende, Sw- correspond à  $b_w = 0.8$ , et Sw+ à  $b_w = 1.8$ , la valeur usuelle étant  $b_w = 1.25$ . 269
- Figure V.23.** Influence du paramètre de structure lagrangien  $C_0$  sur la concentration à 12 m et 37 m en aval de la source pour la série S<sub>3</sub>. On obtient des résultats comparables pour la série S<sub>6</sub>. Dans la légende, Co correspond à  $C_0 = 1.5$ , soit deux fois moins que la sa valeur de référence. 270
- Figure V.24.** Influence de la prise en compte du terme  $\varepsilon_d$  dans le couvert, sur la concentration à 12 m en aval de la source pour les séries S<sub>3</sub> et S<sub>6</sub>. L'effet est plus important quand la source est dans le couvert (S<sub>3</sub>). A 37 m de la source, l'effet est quasi nul. Dans la légende EpsD signifie  $\varepsilon_d$ . 271
- Figure V.25.** Influence (a) du pas de temps  $\Delta t$ , (b) de  $\sigma_w$ , (c) de  $C_0$  et  $\varepsilon_d(z)$  et (d) de  $\zeta$ , sur l'absorption dans le couvert à 12 m en aval de la source pour la série S<sub>3</sub>. Légende : Dt =  $\Delta t$ , bw =  $\sigma_w / u_*$ , Co =  $C_0$ , Epsd =  $\varepsilon_d$ , et Xsi =  $\zeta$ . Dans la référence  $\zeta = 5$  (Tableau V.3). 272
- Figure V.26.** Influence de la distribution de surface foliaire sur les profils verticaux d'absorption en aval de la source pour la série S<sub>3</sub>. Le LAI est de 3.0, et la hauteur du maximum de surface foliaire  $h_m = 0.6 h$ , sauf si spécifié dans la légende. Légende : Sad =  $\sigma_a / h$  où  $\sigma_a$  est l'écart-type de la distribution de surface de feuille dans le couvert définie par l'Eqn. III.84.  $h_m = 0.3$  correspond à  $h_m = 0.3 h$ . Les profils de surface foliaires sont présentés dans la Figure V.27. 273
- Figure V.27.** Profils de densités de surface foliaire utilisés pour simuler les résultats de la Figure V.26. 274
- Figure V.28.** Influence de la paramétrisation de la résistance stomatique  $r_s$ , sur les dépôts. Légende : Ref,  $r_{smin} = 225$ ; Rs x 2,  $r_{smin} = 500$ , et Rs / 2,  $r_{smin} = 112$ . 274
- Figure V.29.** (a) Profils de résistance de couche limite de feuille,  $r_b$ , calculés à partir de différentes formulations, et (b) effets de ces paramétrisations sur les dépôts à 12 m (série S3). Légende : F&R, paramétrisation de Finnigan et Raupach (1987); L&T, paramétrisation usuelle (Landsberg et Thom, 1971); Modèle, paramétrisation utilisée dans le modèle. 275
- Figure VI.1.** Schéma de principe montrant la position des sources lignes au niveau du sol et à 3 m. 283
- Figure VI.2.** Concentration moyenne dans le couvert, dépôt sec local et dépôt cumulé sur 300 m en aval d'une source ligne (a) au-dessus du couvert et (b) dans le couvert, au niveau du sol. Les conditions de la simulation sont données dans le texte. 284
- Figure VI.3.** (a) Concentration en NH<sub>3</sub> dans le couvert, et (b) dépôts en fonction de la distance à la source pour la situation de référence. Voir texte ci-dessus pour le détail des variables d'entrée. 287
- Figure VI.4.** Effet de la vitesse de frottement  $u_*$  sur (a) la concentration en NH<sub>3</sub> dans le couvert, et (b) la fraction cumulée d'ammoniac déposé en fonction de la distance à la source. Voir texte ci-dessus pour les détails des variables d'entrée. 288
- Figure VI.5.** Effet de la stratification thermique, exprimée à travers  $L$ , sur (a) la concentration en NH<sub>3</sub> dans le couvert, et (b) la fraction cumulée d'ammoniac déposé en fonction de la distance à la source. Voir texte ci-dessus pour les détails des variables d'entrée. 289
- Figure VI.6.** Effet d'une modification de la résistance stomatique sur (a) la concentration en NH<sub>3</sub> dans le couvert, et (b) la fraction d'NH<sub>3</sub> déposée en fonction de la distance à la source. Voir le texte ci-dessus pour les détails des variables d'entrée. 291
- Figure VI.7.** Evolution annuelle de la surface foliaire (LAI) du maïs et de la forêt de chêne à Avignon. Le LAI résiduel du chêne correspond à la surface des branches et du tronc, qui participent à l'adsorption d'NH<sub>3</sub>. 296
- Figure VI.8.** Evolution journalière du rayonnement global moyen (a) à Avignon et (b) à Rennes en 1998. Légende : H, hiver ; P, printemps ; E, été ; A, automne. 298
- Figure VI.9.** Evolution journalière de la température de l'air (a) à Avignon et (b) à Rennes en 1998. Légende :

## LISTE DES FIGURES

- H, hiver ; P, printemps ; E, été ; A, automne. Les saisons sont définies par les périodes entre équinoxes et solstices. 298
- Figure VI.10.** Evolution journalière de l'humidité relative de l'air (a) à Avignon et (b) à Rennes en 1998. Légende : H, hiver ; P, printemps ; E, été ; A, automne. 299
- Figure VI.11.** Evolution journalière de la vitesse moyenne du vent (a) à Avignon et (b) à Rennes en 1998. Légende : H, hiver ; P, printemps ; E, été ; A, automne. 299
- Figure VI.12.** Evolution journalière de la vitesse de frottement  $u_*$ , calculée à l'aide du modèle de bilan d'énergie pour un couvert de forêt, (a) à Avignon et (b) à Rennes en 1998. Légende : H, hiver ; P, printemps ; E, été ; A, automne. 301
- Figure VI.13.** Evolution journalière du paramètre de stabilité  $z/L$  avec  $z = 1$ , calculé à l'aide du modèle de bilan d'énergie pour un couvert de forêt, (a) à Avignon et (b) à Rennes en 1998. Légende : H, hiver ; P, printemps ; E, été ; A, automne. On voit clairement les conditions instables de jour ( $z/L$  négatif), et stables de nuit (valeurs positives). 301
- Figure VI.14.** Evolution journalière de la différence entre la température du couvert  $T_c$ , calculé à partir du modèle de bilan d'énergie pour un couvert de maïs, et la température de l'air  $T_a$ , (a) à Avignon et (b) à Rennes en 1998. Légende : H, hiver ; P, printemps ; E, été ; A, automne. 302
- Figure VI.15.** Evolution journalière de la résistance stomatique ( $R_s$ ) du maïs (a) à Avignon et (b) à Rennes en 1998. Légende : H, hiver ; P, printemps ; E, été ; A, automne. 303
- Figure VI.16.** Evolution journalière de  $R_w$  pour le maïs (a) à Avignon et (b) à Rennes en 1998. Légende : H, hiver ; P, printemps ; E, été ; A, automne. 303
- Figure VI.17.** Evolution journalière de  $R_w$  avec prise en compte des précipitations (a) à Avignon et (b) à Rennes en 1998. Légende : H, hiver ; P, printemps ; E, été ; A, automne. 304
- Figure VI.18.** Evolution journalière du point de compensation stomatique pour la forêt,  $C_p$ . Moyennes saisonnières (a) à Avignon et (b) à Rennes en 1998. Ici  $\Gamma$  est égal à 300. Légende : P, printemps ; E, été ; A, automne. En hiver, il n'y a pas de point de compensation puisqu'il n'y a plus de feuilles. 304
- Figure VI.19.** Evolution annuelle de la fraction d' $\text{NH}_3$  déposée à 400 m en aval de la source, sur forêt de chêne à Rennes. Les estimations sur les différentes périodes ont été réalisées à partir des valeurs médianes entre 21h et 6h (Nuit), 6h et 12h (Matinée) et 12h et 21h (Après-midi). 308
- Figure VI.20.** Comparaison des dépôts secs sur forêt de chêne à Rennes et Avignon (a) au printemps et (b) en été. Aucun stress hydrique n'est pris en compte dans ces simulations 309
- Figure VI.21.** Comparaison des dépôts secs sur maïs à Rennes et Avignon (a) au printemps et (b) en été. 310

## LISTE DES TABLEAUX

- Tableau I.1.** Ordre de grandeurs des émissions globales des différents composés azotés vers l'atmosphère et, à titre de comparaison, des composés soufrés : protoxyde d'azote ( $N_2O$ ), oxydes d'azote ( $NO_x$ ), ammoniac ( $NH_3$ ), et composés soufrés ( $SO_2$  et DMS). 6
- Tableau I.2.** Exemple d'émissions d'ammoniac liée à l'activité anthropique, à l'échelle globale. Références : A - Schlesinger et Hartley (1992), B - Dentener et Crutzen (1994), et C - Bouwman *et al.* (1997). 7
- Tableau I.3.** Exemple d'émissions d'ammoniac d'origine naturelle : A, Schlesinger et Hartley (1992) ; B, Dentener et Crutzen (1994) ; C, Bouwman *et al.* (1997). 8
- Tableau I.4.** Bilan des échanges d' $NH_3$  au Royaume-Uni sur la période 1994-1997, comparé au bilan des oxydes d'azote et des composés soufrés qui sont deux polluants principalement issus de l'activité humaine, et participant avec  $NH_3$  à l'acidification des écosystèmes. 17
- Tableau II.1.** Ecart types des composantes de la vitesse du vent  $\sigma_u$ ,  $\sigma_v$ , et  $\sigma_w$  dans la couche de surface et dans la couche de mélange. Les mesures ont été réalisées au laboratoire, au-dessus d'un couvert végétal, ou dans la couche limite de mélange en condition de neutralité thermique (sauf indication contraire). 45
- Tableau II.2.** Expression des profils verticaux de  $\sigma_u$ ,  $\sigma_v$ , et  $\sigma_w$  dans différentes couches de l'atmosphère, et dans différentes conditions de stratification thermique. Noter que  $\sigma_u$  et  $\sigma_v$  ne vérifient pas la théorie de similitude de Monin et Obukhov dans la couche limite de surface, c'est pourquoi ils ne s'expriment pas uniquement en fonction de  $Z/L$  et  $u_*$ . 48
- Tableau II.3.** Expressions de  $b_w$  et  $b_z$ , trouvées dans la littérature, en conditions neutres, ainsi que la constante de Von Kármán  $k$  que l'on obtiendrait à partir de la relation  $k = b_w b_z$ . Résultats adaptés de Sawford (1985). 53
- Tableau II.4.** Constante de structure lagrangienne  $C_0$  estimée à partir de l'Eqn. II.28, en reprenant les valeurs de  $b_w$  et  $b_z$  du Tableau II.3 pour les auteurs en commun. Voir Du (1997) pour une discussion détaillée. 54
- Tableau II.5.** Expressions de  $T_{Lw}$  dans la couche limite de surface en fonction du paramètre de stabilité  $Z/L$ , pour des conditions modérément stables ou instables ( $-2 \leq Z/L \leq 1$ ). 55
- Tableau II.6.** Expressions donnant  $T_{Lu}$  et  $T_{Lw}$  au-dessus de la couche de surface, dans la couche de convection mixte, ou dans la couche limite stable. Ici  $f_c$  est le paramètre de Coriolis. 56
- Tableau II.7.** Expressions de  $\sigma_{u,v,w}$  à la base et au sommet de la canopée, pour différents types de couverts. Les données de Baldocchi (1997), proviennent de Raupach (1988) pour la "forêt générique", d'Amiro (1990) pour la forêt boréale, et de Baldocchi et Meyers (1988) pour la forêt tempérée. 66
- Tableau II.8.** Formulation des constantes  $c_\varepsilon$  et  $l$ , et de la fonction  $f_{ed}$  définissant les termes de dissipation de l'énergie cinétique de la turbulence, selon différents auteurs.  $\Delta s$  est un élément de volume, et  $U$  est le module de la vitesse de l'air. 71
- Tableau II.9.** Coefficients d'asymétrie  $Sk_u$  et  $Sk_w$ , et coefficients d'aplatissement  $Ku_u$  et  $Ku_w$  mesurés dans les différents écoulements, ainsi que ceux des distributions gaussienne et de Gumbel (voir par exemple Aylor *et al.*, 1993). 77
- Tableau II.10.** Rapport de la résistance de couche limite de feuille  $r_{b,i}$  pour différents gaz-traces sur celle pour la vapeur d'eau  $r_{b,v}$ , à partir des relations obtenues en écoulement laminaire ou turbulent sur plaque plane, en convection forcée. Les rapports restent approximativement constants pour des températures et pressions variables. Voir texte ci-dessus. 84

- Tableau II.11.** Nombres de Reynolds critiques  $Re_c$  mesurés sur différentes feuilles ou modèles de feuille. 86
- Tableau II.12.** Récapitulatif des expressions de la résistance de couche limite de feuille, pour différents régimes, obtenus à partir des relations adimensionnées (voir texte). Les valeurs typiques correspondent à  $\Delta t = 1^\circ\text{C}$ ,  $T_a = 20^\circ\text{C}$ ,  $HR = 70\%$ ,  $U = 0.3 \text{ m s}^{-1}$  et  $d = 0.03 \text{ m}$ . 89
- Tableau II.13.** Exemple de résistances stomatiques minimales  $r_{smin}$  pour différents couverts. Données reportées dans <sup>1</sup>Baldocchi *et al.* (1987), <sup>2</sup>Saugier et Katerji (1991), <sup>3</sup>Denmead (1977), <sup>4</sup>Uchijima (1976), et <sup>5</sup>Allen et Lemon (1977). 94
- Tableau II.14.** Point de compensation stomatique mesuré sur des feuilles, des plantes individuelles, ou des couverts végétaux par différentes techniques pour différents types de couvert. Lorsqu'il est disponible, le pH et la concentration en  $\text{NH}_4^+$  de l'apoplasme est également donné.  $\Gamma$  est le rapport  $[\text{NH}_4^+] / [\text{H}^+]$ . 97
- Tableau II.15.** Résistance à l'adsorption pour différents types de couverts, et à différentes échelles.  $R_d$  est la résistance cuticulaire du modèle dynamique de Fléchar *et al.* (1999),  $I$  est l'activité ionique, HR est l'humidité relative, et VPD est le déficit de pression de vapeur d'eau. 105
- Tableau III.1.** Résistance de couche limite de feuille pour l'ammoniac  $r_{d,\text{NH}_3}$  ( $20^\circ\text{C}$ ) en  $\text{s m}^{-1}$ , en fonction des différents régimes d'écoulement sur la feuille.  $d$  est taille caractéristique des feuilles (largeur), en m,  $U$  est la vitesse moyenne du vent en  $\text{m s}^{-1}$ ,  $T_a$  et  $T_s$  sont les températures de l'air et de la surface de la feuille, en K,  $p_a$  est la pression atmosphérique en kPa,  $e_{sat}(T)$  est la pression de vapeur saturante en kPa, HR est l'humidité relative (0-1). Les valeurs critiques de  $Gr$  et  $Re$  ont été reprises de Jacobs *et al.* (1994a). 155
- Tableau III.2.** Estimation des vitesses de vent critiques  $u_{cl}$ ,  $u_{cf}$  et  $u_{cb}$ , tels qu'ils sont définis dans le texte ci-dessus, pour différentes valeurs de  $\Delta T$  dans des conditions de jour ( $T_a = 20^\circ\text{C}$  et  $HR_a = 50\%$ ) et de nuit humide ( $T_a = 5^\circ\text{C}$  et  $HR_a = 90\%$ ). Ici la dimension caractéristique des feuilles  $d$  est  $0.05 \text{ m}$ . 156
- Tableau III.3.** Liste des paramètres de résistance stomatique pour différentes espèces, d'après Baldocchi *et al.* (1987). La liste des publications desquelles sont tirés ces estimations sont données dans Baldocchi *et al.* (1987). 158
- Tableau III.4.** Constantes d'équilibre  $K$ , et enthalpies  $\Delta H^0$  des réactions de dissociation et de vaporisation pour l'ammoniac.  $I$  est la force ionique de l'apoplasme (typiquement entre 0 et  $40 \text{ mM}$ ). 160
- Tableau IV.1.** Dates, jours, heures de mise en route et d'arrêt de la source, et durée des huit séries de mesures pour lesquelles toutes les données sont disponibles. 181
- Tableau IV.2.** Hauteurs de mesure des différents mâts, exprimées en hauteur au-dessus du sol. Deux hauteurs séparées d'un tiret indiquent deux niveaux de mesure.  $U$ , HR et  $T_a$  sont respectivement la vitesse du vent, l'humidité relative et la température de l'air. 181
- Tableau IV.3.** Débits corrigés de la densité de l'ammoniac à la température de l'air et la pression de sortie du manomètre, et intensité équivalente de la source par mètre linéaire. Le détail du calcul de l'incertitude sur la mesure est indiqué dans le texte. 183
- Tableau IV.4.** Ecart relatif de concentration entre les deux analyseurs. Cette estimation de l'incertitude de mesure ne tient pas compte de l'efficacité de captation du denuder qui peut varier. 188
- Tableau IV.5.** Contamination des tubes à diffusion au cours de leur stockage, estimée à partir des concentrations en  $\text{NH}_4^+$  mesurées dans 2 tubes non exposés. A titre de comparaison, la concentration minimale trouvée dans les tubes exposés est de  $21 \mu\text{g NH}_4^+ \text{ kg}^{-1}$ , et elle était le plus souvent supérieure à  $100 \mu\text{g NH}_4^+ \text{ kg}^{-1}$ , ce qui correspond à  $2 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$  dans l'air. 191
- Tableau IV.6.** Direction moyenne du vent par rapport à l'axe des mâts durant chaque série de mesure, et distance maximale en aval de la source. 196
- Tableau IV.7.** Caractéristiques des distributions de vitesse du vent mesurées à (1)  $z = 0.5 \text{ m}$  et  $x = 25 \text{ m}$ , (2)

$z = 0.5$  m et  $x = 150$  m, et (3)  $z = 2.5$  m et  $x = 150$  m, à trois dates. La hauteur du couvert ainsi que la longueur de Monin et Obukhov sont également donnés. Les vitesses de frottement utilisées sont  $u_* = 0.37$  m s<sup>-1</sup> (24/06),  $u_* = 0.29$  m s<sup>-1</sup> (03/07),  $u_* = 0.22$  m s<sup>-1</sup> (30/07). 208

**Tableau IV.8.** Comparaison entre débits de source mesurés sur le dispositif d'émission  $S_{src}$  et estimés sur le mât bilan de masse  $S_{BM}$ . L'estimation du flux passant au-dessus du mât BM est faite par extrapolation d'une fonction exponentielle à partir des deux points les plus hauts du profil de flux (cf. IV.2.5.5).  $F_{BM}$  est le flux horizontal pour une hauteur inférieure à 5 m (sur le mât bilan de masse). L'incertitude sur  $S_{BM}$  est comprise entre 41 et 83%. 213

**Tableau IV.9.** Hauteur de mesure, du couvert, et de la source ; débit de la source estimée par différentes méthodes, direction moyenne du vent et son écart-type, et surface foliaire par unité de surface du sol. 219

**Tableau IV.10.** Caractéristiques turbulentes moyennes : vitesse de frottement  $u_*$ , hauteur de déplacement  $d$ , longueur de rugosité  $z_0$ , longueur de Monin et Obukhov  $L$ . Termes du bilan d'énergie : Rayonnement net  $R_n$ , flux de chaleur dans le sol  $G$  (compté positivement vers le haut), flux de chaleur sensible  $H$ , et latente  $\lambda E$ . 220

**Tableau IV.11.** Température du couvert  $T_c$ , de la surface du sol  $T_s$ , et de l'air à 1 m au-dessus du couvert  $T_a$ , humidité relative de l'air  $HR$ , déficit de pression de vapeur  $DPV$ , rayonnement photosynthétiquement actif au-dessus ( $PAR_o$ ) et dans le couvert ( $PAR_c$ ). 220

**Tableau IV.12.** Résistances aux échanges de gaz dans et au-dessus du couvert pour la vapeur d'eau : résistance atmosphérique à 1 m  $R_a(1\text{ m})$ , résistance d'excès du couvert  $R_b$ , résistance totale du couvert  $R_c$ , résistance stomatique du couvert  $R_s$ . La résistance stomatique modélisée par l'Eqn. IV.24 est également donnée  $R_s$  (modèle), ainsi que la résistance stomatique par unité de surface foliaire  $r_s$ . Médiane  $\pm$  écart-type. 220

**Tableau IV.13.** Paramètre  $a$  de la loi en puissance  $x^a$  selon différents modèles théoriques et observations, pour une source point et une source ligne au niveau du sol. Les paramètres des courbes de la Figure IV.3 sont comparés. 224

**Tableau IV.14.** Estimation de  $C_s$  et  $R_w$  au cours de chaque série de mesure.  $C_s$  est estimé sur la base de valeurs de  $\Gamma$  comprises entre 1000 et 10000.  $R_w$  est estimé en utilisant la formulation de Sutton *et al.* (1995b):  $R_w = 2 \exp((100 - HR) / 12)$ . Médiane  $\pm$  écart-types. 228

**Tableau IV.15.** Dépôt sec d' $\text{NH}_3$  entre 10 et 150 m de la source, estimé à partir de l'Eqn. IV.32, par une méthode de Monte-Carlo (voir texte pour les détails). Une valeur négative indique un dépôt, et une valeur positive une émission. La moyenne, la médiane et l'écart-type de l'estimation sont donnés. On donne aussi les probabilités qu'il y ait dépôt, ou émission. Le pourcentage d' $\text{NH}_3$  émis qui est déposé entre 10 et 150 m est estimé comme le rapport de  $F_{10-150}$  sur le débit de source. 230

**Tableau V.1.** Variables d'entrée du modèle, utilisées pour simuler les 14 séries de validation de *Burrington Moor*. Le coefficient de variation du débit linéique de source (CV) est donné entre parenthèses. Données mesurées par Sutton *et al.* (1998) et Milford *et al.* (1997). 242

**Tableau V.2.** Variables d'entrée du modèle utilisées pour simuler les 12 séries de validation de *Bretagne98*. Une estimation de l'erreur sur le débit de source est donné entre parenthèse (voir texte). Données mesurées par Cellier *et al.* (1999). 247

**Tableau V.3.** Variables d'entrée du modèle pour les huit séries de validation. Le changement de rugosité n'est pas pris en compte. 252

**Tableau V.4.** Sensibilité du modèle aux différents paramètres. La gamme de variation est donnée pour chaque paramètre. L'effet maximal sur la concentration et sur le dépôt à 12 m est aussi donné, ainsi que le sens de variation lorsque le paramètre considéré augmente. Les doubles flèches indiquent que les deux sens de variation sont possibles. L'effet sur les dépôts cumulés à 40 m est également donné en % de variation par rapport à la référence. Les dépôts cumulés sur 40 m s'élèvent respectivement à 1.2% et 0.8% des quantités émises pour les séries  $S_3$  et  $S_6$ . 276

## LISTE DES TABLEAUX

---

- Tableau VI.1.** Estimation du taux d'absorption et de métabolisation maximum. Les concentrations maximales dans l'air, au-delà desquelles il y aurait saturation, sont également données. Estimation basée sur les résultats de Grundmann *et al.* (1993) sur des pousses de maïs d'un mois. 293
- Tableau VI.2.** Paramétrisation des couverts de maïs et de la forêt de chêne utilisé dans le modèle de bilan d'énergie et le modèle de dispersion. Pour la Forêt, il a été nécessaire d'introduire une paramétrisation de  $d$  et  $z_0$  tenant compte de la présence de feuilles ou non. La paramétrisation de  $r_{smin}$  et  $\beta$  est tirée du Tableau III.4. 297
- Tableau VI.3.** Précipitations annuelles et saisonnières en mm, et fréquence de précipitation moyenne en heure/heure à Avignon et Rennes. 300
- Tableau VI.4.** Paramètres et variables d'entrée du modèle pour chacune des 30 séries de simulation. Pour chaque saison, trois périodes sont définies correspondant à des situations d'échange contrastées. Les valeurs données ici sont les médianes calculées à partir des valeurs horaires pour chaque saison. 306
- Tableau A.1.** Diffusivité moléculaire de quelques gaz-traçes présentant un intérêt du point de vue de l'environnement. La masse moléculaire et le diamètre moléculaire sont également reportés. Les différentes colonnes correspondent à différentes sources. <sup>1</sup> Obtenu avec la formule de Hirschfelder ; <sup>2,3</sup> d'après Sutton (1993). 319
- Tableau A.2.** Quelques propriétés physiques de l'air et de la vapeur d'eau. D'après Monteith et Unsworth (1990). 319

## SYMBOLES

Les valeurs en gras indiquent des vecteurs ou des matrices

Symboles	Signification	Unité
$\bar{u}\bar{w}$	Corrélation entre $u$ et $w$	$\text{m}^2 \text{s}^{-2}$
$\bar{u}, \bar{w}$	Composantes horizontale et verticale de la vitesse moyenne de l'air	$\text{m s}^{-1}$
$A(t)$	accélération aléatoire due au collision moléculaires	$\text{m s}^{-2}$
$a(x, u, t)$	Vecteur de dérive du modèle lagrangien stochastique	-
$a(z)$	Densité de surface foliaire	$\text{m}^2 \text{m}^{-3}$
$b(x, u, t)$	Matrice de diffusion du modèle lagrangien stochastique	-
$b_1$	Constante définie dans la CLS par $b_1 = \sigma_w / u_*$ ( $\sim 1.2-1.4$ )	-
$b_2$	Constante définie dans la CLS par $b_2 = (T_{Lw} \sigma_w) / (z - d)$ ( $\sim 0.3-0.5$ )	-
$c, c(x), c(x, t)$	Concentration massique	$\text{kg m}^{-3}$
$C_0$	Constante "universelle" de structure lagrangienne	-
$C_p$	Capacité calorifique de l'air à pression constante	$\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}$
$C^{ref}$	Vecteur concentration de référence	$\mu\text{g NH}_3 \text{m}^{-3}$
$C_s, C_{sNH_3}$	Point de compensation stomatique pour l'ammoniac	$\mu\text{g NH}_3 \text{m}^{-3}$
$c^v(x)$	Concentration moyenne dans le volume $V_c$	$\text{kg m}^{-3}$
$d$	Hauteur de déplacement	$\text{m}$
$D_B$	Coefficient de diffusion Brownienne	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$
$d_i(V_c x_o), d_i(V_c V_n)$	Distance moyenne parcourue par une particule entrant dans le volume $V_c$ , issu de $x_o$ ou $V_n$ .	$\text{m}$
$D, D_{ij}$	Matrice de dispersion	-
$D_T$	Diffusivité thermique de l'air ( $= \kappa_T / \rho C_p$ )	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$
$D_v$	Diffusivité de la vapeur d'eau dans l'air	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$
$e$	Energie cinétique de la turbulence	$\text{m}^2 \text{s}^{-2}$
$E$	Flux de chaleur latente	$\text{W m}^{-2}$
$f$	Fréquence cyclique	$\text{Hz}$
$F, F_z, F_z(x)$	Flux vectoriel, et flux vertical	$\text{kg m}^{-2} \text{s}^{-1}$
$f_c$	Paramètre de Coriolis	-
$F_c$	Flux vertical du composé $c$ à la surface	$\text{kg m}^{-2} \text{s}^{-1}$
$F_h$	Flux vertical en haut de la CLN	$\text{kg m}^{-2} \text{s}^{-1}$
$F_o$	Flux vertical à la surface	$\text{kg m}^{-2} \text{s}^{-1}$
$F_{zi}$	Flux vertical en haut de la CCM	$\text{kg m}^{-2} \text{s}^{-1}$
$g, g$	Accélération de la pesanteur vectorielle et scalaire	$\text{m s}^{-2}$

SYMBOLES

$G$	Vent géostrophique	$m\ s^{-1}$
$H$	Flux vertical de chaleur latente à la surface	$W\ m^{-2}$
$h$	Hauteur du couvert végétal	$M$
$h_s$	Hauteur de la source	$M$
$h_a$	Hauteur de la couche limite atmosphérique, qui est égale à $z_i$ ou $h_n$	$m$
$h_n$	Hauteur de couche limite nocturne (CLN)	$m$
$k$	Constante de von Kármán ( $= 0.4$ )	-
$k_B$	Constant de Boltzman $k_B = 1.380662\ 10^{-23}$	$J\ K^{-1}$
$K_d$	Constante acido-basique de l'ammoniac	-
$K_H$	Constante de Henry	-
$K_h, K_c$	Diffusivités turbulentes verticales pour la chaleur et les scalaires passifs	$m^2\ s^{-2}$
$K_z, K_y, K_x$	Diffusivité turbulente verticale, latérale et horizontale des scalaires	$m^2\ s^{-1}$
$L$	Longueur de Monin et Obukhov	$m$
$l(z)$	Longueur de mélange dans le couvert	$m$
$l_*$	Echelle de longueur de la sous couche de rugosité identique à $z_*$	$m$
$L_s$	Echelle de cisaillement ( $\sim 0.5\ h_c$ )	$m$
$n$	Fréquence adimensionnée ( $= f z / \bar{u}$ )	-
$N$	Nombre de sources	-
$p$	pression hydrostatique de l'air	$Pa$
$p(x, t/x_o, t_o)$	fdp de transition de $(x_o, t_o)$ à $(x, t)$	$M^{-3}$
$P(x, u, t)$	fdp dans l'espace des phases de l'ensemble des particules marquées	$Kg\ s^3\ m^{-6}$
$p(x, u, t/x_o, t_o)$	fdp de transition dans l'espace des phases	$s^3\ m^{-6}$
$p(x, u, t/x_o, u_o, t_o)$	fdp de transition dans l'espace des phases	$s^6\ m^{-9}$
$p(z), p_c$	Pression atmosphérique à la hauteur $z$ et à proximité de la surface	$Pa$
$P_o(x, u, t)$	fdp dans l'espace des phases de l'ensemble des particules	$kg\ s^3\ m^{-6}$
$q(x, u, t)$	Matrice densité de source	$kg\ m^{-3}$
$Q_{NH3}$	Débit d' $NH_3$ de la source dans Davron97	$l\ min^{-1}$
$Q_{air}$	Débit d'air	$l\ min^{-1}$
$r$	Rayon de la particule brownienne	$m$
$r_b$	Résistance de couche limite de feuille par unité de surface de feuille	$s\ m^{-1}$
$r_s$	Résistance stomatique par unité de surface de feuille	$s\ m^{-1}$
$r_w$	Résistance de dépôt sur les cuticules par unité de surface de feuille	$s\ m^{-1}$
$R$	Probabilité de réflexion d'une particule à la surface du sol	-
$R_a(z)$	Résistance aérodynamique qui dépend de $z$	$s\ m^{-1}$
$R_b$	Résistance de pseudo-couche limite du couvert	$s\ m^{-1}$
$R_{dep}$	Résistance au dépôt du couvert	$s\ m^{-1}$
$R_{em}$	Résistance à l'émission du couvert	$s\ m^{-1}$
$R_s$	Résistance stomatique du couvert	$s\ m^{-1}$

$R_w$	Résistance "cuticulaire" du couvert	$s\ m^{-1}$
$R_{uu}(\tau)$	Fonction d'autocorrélation de la vitesse $u$	-
$R_{xy}$	Fonction d'intercorrélacion entre $x$ et $y$	-
$S, S(x_o), S(x_o, t_o)$	Densité de source	$kg\ m^{-3}\ s^{-1}$
$s_m$	Concentration moyenne d'un composé dans une colonne d'air	$kg\ m^{-3}$
$S_n$	Densité d'une source de volume $V_n$	$kg\ m^{-3}\ s^{-1}$
$S_u, S_v, S_w$	Densités spectrales d'énergie des composantes $u, v$ et $w$ de la vitesse du vent	$m^2\ s^{-1}$
$t$	Temps	s
$T(V_c/x_o), T(V_c/V_n)$	Temps moyen passé par une particule issu de $x_o$ ou $V_n$ , dans le volume $V_c$	s
$T, \bar{T}$	Température et température moyenne de l'air	°C
$T_L$	Echelle de temps intégrale lagrangienne	s
$T_L, T_{Lw}, T_{Lu}$	Echelles de temps lagrangienne associées aux vitesses $w$ et $u$	s
$u', w'$	Composantes horizontale et verticale des fluctuations de la vitesse de l'air au sens de Reynolds	$m\ s^{-1}$
$u(t), u_o(t)$	Vitesse vectorielle lagrangienne d'une particule fluide $u = (u_i)_{i=1..3}$	$m\ s^{-1}$
$u_a(x, t)$	Vitesse vectorielle eulérienne, $u_a = (u_{ai})_{i=1..3}$	$m\ s^{-1}$
$U_h$	Vitesse moyenne du vent au sommet du couvert	$m\ s^{-1}$
$V_c$	Volume d'une maille ou d'un capteur	$m^3$
$V_d(z)$	Vitesse de dépôt d'un gaz-trace $V_d(z) = F(z) / c(z)$	$m\ s^{-1}$
$V_n$	Volume d'une source de densité $S_n$	$m^3$
$w$	Vitesse verticale lagrangienne $w = u_3$	$m\ s^{-1}$
$w_o$	Echelle de vitesse convective, caractéristique de la CCM	$m\ s^{-1}$
$w_a$	Vitesse verticale eulérienne $w_a = u_{a3}$	$m\ s^{-1}$
$W_L$	Vitesse verticale eulérienne	$m\ s^{-1}$
$x(t), x_o(t)$	Position lagrangienne d'une particule fluide $x = (x_i)_{i=1..3}$	m
$z_o$	Hauteur de la sous couche de rugosité	m
$z_0$	Longueur de rugosité dynamique de la surface	m
$z_i$	Hauteur de couche de convection mixte (CCM)	m
$z, \Delta z$	Respectivement hauteur au-dessus du sol, et intervalle de hauteur	m
$u_*$	Vitesse de frottement	$m\ s^{-1}$

## SYMBOLES GRECS

Symboles	Signification	Unité
$\alpha$	Constante de proportionnalité dans le profil de $\sigma_{u,w}/u_*$ dans le couvert	-
$\alpha_i$	Valeur du rapport $\sigma_{wi}/u_*$ au-dessus du couvert	-
$\mu$	Viscosité dynamique de l'air, $\mu = 1.87 \cdot 10^{-5}$	$\text{kg m}^{-1} \text{s}^{-1}$
$\Lambda_u, \Lambda_w$	Echelle de longueur intégrale eulérienne de $u$ et $w$	m
$\Lambda_x$	Distance horizontale moyenne séparant deux structures cohérentes	m
$\Psi_m((z-d)/L)$	Terme de correction du profil de vitesse pour tenir compte de la stratification en densité de l'atmosphère	-
$\beta$	Coefficient tel que $\beta^{-1}$ soit un temps de relaxation visqueux	$\text{s}^{-1}$
$\chi$	Concentration	$\text{kg m}^{-3}$
$\varepsilon$	Taux de dissipation de l'énergie cinétique de la turbulence	$\text{m}^2 \text{s}^{-3}$
$\phi_m, \phi_n, \phi_c, \phi_w, \phi_\theta$	Gradients adimensionnés de quantité de mouvement, température, concentration, $\sigma_n$ et $\varepsilon$	-
$\gamma_{h,c,m}$	Fonction de correction dans la sous couche de rugosité	-
$\eta$	Echelle de longueur de Kolmogorov ( $= (\nu^3 / \varepsilon)^{1/4}$ )	m
$\kappa_T$	Conductivité thermique de l'air ( $= \rho C_p D_T$ )	$\text{W K}^{-1} \text{m}^{-1}$
$\lambda$	Chaleur latente de vaporisation de l'eau à pression constante	$\text{J kg}^{-1}$
$\lambda_d$	Densité de rugosité	$\text{m}^2 \text{m}^{-2}$
$\lambda E$	Flux de chaleur latente	$\text{W m}^{-2}$
$\nu$	Viscosité cinématique de l'air	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$
$\theta$	Température potentielle de l'air	$^\circ\text{C}$
$\rho, \rho_o$	Densité de l'air, et densité de l'air près de la surface	$\text{kg m}^{-3}$
$\rho_w, \rho_w$	Fonctions d'autocorrélation des vitesses eulériennes	-
$\rho_{uL}, \rho_{wL}$	Fonctions d'autocorrélation des vitesses lagrangiennes	-
$\sigma_u, \sigma_v, \sigma_w$	Ecart-types des composantes de la vitesse du vent	$\text{m s}^{-1}$
$\tau_0$	Flux de quantité de mouvement à la surface ( $= \rho \bar{u}\bar{w}$ )	$\text{kg m}^{-1} \text{s}^{-2}$
$\tau_k$	Echelle de temps de Kolmogorov ( $= (\nu / \varepsilon)^{1/2}$ )	s
$\tau_u, \tau_w$	Echelle intégrale de temps Eulérienne	s
$\omega$	Paramètre de la sous couche de rugosité utilisé dans la définition de $\gamma_m$	-
$\zeta$	Coefficient d'extinction du profil de vitesse de vent dans le couvert	-

## NOMBRES ADIMENSIONNES

Symboles	Signification	Unité
$Gr$	Nombre de Grashof	-
$h_+$	Nombre de Reynolds de rugosité	-
$Nu$	Nombre de Nusselt	-
$P_r$	Nombre de Prandtl	-
$Re$	Nombre de Reynolds	-
$Sc$	Nombre de Schmidt	-
$Sh$	Nombre de Sherwood	-

## OPERATEURS

Symboles	Signification	Unité
$E\{x\}$	Espérance de $x$	-
$R_{xy}$	Fonction d'intercorrélation entre $x$ et $y$	-
$\langle f(x,t) \rangle$	Moyenne d'ensemble de $f$ au point $(x,t)$	-
$\bar{x}$	Moyenne d'ensemble de $x$ à l'instant $t$	-
$R_{uu}(\tau)$	Fonction d'autocorrélation de la vitesse $u$	-

Certains symboles qui ne sont utilisés que succinctement dans le texte ne sont pas définis ici.

**AVERTISSEMENT**

Le document étant volumineux, chaque chapitre est présenté de façon relativement indépendante, avec un résumé avant l'introduction et la bibliographie en fin de chapitre.

## RESUME

L'ammoniac atmosphérique ( $\text{NH}_3$ ) est émis en majeure partie par l'agriculture. Etant très soluble, il se dépose rapidement sur la végétation par absorption foliaire et dépôt sur les surfaces (dépôt cuticulaire). Ces dépôts constituent une source de pollution importante pour les écosystèmes dits sensibles.

Afin d'étudier la variabilité des dépôts secs d'ammoniac à proximité des sources agricoles, en réponse aux conditions climatiques et au type d'écosystème, un modèle mécaniste de dispersion et de dépôt d' $\text{NH}_3$  a été développé. Il repose sur le couplage d'un modèle de dispersion de gaz-trace, de type marche aléatoire, et d'un modèle d'échange à l'échelle foliaire prenant en compte les voies stomatique et cuticulaire, et incluant le point de compensation stomatique.

Le modèle a été validé à partir de données expérimentales mesurées sur un couvert de maïs et de deux autres jeux de données sur prairie. Le modèle simule bien les concentrations dans le cas de la prairie mais il est biaisé dans le cas du maïs. Le biais semble provenir de l'orientation moyenne de la direction du vent et met en avant la nécessité d'utiliser un modèle en 3 dimensions pour l'étude de la dispersion à l'échelle locale.

L'application du modèle montre que les dépôts secs cumulés peuvent varier entre quelques dixièmes de % et quasiment 20% de la quantité émise à 400 m en aval d'une source ligne. Le modèle indique que les facteurs les plus influents sur le dépôt sont la hauteur de la source par rapport au couvert, la vitesse du vent et la stratification thermique, ainsi que les résistances stomatiques et cuticulaires.

Sous un climat chaud et sec, le dépôt sec local d'ammoniac emprunte prioritairement la voie stomatique, tandis que sous un climat tempéré et humide, il se fait par voie cuticulaire. Il en ressort que pour améliorer les estimations du dépôt sec local, il sera nécessaire de mieux comprendre et paramétrer le dépôt cuticulaire, et le point de compensation stomatique.

**Mots-clés :** ammoniac atmosphérique, dépôt sec, dispersion, modèle lagrangien, absorption foliaire, adsorption cuticulaire, échelle locale.

## ABSTRACT

Atmospheric ammonia ( $\text{NH}_3$ ) originates from agriculture. As a very soluble gas,  $\text{NH}_3$  is readily deposited to vegetation, through leaf uptake like any other trace-gas, and by adsorption onto plant surfaces, called cuticular uptake.  $\text{NH}_3$  deposition is now recognised as a major source of pollution to low-nitrogen, sensitive ecosystems.

In order to study the variability of short range dry deposition, in relation to microclimatic conditions and ecosystem type, a mechanistic dispersion and deposition model has been developed. It is based on the coupling of a random walk dispersion sub-model for trace-gases, with a leaf-scale  $\text{NH}_3$  exchange sub-model. The latest sub-model simulates stomatal absorption, with use of the concept of  $\text{NH}_3$  stomatal compensation point, and also accounts for cuticular uptake.

The model is validated against experimental measurements of  $\text{NH}_3$  concentration over two contrasting vegetation types ; maize and grassland. A specific experiment has been set up to obtain data over maize. It is detailed in this thesis. The model shows a good agreement with measurements over grassland, but is biased when compared to data over maize. This bias seems to be related to the wind direction not being in the axis of the measurement masts. It highlights the need for a three-dimensional model when dealing with short range dispersion.

Case-studies shows that cumulated dry deposition within 400 m of a line source can vary between a few tens of percent to up to 20% of the quantity emitted. A sensitivity analysis shows that the main factors influencing local deposition are : the difference between the source height and the canopy height; the wind speed, and the thermal stratification of the atmosphere, as well as the stomatal and cuticular resistance.

Further simulations taking into account the links between climatic conditions and canopy growth, shows that under dry and warm conditions, ammonia is mostly deposited through stomatal exchange, whereas under temperate and wet conditions,  $\text{NH}_3$  is mainly deposited onto cuticle. A better understanding of the undergoing processes in the cuticular uptake and stomatal compensation point variability, would need to be achieved, in order to decrease the uncertainty in the estimations of  $\text{NH}_3$  short-range dry deposition.

**Key-words :** Atmospheric ammonia, short range dry deposition, Lagrangian modelling, atmospheric dispersion, foliar absorption, cuticular uptake.

## I. INTRODUCTION

Le mot **ammoniac** vient du latin *ammoniacum* (XIV<sup>e</sup>), lui même emprunté au grec. Le nom vient de Amon, le dieu égyptien parce que l'on préparait autrefois l'ammoniac près de son temple en Lybie. Sa formule chimique est  $\text{NH}_3$ .

**Dépôt** vient de déposer, adaptation du latin *deponere* (XII<sup>e</sup>) d'après poser. C'est l'action de poser quelque part. Le sens que nous utilisons dans cette étude n'apparaît qu'au XVIII<sup>e</sup> siècle, où l'on parle de dépôt solide dans un liquide. Toutefois, comme nous le verrons par la suite, ce sens n'est pas adapté au cas du dépôt d'ammoniac puisqu'il s'agit d'un processus de diffusion et non de "dépôt".

**modélisation** vient du nom modèle, emprunté à l'Italien *modello*, qui vient lui même du latin *modulus*, signifiant mesure. Un modèle est ce que l'on reproduit par imitation.

### I.1 Historique

#### I.1.1 Premiers travaux sur l'ammoniac atmosphérique

L'ammoniac atmosphérique ( $\text{NH}_3$ ) intéresse les scientifiques depuis déjà longtemps. Il y a près de 200 ans que de Saussure (1804) a identifié sa présence dans l'atmosphère. Mais c'est avec le débat sur l'assimilation de l'azote par les plantes, au milieu du XIX<sup>e</sup> siècle, que l'intérêt pour l'ammoniac atmosphérique s'est réellement déclaré (Eriksson, 1952). A l'origine du débat, l'hypothèse de Liebig (1847) selon laquelle la plante absorbait l'azote, sous forme d' $\text{NH}_3$ , par voie gazeuse, comme le  $\text{CO}_2$ , mais aussi par la pluie. La démonstration du rôle essentiel du nitrate dans la nutrition azotée de la plante par Boussingault (1856) d'une part, et les premières mesures de dépôt d'ammonium ( $\text{NH}_4^+$ ) par précipitations, estimées à  $5 \text{ kg N-NH}_4^+ \text{ ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ , (Lawes et Gilbert, 1851) d'autre part, ont montré que l'hypothèse de Liebig ne tenait pas.

Par la suite de nombreuses mesures de concentration en ammonium dans les précipitations ont été faites en Europe, notamment en France à Methroy et Montsouris (1877-1900), et un peu partout dans le monde, menant à des estimations des dépôts variant de 1 à  $15 \text{ kg N-NH}_4^+ \text{ ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  avec des valeurs maximales près des grandes villes indiquant une source d'origine anthropique. Eriksson (1952) a fait une compilation de toutes les données obtenues avant 1950. La Figure I.1, reprise de Sutton *et al.* (1993), montre l'évolution des dépôts humides à Rothamsted (Grande-Bretagne).

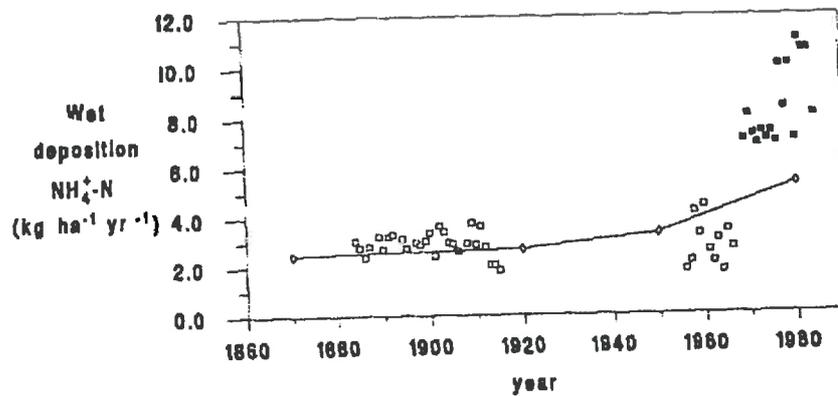


Figure I.1. Dépôt humide d'ammonium à Rothamsted (Grande-Bretagne) depuis 1870. Les points correspondent aux mesures (Brimblecombe et Pitman, 1980 ; Goulding *et al.*, 1986 cités dans Sutton *et al.*, 1993). La courbe est obtenue par modélisation (Asman *et al.*, 1988). D'après Sutton *et al.* (1993).

Le dépôt sec d' $\text{NH}_3$ , pour lequel il y a un regain d'intérêt depuis une vingtaine d'années, était déjà étudié au siècle dernier, puisque De Ville (1850) et Schlösing (1874) ont démontré, en plaçant des plantes présentant un déficit d'azote dans des chambres riches en ammoniac, qu'elles pouvaient directement absorber et métaboliser l'ammoniac présent dans l'air. A l'aide de pièges acides exposés à l'air ambiant, Bineau (1854) donne les premières estimations de dépôts sec, allant de 15 et 50  $\text{kg N-NH}_3 \text{ ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  à Caluire et Lyon. En utilisant des méthodes semblables, Heinrich (1881) à Rostock (Allemagne), Kellner *et al.* (1886) à Tokyo, mesures respectivement des dépôts de 31 et 12  $\text{kg N-NH}_3 \text{ ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ .

Plus tard, les mesures de Hall et Miller (1911) utilisant un technique semblable, mais avec une grille pour protéger le piège des insectes et poussières, ont sans doute sous-estimé les dépôts secs. Mais en réalisant des mesures à plusieurs niveaux, leurs données constituent le premier exemple de mesures de gradient de "concentration" au-dessus de la végétation. Ils mesurèrent des gradients négatifs, qui reflètent probablement des émissions, au-dessus de surfaces fertilisées, et obtinrent l'inverse sur des surfaces non fertilisées.

Les quelques mesures de concentration atmosphérique, réalisées en faisant barboter un volume d'air connu dans une solution acide, semblent indiquer qu'il existait des concentrations très élevées à l'époque. A Montsouris par exemple, Levy (1880) mesure des concentrations allant de 17 à 24  $\mu\text{g NH}_x\text{-NH}_3 \text{ m}^{-3}$ . Dans des zones éloignées des villes, comme au Pic du Midi, Müntz et Aubin (1882) mesurent des concentrations élevées ; de 6 à 25  $\mu\text{g NH}_x\text{-NH}_3 \text{ m}^{-3}$ . L'absence de contrôle de qualité de ces données ne permet toutefois pas d'en tirer des conclusions fermes.

### I.1.2 Regain d'intérêt après guerre

Après la deuxième guerre mondiale, le besoin de production agricole a entraîné un regain d'intérêt pour  $\text{NH}_3$ , mais cette fois à travers les pertes que représentent la volatilisation d' $\text{NH}_3$  pour la culture, et les gains que représenteraient les dépôts d'azote. Concernant les pertes

d'azote, les travaux d'Allison (1955) ont montré que le lessivage des nitrates et la volatilisation d'ammoniac pouvaient être importants. Ces deux voies de perte d'azote pour la culture ont stimulé et génèrent encore de nombreuses recherches sur le sujet en Europe et en Amérique (Whitehead et Raistrick, 1990).

Concernant le volet atmosphérique, l'intérêt a porté principalement sur la capacité de l'ammoniac à neutraliser les acides, et aux implications que cela a sur la chimie de l'atmosphère. Par exemple, la présence d' $\text{NH}_3$  dans l'atmosphère augmente la formation de sulfates ( $\text{SO}_4^{2-}$ ) à partir de sulfure ( $\text{SO}_2$ ) par diminution du pH dans les gouttelettes d'eau des nuages (Junge et Ryan, 1958). Un autre volet concerne le rôle des aérosols d'ammonium comme noyau de condensation, du fait de leur nature fortement hygroscopique (Eggleton et Atkins, 1972; cité dans Sutton *et al.*, 1993).

Concernant la mesure, Egnér et Eriksson (1955) ont initié le premier réseau à grande échelle de mesure de composés chimiques dans l'air et les précipitations (Réseau Européen de Chimie de l'Air, EACN en anglais), incluant notamment  $\text{NH}_x$ . Depuis de nombreux réseaux de mesure se sont mis en place comme le "Background Chemistry and Precipitation Monitoring Network" (BAPMoN) de l'Organisation Météorologique Mondiale (OMM). A l'échelle européenne, le "European program for the Monitoring and Evaluation of the long-range transport of air Pollutants" (EMEP) collecte de nombreuses données, y compris sur  $\text{NH}_x$  (Schaug *et al.*, 1987; cité dans Sutton *et al.*, 1993).

### 1.1.3 Intérêts récent pour l'environnement

C'est d'abord à travers son effet sur le cycle atmosphérique du soufre, dont l'effet écologique des dépôts est un sujet de préoccupation depuis un vingtaine d'année, que l'ammoniac a été étudié de façon croissante (Seinfeld et Pandis, 1998). Avec la diminution de plus de 50% des émissions et consécutivement des dépôts de composés soufrés, suite à une volonté politique internationale (Sulfur Protocol, UNECE, 1985), et l'augmentation importante des émissions d'ammoniac liée à l'augmentation de la production agricole, l'ammoniac est aujourd'hui considéré comme l'un des polluants atmosphérique majeurs (RGAR, 1997).

En effet, il est maintenant reconnu que les dépôts d' $\text{NH}_3$  conduisent à l'acidification, l'eutrophisation, ainsi qu'au déséquilibre nutritif des écosystèmes sensibles (Van Breemen et van Dijk 1988; Asman *et al.*, 1989, Roelofs *et al.*, 1985). Dans cette nouvelle optique, l'accent a été porté sur (i) une meilleure estimation des sources et de leurs mécanismes (Génermont et Cellier, 1997), (ii) l'étude du devenir de l'ammoniac émis dans l'atmosphère (Singles, 1996), et (iii) des processus de dépôts humides (RGAR, 1997) et de dépôts secs (Sutton *et al.*, 1993), ainsi que (iv) l'estimation de la "charge critique de l'ammoniac", qui est un indice quantifiant les effets polluants liée aux dépôts d'ammoniac (Nilsson et Grennfelt, 1988 ; cité dans Sutton *et al.*, 1993 ; Dambrine *et al.*, 1993).

Avec la récente prise de conscience des effets potentiels de l'activité anthropique sur le réchauffement global, les efforts de recherches se concentrent sur les gaz à effets de serre tels que le gaz carbonique ( $\text{CO}_2$ ), le méthane ( $\text{CH}_4$ ), le protoxyde d'azote ( $\text{N}_2\text{O}$ ) et les carbofluorocarbures (CFC) (Seinfeld et Pandis, 1998). L'ammoniac, en raison de sa faible concentration dans la troposphère (quelques ppb) n'est pas un gaz ayant un potentiel d'effet de serre. On pourrait donc craindre une diminution de l'intérêt porté à ce composé. Toutefois, il y a de bonnes raisons de penser que l'intérêt pour  $\text{NH}_x$  pourrait croître dans les années à venir pour les raisons suivantes.

Tout d'abord, l'ammoniac pourrait être inclus à plusieurs titres dans la problématique du réchauffement global ; l'augmentation des dépôts d' $\text{NH}_x$  peuvent entraîner, dans certaines conditions, l'accroissement des émissions de gaz à effets de serre comme  $\text{N}_2\text{O}$  et  $\text{CH}_4$  (Melillo *et al.*, 1989), et peuvent également avoir une influence, à travers leurs effets sur la biomasse, sur la quantité de carbone séquestrée par le couvert, bien que les résultats à ce sujet soient controversés (voir § I.5.4). Par ailleurs, les aérosols ont un effet s'opposant au réchauffement global par absorption et diffusion du rayonnement solaire incident. Cet effet pourrait être très significatif comparé à celui du  $\text{CO}_2$  (Seinfeld et Pandis, 1998). Or  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$  est l'un des aérosols ayant le plus fort pouvoir absorbant, et représente environ 50% du pouvoir absorbant total des aérosols d'origine anthropique, et 30% de tous les aérosols (Seinfeld et Pandis, 1998).

Ensuite, l'opinion publique des pays développés, est de plus en plus exigeante sur les problèmes touchant au respect de l'environnement, et l'agriculture est aujourd'hui identifiée, au même titre que l'automobile et l'industrie comme un "pollueur", notamment à travers des sujets phares tels que la pollution par les nitrates, et plus récemment la qualité des produits alimentaires (Pollution des plages par les algues ; scandale de la vache folle). Dans ce contexte, les pays producteurs en Europe (France, Pays-Bas, Grande-Bretagne) cherchent à maîtriser voire diminuer les émissions d' $\text{NH}_3$ . Afin d'évaluer l'impact de ces politiques de réduction des émissions, à l'échelle nationale ou continentale, il est nécessaire d'affiner notre compréhension sur le rôle de l'ammoniac dans le cycle global de l'azote (Erisman *et al.*, 1999).

#### ***1.1.4 Le dépôt sec dans le contexte actuel***

Ainsi, récemment l'intérêt porté à l'ammoniac s'est déplacé d'une problématique agronomique vers une problématique de pollution à l'échelle globale. Cela a amené la communauté scientifique à mesurer les dépôts secs d'ammoniac dans le but de mieux les quantifier et de développer des modèles d'échange (Sutton *et al.*, 1995a ; Flécharde *et al.*, 1998). Parallèlement, les modèles de transport atmosphérique qui ont été développés, nécessitent de bonnes estimations des sources à des échelles de quelques  $\text{km} \times \text{km}$  (Asman et Janssen, 1987; Erisman et van Pul, 1997). Par ailleurs, l'étude des effets locaux de sources intenses sur la végétation (Sommer et Jensen, 1991 ; Pitcairn *et al.*, 1998), et sur la santé des personnes (Glorennec *et*

*al.*, 1999) s'est développée ces dernières années.

L'estimation des émissions à des échelles de quelques km $\times$ km, ainsi que l'étude des impacts environnementaux de sources ponctuelles nécessitent de connaître les quantités d'ammoniac déposées près de la source, et le devenir à court terme de cet ammoniac. Ce besoin a amené les scientifiques à étudier les *dépôts secs locaux*, qui sont les dépôts secs dans la zone située à proximité directe de la source, c'est à dire quelques centaines de mètres au maximum (Sutton *et al.*, 1998). Ces études s'attachent à (1) mesurer (Milford *et al.*, 1997 ; Glorennec *et al.*, 1999) et modéliser (Asman, 1998; Hill, 1997) les gradients horizontaux de concentration en aval de sources lignes, (2) réaliser des inventaires d'émission à des échelles plus fines (Dragosits *et al.*, 1998).

La prise en compte de l'hétérogénéité spatiale des émissions et des dépôts, met en avant le rôle important de la végétation dans le contrôle des échanges d' $\text{NH}_3$  avec l'atmosphère : elle peut soit émettre soit absorber de l'ammoniac, selon son statut azoté (Sutton *et al.*, 1995b). Par ailleurs, les transitions entre couverts de hauteurs différents entraînent des effets de bords qui faussent les estimations de dépôts à grande échelle (Draaijers *et al.*, 1994). Enfin, les dépôts sur la surface des feuilles apparaissent comme une composante importante des dépôts secs (Sutton *et al.*, 1995b). Ils dépendent entre autres de la structure de la végétation, et de la présence d'autres polluants acides (Wyers et Erisman, 1998 ; Burkhardt et Eiden, 1994 ; Burkhardt *et al.*, 1999).

## I.2 Principales sources d'ammoniac atmosphérique

La présence d' $\text{NH}_3$  dans l'atmosphère terrestre, avec la concentration moyenne actuelle, est liée à la présence de vie sur terre : Lovelock et Margulis (1974) estiment que dans une atmosphère ayant les concentrations en  $\text{O}_2$  et  $\text{N}_2$  actuelle mais sans activité biologique, la concentration en  $\text{NH}_3$  serait  $10^{24}$  fois plus faible que la concentration actuelle qui se situe dans une gamme de 0.01 à 10 ppb (soit  $10^{-11}$  à  $10^{-7}$  mol mol $^{-1}$ ). Les estimations d'émissions globales vers l'atmosphère varient entre 55 et 91 Tg  $\text{NH}_3$  a $^{-1}$  (Schlesinger et Hartley, 1992; Dentener et Crutzen, 1994; Bouwman *et al.*, 1997). Comme le suggéraient les premières mesures de dépôts et de concentration d' $\text{NH}_3$  (§ I.2, Eriksson, 1952), et comme le confirment les études récentes (Bouwman *et al.*, 1997), l'ammoniac présent dans l'atmosphère est issu en majeure partie de l'activité anthropique (Tableau I.1). A l'échelle globale, 70% des émissions sont liées à la production agro-alimentaire, et 50% sont localisées en Asie, (Bouwman *et al.*, 1997).

Les autres composés azotés majeurs dans l'atmosphère sont tout d'abord le protoxyde d'azote ( $\text{N}_2\text{O}$ ), dont le pouvoir réchauffant est 300 fois supérieur au  $\text{CO}_2$  (Seinfeld et Pandis, 1998), et dont la concentration atmosphérique, d'environ 310 ppb, augmente du fait de son temps de résidence élevé, i.e.  $120 \pm 30$  ans (Seinfeld et Pandis, 1998), et de l'accroissement des émissions d'origines anthropiques (Tableau I.1). Le  $\text{N}_2\text{O}$  est très stable chimiquement, et il

ne réagit que dans la stratosphère pour donner du N<sub>2</sub> par photodissociation et du NO par oxydation, et dans le sol où il est réduit par les micro-organismes. Les émissions totales de N<sub>2</sub>O sont trois fois plus faibles que celles de NH<sub>3</sub> (Tableau I.1), et se situent en majeure partie dans les forêt tropicales humides et les océans où N<sub>2</sub>O est formé par dénitrification du nitrate.

**Tableau I.1.** Ordre de grandeurs des émissions globales des différents composés azotés vers l'atmosphère et, à titre de comparaison, des composés soufrés : protoxyde d'azote (N<sub>2</sub>O), oxydes d'azote (NO<sub>x</sub>), ammoniac(NH<sub>x</sub>), et composés soufrés (SO<sub>2</sub> et DMS).

Composé	Sources	Gamme d'estimation <sup>1</sup>	Meilleure estimation <sup>2</sup>	Auteurs
		(Tg N a <sup>-1</sup> )	(Tg N a <sup>-1</sup> )	
N <sub>2</sub> O	Naturelles <sup>a</sup>	6 - 12	9	IPCC (1995)
	Anthropiques <sup>b</sup>	4 - 8	6	
	Total	10 - 17	15	
	Total <sup>c</sup>	13 - 20	16	
NO <sub>x</sub>	Carburant fossile		24	IPCC (1995)
	Autres <sup>d</sup>		28	
	Total	35 (9) <sup>e</sup>	52 <sup>§</sup>	
Soufre	Naturelles		29	Langner et Rodhe (1991)
	Anthropiques		72	
	Total		101	
NH <sub>3</sub>	Naturelles	3 - 27 <sup>@</sup>	15 <sup>#</sup>	* Dentener et Crutzen (1994), @ Bouwman <i>et al.</i> (1997)
	Anthropiques	19 - 60 <sup>@</sup>	30 <sup>#</sup>	
	Total	40 - 70 <sup>@</sup>	45 <sup>#</sup>	

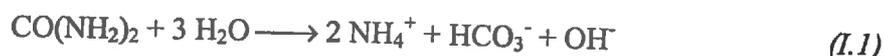
<sup>1</sup> Un Tg (Terragramme) vaut 10<sup>12</sup> g. <sup>2</sup> Pour les composés soufrés l'estimation est en Tg S a<sup>-1</sup>. <sup>a</sup> dont 1/3 provient des océans et 1/3 des forêts tropicales humides. <sup>b</sup> l'agriculture contribue pour moitié. <sup>c</sup> estimé à partir de l'accroissement de concentration atmosphérique et de l'estimation des puits. <sup>d</sup> les 2/3 proviennent des émissions par les sols, et de la combustion de biomasse, le reste provient des éclairs et de l'oxydation d'NH<sub>3</sub>. <sup>e</sup> le chiffre entre parenthèse représente les émissions d'origines naturelles.

Les NO<sub>x</sub> (NO<sub>2</sub> et NO), sont après NH<sub>x</sub> et N<sub>2</sub>O, les principaux composés azotés présents dans l'atmosphère. Ils sont principalement émis par combustion des carburant fossiles (automobile ; Tableau I.1). Leur concentration varie énormément, de 0.1 ppb dans les endroits reculés, à plusieurs centaines de ppb dans les agglomérations urbaines (Seinfeld et Pandis, 1998), car ils sont très réactifs, notamment avec l'ozone (O<sub>3</sub>) et les radicaux hydroxydes (ROH).

A titre de comparaison, les émissions de composés soufrés sont également donnés dans le Tableau I.1. Le potentiel acidifiant des NO<sub>x</sub> et de composés soufrés pour l'atmosphère, est supérieur au potentiel alcalin représenté par les émissions de NH<sub>3</sub> (Dentener et Crutzen, 1994).

### I.2.1 Répartition des émissions par "secteurs"

Dans les activités anthropiques, la principale source d'ammoniac, à l'échelle globale, est l'agriculture (Tableau I.2), et notamment l'élevage. En effet, l'ammoniac provient de la décomposition de l'urée (CO(NH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>) et de l'acide urique, présents dans les excréments animaux, en ion ammonium NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, sous l'action hydrolysante de l'enzyme uréase présente dans les *faeces* :



Cette réaction est aussi présente dans le sol où l'urée résiduelle, et d'autres composé azotés sont décomposés. En phase liquide, l'ammonium est en équilibre avec sa base conjuguée  $\text{NH}_3$ , qui est elle-même en équilibre avec  $\text{NH}_3$  en phase gazeuse. L'ensemble de ces processus conduit à la volatilisation de l'ammoniac, qui dépend essentiellement du pH de la solution et de la température (voir Chapitre II.3). Selon Buijsman *et al.* (1987), par animal, le bovin est le plus émetteur, avec  $18 \text{ kg NH}_3 \text{ animal}^{-1}$  suivi par les chevaux (9.4), les moutons (3.1), les porcs (2.8), et enfin les volailles (0.26). C'est le même processus qui explique les émissions liés à l'élevage, et ceux liés aux excréments humains (Tableau I.2).

Tableau I.2. Exemple d'émissions d'ammoniac liée à l'activité anthropique, à l'échelle globale. Références : A - Schlesinger et Hartley (1992), B - Dentener et Crutzen (1994), et C - Bouwman *et al.* (1997).

Sources anthropiques	Echelle	Estimations (Tg N a <sup>-1</sup> )		
		A	B	C
<b>Agriculture</b>	Globale			
Elevage <sup>a</sup>		32.3	22.5	21.6
Fertilisation minérale		8.5	6.4	9.0
Cultures <sup>b</sup>		-	-	3.6
<b>Autres</b>				
Combustion de biomasse <sup>c</sup>		5	2.0	5.7
Excréments humains		4	-	2.6
Combustion fossile		2.2	-	0.1
Industrie		-	-	0.2
<b>Total sources anthropiques</b>		<b>50.0</b>	<b>30.9</b>	<b>42.8</b>
<b>Part de l'agriculture</b>		<b>80%</b>	<b>96%</b>	<b>80%</b>

<sup>a</sup> dont plus de la moitié due à l'élevage bovin. <sup>b</sup> correspond aux émissions par la plante et à la décomposition des résidus de cultures. <sup>c</sup> inclut les biocarburants.

L'agriculture est donc le premier "secteur" d'émission de l'ammoniac atmosphérique, il représente entre 80 et 96% des émissions d'origine anthropiques globales selon les estimations (Tableau I.2). En Europe, la part de l'agriculture est estimée à 80% des émissions totales, et 98% des émissions anthropiques (Buijsman *et al.*, 1987). Suivant l'animal et son régime alimentaire (par exemple vache laitière ou bœuf à viande), entre 10% et 36% de l'azote contenu dans les excréments se volatilise sous forme d'ammoniac (Bouwman *et al.*, 1997).

La fertilisation minérale, qui correspond souvent à l'apport d'azote sous forme de nitrate et/ou d'ammonium, entraîne la volatilisation d'une partie de l'ammoniac pour les mêmes raisons que celles évoquées ci-dessus. Globalement, les émissions liées à l'usage des engrais minéraux représentent une partie considérable des émissions totales, entre 15 e 20% des émissions suivant les estimations. Contrairement à ce que l'on pourrait croire, ce sont les pays en voie de développement qui émettent le plus d'ammoniac issu de ce mode de fertilisation (80%; Bouwman et van der Hoek, 1997).

L'ammoniac est également émis par les écosystèmes naturels. Les émissions proviennent de la décomposition de la matière organique à la surface du sol, des émissions par les plantes,

des excréments d'animaux sauvages, et des océans (Tableau I.3). La part des émissions d'origine naturelle est d'environ 25 à 30% à l'échelle globale, mais elle est très variable dans l'espace ; elle est bien moindre dans les pays à agriculture intensive.

Tableau I.3. Exemple d'émissions d'ammoniac d'origine naturelle : A, Schlesinger et Hartley (1992) ; B, Dentener et Crutzen (1994) ; C, Bouwman *et al.* (1997).

Sources naturelles	Echelle	Estimations (Tg N a <sup>-1</sup> )		
		A	B	C
Animaux sauvages	Globale	-	2.5	0.1
Ecosystèmes non perturbés		10	5.1	2.4
Mers et Océans		13	7.0	8.2
<b>Total sources naturelles</b>		<b>23</b>	<b>14.6</b>	<b>10.7</b>
<b>Pourcentage / émissions totales</b>		<b>30%</b>	<b>30%</b>	<b>25%</b>

\* dont plus de la moitié due à l'élevage bovin. <sup>b</sup> correspond aux émissions par la plante et à la décomposition des résidus de cultures. <sup>c</sup> inclut les biocarburants.

La part la plus importante des émissions naturelles correspond aux émissions d'ammoniac par les océans (Tableau I.3). C'est aussi le terme sur lequel il existe la plus grande incertitude aujourd'hui (Bouwman *et al.*, 1997). L'émission d'ammoniac par les océans est en réalité bidirectionnel, et si la concentration en surface est supérieure à celle de l'atmosphère il y a émission, sinon il y a dépôt. Ainsi, Asman *et al.* (1994) ont montré que les zones polluées de la Mer du Nord peuvent émettre de l'ammoniac tandis que dans son ensemble cette mer est un puits pour l'ammoniac. Le sens et l'intensité des échanges entre la mer et l'atmosphère dépendent (i) de la présence d'ammonium dans les eaux de surface, qui résulte de la décomposition de la matière organique liée à l'activité du zooplancton et la présence du phytoplancton, (ii) de l'intensité du puits chimique pour NH<sub>3</sub> dans les premières couches de l'atmosphère, qui est liée à la formation d'aérosols sulfatés (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>. Le sulfate provient de l'oxydation par les radicaux OH<sup>o</sup> et NO<sub>3</sub> du diméthyl sulfide (DMS ; CH<sub>3</sub>SCH<sub>3</sub>) émis en grande quantité par les océans. L'autre puits chimique est l'oxydation d'NH<sub>3</sub> par les radicaux hydroxydes.

### I.2.2 Distribution régionale des émissions

Tout d'abord, au niveau global les émissions les plus fortes sont localisées dans les continents en voie de développement ayant une économie basée sur l'agriculture : 51% des sources terrestres se trouvent en Asie, incluant les pays de l'ancienne URSS (Bouwman *et al.*, 1997). L'Amérique latine et l'Afrique viennent ensuite avec respectivement 16 et 14%, puis l'Europe avec 9%, et enfin l'Amérique du Nord et l'Océanie avec 8 et 2%. En incluant les émissions par les océans, 56% des émissions sont localisées dans la bande située entre les latitudes 30° Sud et 30° Nord, le reste étant quasiment entièrement localisé au nord de cette bande. Ces chiffres sont essentiellement liés à la présence de pays ayant de fortes contributions comme par exemple l'Inde ou la Chine.

En Europe, si l'on exclut les pays de l'ancien bloc communiste, les principaux pays

d'élevage sont la France, l'Allemagne, la Grande-Bretagne, les Pays-Bas, la Pologne, et dans une moindre mesure, l'Italie et l'Espagne. En terme d'élevage bovin, qui possède le facteur d'émission le plus élevé, c'est la France qui possédait le plus gros cheptel en 1982, avec 24 millions de têtes, et qui a donc été le plus gros émetteur d' $\text{NH}_3$  (pour les déjections animales), avec  $570 \text{ Gg NH}_3 \text{ a}^{-1}$ , soit à peu près 14% des émissions européennes sur ce secteur qui étaient estimées à  $4200 \text{ Gg NH}_3 \text{ a}^{-1}$  (Buijsman *et al.*, 1987). Viennent ensuite l'Allemagne ( $488 \text{ Gg NH}_3 \text{ a}^{-1}$ ), la Pologne ( $317 \text{ Gg NH}_3 \text{ a}^{-1}$ ), la Grande-Bretagne ( $307 \text{ Gg NH}_3 \text{ a}^{-1}$ ), puis l'Italie ( $252 \text{ Gg NH}_3 \text{ a}^{-1}$ ), et la Roumanie ( $237 \text{ Gg NH}_3 \text{ a}^{-1}$ ).

Concernant les émissions liées à l'application d'engrais chimique, en 1982, la France était encore en tête des pays européens avec  $130 \text{ Gg NH}_3 \text{ a}^{-1}$ , soit à peu près 15% des émissions européennes. Suivent l'Italie ( $101 \text{ Gg NH}_3 \text{ a}^{-1}$ ), la Grande-Bretagne ( $90 \text{ Gg NH}_3 \text{ a}^{-1}$ ) puis la Pologne ( $80 \text{ Gg NH}_3 \text{ a}^{-1}$ ) et l'Allemagne ( $77 \text{ Gg NH}_3 \text{ a}^{-1}$ ). En prenant en compte toutes les sources anthropiques, la France est le pays le plus émetteur avec  $709 \text{ Gg NH}_3 \text{ a}^{-1}$ , soit à peu près 14% des émissions en Europe. Toutefois, en terme de densité d'émission définie comme la quantité émise que divise la surface dédiée à l'agriculture, ce sont les Pays-Bas qui sont en tête ( $6.4 \text{ t NH}_3 \text{ km}^{-2} \text{ a}^{-1}$ , où t signifie tonne) devant la Belgique ( $5.3 \text{ t NH}_3 \text{ km}^{-2} \text{ a}^{-1}$ ), la Bulgarie ( $4.7 \text{ t NH}_3 \text{ km}^{-2} \text{ a}^{-1}$ ), la Suisse ( $4.5 \text{ t NH}_3 \text{ km}^{-2} \text{ a}^{-1}$ ) puis la France ( $4.4 \text{ t NH}_3 \text{ km}^{-2} \text{ a}^{-1}$ ). Ces densités ne représentent toutefois pas toujours les densités maximales d'émissions qui dépendent du type d'activité agricole et varient entre régions. Ainsi, Buijsman *et al.* (1987) donnent une estimation moyenne de la densité d'émission pour la Grande-Bretagne de  $2.1 \text{ t NH}_3 \text{ km}^{-2} \text{ a}^{-1}$ , alors qu'il existe les régions agricoles du sud et de l'ouest de l'Angleterre où les densités d'émissions sont supérieures à  $5 \text{ t NH}_3 \text{ km}^{-2} \text{ a}^{-1}$  (Sutton *et al.*, 1995c)

### 1.2.3 Variabilité spatiale des émissions

Dans le cadre qui nous intéresse, c'est à dire le dépôt sec local, la répartition spatiale des émissions est essentielle, et donc les densités maximales d'émissions le sont. En effet, plus les sources sont fragmentées, c'est à dire plus les zones sources (élevage) et les zones cibles (écosystèmes semi-naturels) sont imbriquées et proches, plus le dépôt sec est potentiellement important (voir par exemple Asman, 1998). C'est précisément dans l'optique d'améliorer les estimations de dépôts secs que les émissions d' $\text{NH}_3$  font l'objet de cartographies de plus en plus précises. En Grande-Bretagne, une méthode d'estimation des sources avec des mailles de 5 km de côté a récemment été développée (Dragosits *et al.*, 1998). En Europe, les meilleures résolutions atteignent  $75 \times 75 \text{ Km}$  (Asman, 1992).

En accroissant la résolution d'une cartographie d'émission, l'estimation de la quantité totale émise à l'échelle d'un pays reste inchangée, puisqu'elle est basée sur les unités de production, et les quantités d'azote utilisées (Dragosits, *et al.*, 1998). En revanche, la gamme de variation des intensités d'émission entre mailles augmente considérablement. L'estimation de Dragosits *et al.* (1998) qui est réalisée par agrégation d'estimations au  $\text{km}^2$  sur des mailles

de  $5 \times 5 \text{ km}^2$  permet d'estimer un coefficient de variation intra maille qui atteint plus de 300% en Grande-Bretagne, souvent dans les zones semi-naturelles (Nord-Ouest de l'Ecosse), donc contribuant le moins au bilan global des émissions. Mais ces zones sont également les plus sensibles aux dépôts. Ainsi la variabilité intra maille serait un indicateur des zones les plus sensibles aux dépôts d' $\text{NH}_3$ . Par ailleurs, la variabilité des émissions a des implications importantes en terme de dépôts secs et donc en terme d'estimation des émissions nettes à l'échelle d'une maille de  $5 \times 5 \text{ km}^2$ .

#### ***1.2.4 Tendances passées et à venir***

En se basant sur l'évolution de la production agricole, il paraît inévitable que les émissions d' $\text{NH}_3$  aient augmenté dans le monde depuis le siècle dernier. L'estimation des concentrations atmosphériques antérieures à partir de carottes de glace (Skeffington et Wilson, 1988) montrent que la concentration atmosphérique d' $\text{NO}_3^-$  a augmenté de façon non équivoque au cours de cette période, mais que la concentration en  $\text{NH}_x$  est variable. Asman *et al.* (1988) estiment quant à eux que la concentration en  $\text{NH}_4^+$  dans les précipitation a doublé au cours de la période 1870-1980. Ces résultats sont partiellement confirmés par les mesures réalisées à Rothamsted (Figure I.1).

Ainsi, il est quasiment certain que les émissions aient augmenté depuis 1 siècle, mais les mesures de concentration disponibles ne reflètent pas forcément cette tendance. Le lien entre émissions et concentrations en  $\text{NH}_3$  n'est d'ailleurs pas aussi simple que certains l'eussent pensé ; la politique de réduction des émissions aux Pays-Bas, menée ces dix dernières années, ne s'est pas soldée par la diminution escomptée des concentrations atmosphériques, et des mécanismes complexes liés notamment à la présence d'autres polluants, ainsi que les facteurs climatiques pourraient expliquer les phénomènes observés (Erisman *et al.*, 1999). De la même manière, après l'éclatement des anciens pays du bloc communiste, la réduction massive des émissions (diminution du cheptel) estimée à 50% n'a pas entraîné la diminution escomptée des concentrations d' $\text{NH}_x$  (Horvath et Sutton, 1998).

A l'avenir, les émissions globales devraient augmenter. Selon Bouwman et van der Hoek (1997), d'ici 2025, les émissions devraient augmenter de 60% par suite d'une production animale triplée, du fait de l'accroissement de la population et de l'activité économique des pays en voie de développement (Alexandratos, 1995; à partir des données ONU 1994, cité dans Bouwman et van der Hoek, 1997). Il est probable que dans ce contexte les problèmes de pollution locale deviendront de plus en plus présents, notamment le dépôt local.

#### ***1.2.5 Facteurs d'émissions et incertitudes***

Les sources d'ammoniac sont estimées à partir des recensement de cheptels, des cartes de végétation, et de facteurs d'émissions défini pour chaque type d'animal, parfois suivant son régime alimentaire, d'autres facteurs définis pour le stockage des déjections (Bouwman *et al.*,

1997; Dragosits *et al.*, 1998). Ces facteurs d'émission sont déterminés de façon empirique, en étudiant les effets de la composition des engrais, des lisiers ou du type d'animal et de son régime alimentaire sur les pourcentages émis. Ces facteurs d'émission sont alors appliqués à l'échelle du globe sans tenir compte, si ce n'est de façon relativement grossière, de la variabilité climatique (Dentener et Crutzen, 1994; Bouwman *et al.*, 1997). Or la volatilisation de l'ammoniac, notamment lors des phases de stockage et d'épandages dépend très fortement de la température, et du vent (Génermont et Cellier, 1997), tout comme les émissions par les plantes et les océans (Sutton *et al.*, 1993; Asman *et al.*, 1994).

L'incertitude sur les estimations des sources d' $\text{NH}_3$  à l'échelle globale est de l'ordre de 25% (Bouwman *et al.*, 1997). Elle est cohérente avec la gamme des estimations de divers auteurs (Tableaux I.2 et I.3). Mais l'incertitude sur la distribution des émissions est certainement bien plus importante, du fait de l'empirisme des facteurs d'émission et de la variabilité climatique, non prise en compte. Aux Pays-Bas, malgré les nombreux travaux menés sur les émissions, le transport et le dépôt de l'ammoniac, la récente politique de réduction des émissions n'a pas eu les effets escomptés sur la concentration atmosphérique des réseaux de mesure en place, (30% d'écart), mettant en cause, entre autres choses, les méthode d'estimations des émissions (Erisman *et al.*, 1999).

L'ammoniac déposé à proximité directe d'une source, sur des distances inférieures à la taille des mailles des cartographies d'émissions ne devrait pas être pris en compte dans l'estimation des sources atmosphériques. Or cette quantité peut varier, entre 0% et 50% (Sommer et Jensen, 1991; Asman, 1998; Fowler *et al.*, 1998). L'incertitude sur les émissions liée au dépôt sec local est donc de l'ordre de grandeur de ce dernier, c'est à dire variable de 0 à 50%.

### **I.3 L'ammoniac dans le cycle de l'azote**

L'ammoniac atmosphérique, comme nous l'avons vu provient en majeure partie de l'agriculture. Une fois dans l'atmosphère, il va rapidement réagir chimiquement avec la vapeur d'eau et les espèces chimiques présentes, en même temps qu'il est transporté par les vents, à différentes distances suivant sa forme chimique, et enfin se déposer sur le sol où il participe au cycle de l'azote du sol (voir par exemple Mariotti, 1997).

#### **I.3.1 Fixation de l'azote**

L'élément azote N est un nutriment essentiel pour tous les organismes vivants. L'azote  $\text{N}_2$  présent dans l'atmosphère primordiale de la terre compose aujourd'hui 78% de la masse totale de l'atmosphère. Mais seuls quelques organismes vivants, certaines algues et bactéries sont capables de casser la liaison N-N et peuvent fixer cette forme très stable de l'azote. Les écosystèmes sont donc adaptés pour utiliser les principales formes fixées de l'azote que sont  $\text{NH}_4^+$  et  $\text{NO}_3^-$  (Figure I.2). La fixation biologique de l'azote, qui constitue environ 10% des

échanges d'azote avec l'atmosphère (Söderlund et Svensson, 1976), est la première source d'azote pour le sol. Sur les terres émergées, la fixation biologique la plus active est réalisée par des bactéries vivant en symbiose avec les légumineuse (fixation symbiotique), qui transforment  $N_2$  en une forme assimilable par la plante. La fixation par les organismes vivant à l'état libre dans le sol ne représenterait à peine que 10% de la fixation biologique totale (Ball et Ryden, 1984).

Une faible partie de l'azote est également fixé dans l'atmosphère par la combustion et les processus ionisant tels que le rayonnement cosmique et les éclairs (Seinfeld et Pandis, 1998). L'homme participe à la fixation de l'azote atmosphérique à travers plusieurs voies : la culture de légumineuse (fixation biologique), la combustion de carburant fossiles ( $NO_x$ ,  $NH_3$ ), et la fabrication d'engrais synthétisé à partir de l'azote atmosphérique. La quantité d'azote fixé de façon industrielle peut être estimé comme égale à la production globale d'engrais chimique, soit  $77 \text{ Tg N a}^{-1}$  (Bouwman *et al.*, 1997). La fixation industrielle représenterait environ la moitié de la fixation symbiotique liée à l'activité humaine ( $140 \text{ Tg N a}^{-1}$ ). Cette dernière est du même ordre de grandeur que la fixation symbiotique des écosystèmes non perturbés (Matthews, 1994). La quantité d'azote fixée excède de beaucoup les émissions d'ammoniac, mais est peu importante par rapport au quantités d'azote présents dans le sol.

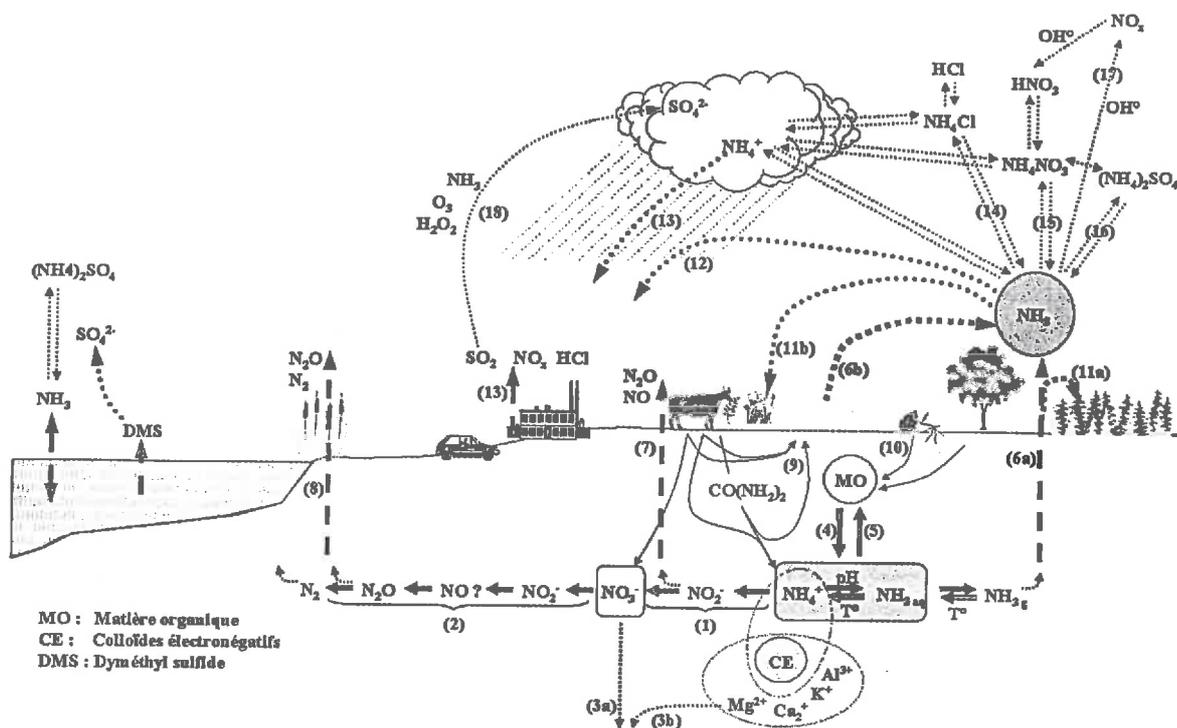


Figure I.2. Schématisation du cycle simplifié de l'ammoniac, dans le contexte plus général du cycle de l'azote. (1) nitrification aérobie; (2) dénitrification; (3) lessivage (a) des anions, et (b) des cations libérés par l'apport de  $\text{NH}_4^+$  et  $\text{K}^+$ ; (4) minéralisation; (5) organisation; (6) émissions d' $\text{NH}_3$  par (a) le sol, (b) la plante; (7) émissions de  $\text{N}_2\text{O}$  et  $\text{NO}$  au cours de la nitrification; (8) émissions de  $\text{N}_2\text{O}$  et  $\text{N}_2$  pendant la dénitrification; (9) absorption racinaire d' $\text{NH}_4^+$  et d' $\text{NO}_3^-$ ; (10) fixation symbiotique et non symbiotique; (11) dépôt sec (a) à proximité directe des sources et (b) après transport dans l'atmosphère; (12) dépôt humide par "lessivage" par la pluie; (13) dépôt humide; équilibre gaz/aérosols avec (14)  $\text{NH}_4\text{NO}_3$ , (15)  $\text{NH}_4\text{Cl}$ , et (16)  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ ; (17) oxydation d' $\text{NH}_3$  par les radicaux hydroxydes  $\text{OH}^\bullet$  en  $\text{NO}_x$ ; (18) oxydation de  $\text{SO}_2$  par  $\text{O}_3$  et  $\text{H}_2\text{O}_2$ , catalysée par  $\text{NH}_3$ .

### I.3.2 L'ammoniac dans le sol

L'ammoniac présent dans le sol l'est essentiellement suite à l'hydrolyse de l'urée et la décomposition de la matière organique, dans la réaction de minéralisation (4 sur la Figure I.2). La réaction antagoniste (5) s'appelle l'organisation. L'ammoniac dans le sol provient donc (i) des apports et dépôts d'azote organique, et minéral ( $\text{NO}_3^-$  et  $\text{NH}_4^+$ ), et (ii) de décomposition de la matière organique, qui inclut les résidus végétaux, litières, racines, et les bactéries fixatrices de l'azote (voie (10) sur la Figure I.2).

Dans le sol, l'ammoniac et l'ammonium sont en équilibre chimique (Avnimelech et Laher, 1977). Cet équilibre est essentiellement fonction du pH et de la température du sol, mais aussi de son activité ionique (Génermont et Cellier, 1997). Une partie de l'ammonium est séquestré par les colloïdes électro-négatifs présents dans l'argile et entre en compétition avec les autres cations majeurs pour l'occupation de ces sites de séquestration (Génermont et Cellier, 1997). L'ammonium est aussi absorbé par les plantes où il est nitrifié avant d'être utilisé dans son métabolisme (Chaillou et Lamaze, 1997). L'ammoniac aqueux est quant à lui

en équilibre thermodynamique avec la phase gazeuse, suivant la loi de Henry. Cet équilibre est une très forte fonction de la température (Générmont et Cellier, 1997). L'ammoniac sous forme gazeuse diffuse à travers le sol et se volatilise dans l'atmosphère (6a sur la Figure I.2).

### ***1.3.3 Nitrification***

L'ammonium est oxydé par les bactéries nitrifiantes présentes dans le sol, en milieu aérobie pour donner du nitrate (1 sur la Figure I.2) (Firestone et Davidson, 1989), qui est un composé plus facilement lessivable que  $\text{NH}_4^+$ , car étant de charge négative, il n'est pas retenu par le sol (3a). Le processus de nitrification peut entraîner la volatilisation de  $\text{N}_2\text{O}$  jusqu'à des taux  $\text{N}_2\text{O} / \text{NO}_3^-$  de 20%. Le phénomène est favorisé dans les sols humides et acides (Firestone et Davidson, 1989).  $\text{NO}$  peut également être émis.

### ***1.3.4 Dénitrification***

Le nitrate est l'élément nutritif azoté principal des plantes qui l'absorbent activement (9 sur la Figure I.2). Ce nitrate peut être dénitrifié (2 sur la Figure I.2), en condition anaérobie, par des bactéries utilisant alors l'oxygène de  $\text{NO}_3^-$  pour leur respiration (Galbally, 1989). Le stade ultime de la dénitrification est  $\text{N}_2$ , mais la réaction est souvent partielle, et conduit à l'émission de  $\text{N}_2\text{O}$ . Le rapport  $\text{N}_2\text{O} / \text{N}_2$  émis lors de la dénitrification augmente notamment lorsque la concentration de nitrates, ou d'oxygène augmente, et lorsque la disponibilité en carbone, le pH, la température du sol, et l'activité de l'enzyme nitrate réductase diminuent (Firestone et Davidson, 1989).

### ***1.3.5 Emission d'ammoniac par les plantes***

L'ammoniac présent dans le sol n'est pas la seule source d'ammoniac pour l'atmosphère. Dans les écosystèmes terrestres, l'ammoniac est également émis par les plantes (voie 6b sur la Figure I.2; Sutton *et al.*, 1995b). C'est un équilibre du même type que celui existant dans le sol entre  $\text{NH}_4^+$  et  $\text{NH}_3\text{g}$  qui régit les échanges entre l'atmosphère et les plantes (Schjørring, 1991). L'ammonium est présent dans l'apoplasme des plantes, c'est à dire la solution intercellulaire, en contact avec l'air dans les cavités sous-stomatiques (Husted et Schjørring, 1995). L'ammonium est un composé essentiel du cycle photorespiratoire de la plante, et est donc présent en quantités suffisamment importantes dans les feuilles pour être émis (Farquhar *et al.*, 1983).

### ***1.3.6 Dispersion et dépôt de l'ammoniac***

L'ammoniac une fois dans l'atmosphère va se disperser sous l'action du vent, et sa concentration va décroître rapidement autour des sources par diffusion verticale et latérale dans l'atmosphère et par transformation chimique (Sommer et Jensen, 1991). Les sources d'ammoniac étant principalement situées près de la surface, l'ammoniac sous forme gazeux est facilement absorbé par les plantes et se dépose à leur surface. Ce processus est appelé *dépôt sec* (11 sur la Figure I.2). Il peut également être "lessivé" par la pluie (12).

### ***1.3.7 Réactions chimiques dans l'atmosphère, formation d'aérosols***

L'ammoniac est la principale base présente dans l'atmosphère, elle réagit donc avec les composés gazeux et aérosols acides présents et participe aux équilibres hétérogènes gaz/aérosols ;  $\text{NH}_3/\text{HNO}_3/\text{NH}_4\text{NO}_3$ , et  $\text{NH}_3/\text{HCl}/\text{NH}_4\text{Cl}$ . L'aérosol couplé  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4 \cdot \text{NH}_4\text{NO}_3$  existe également mais probablement sous forme d'une solution (Hightower et Richardson, 1988). Dans les zones urbaines, jusqu'à 60% de la masse des particules présentes peut se présenter sous forme de l'un des ions  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{NO}_3^-$  ou  $\text{SO}_4^{2-}$  (Hightower et Richardson, 1988). L'équilibre entre  $\text{NH}_3$  et ces aérosols contenant de l'ammonium dépend de la température (Dlugi *et al.*, 1994), de l'humidité relative et des concentrations en  $\text{HNO}_3$  et  $\text{HCl}$  (Seinfeld et Pandis, 1998).

L'ammoniac peut également être oxydé en  $\text{NO}_x$  en présence de radicaux hydroxyles (17 sur la Figure I.2). L'ammoniac peut également être incorporé dans toute gouttelette d'eau, ou noyau de condensation. Dans les nuages,  $\text{NH}_3$  peut catalyser la réaction d'oxydation de  $\text{SO}_2$  par  $\text{O}_3$  ou  $\text{H}_2\text{O}_2$  en influant sur la solubilité de  $\text{SO}_2$ , et en neutralisant l'acidité produite par l'oxydation de  $\text{SO}_2$  (Behra *et al.*, 1989).

## **I.4 Dépôts d'ammoniac atmosphérique**

L'ammoniac atmosphérique se dépose suivant différentes voies. Il est habituel de regrouper ces voies en (i) *dépôts humides*, qui correspondent aux dépôts par la pluie (RGAR, 1997), et (ii) les *dépôts secs*, qui rassemblent tous les autres processus ; d'abord l'absorption de l'ammoniac par la végétation, et son dépôt à la surface des feuilles (Sutton *et al.*, 1995b), mais aussi le dépôt des aérosols par sédimentation, impaction et diffusion brownienne (Fowler *et al.*, 1991).

### ***1.4.1 Dépôts humides***

Les dépôts humides sont souvent mesurés avec des collecteurs de pluie ouverts. Ils sont donc sujet à contamination par les excréments d'oiseaux, ou par le dépôt sec qui peut être une source de pollution important si la concentration en  $\text{NH}_3$  dans l'air est élevée, et/ou si le pH des eaux de pluie est faible. Le choix entre collecteurs ouverts et conditionnés par la pluie dans les réseaux de mesure est un sujet d'actualité (RGAR, 1997; Ulrich *et al.*, 1998).

Dans nos climats tempérés, où les précipitations sont relativement bien réparties sur le territoire, les dépôts humides ne présentent pas une variabilité spatiale forte, et les bilans nationaux peuvent être établis par interpolation des mesures sur un réseau relativement peu dense (RGAR, 1997; Ulrich *et al.*, 1998).

Le relief pourrait toutefois être un facteur important de variabilité spatiale des dépôts humides par les phénomènes (i) d'augmentation des précipitations et (ii) d'enrichissement des nuages de basse altitudes, formés en haut du relief, par les nuages à haute altitude (Fowler *et al.*, 1991; RGAR, 1997). Les dépôts humides mesurés au Mont Aigoual (Cévennes) dans le

réseau RENECOFOR en France fournissent un exemple d'accroissement lié au relief (Ulrich *et al.*, 1998). Les dépôts humides de 1993 à 1996 y sont en effet bien supérieurs aux niveaux mesurés dans les régions avoisinantes, bien que les concentrations moyennes pondérées soient plus faibles.

Le réseau de mesure du Royaume-Uni, montre que les dépôts humides d' $\text{NH}_4^+$  varient d'un facteur 5 entre les zones agricoles où ils atteignent plus de  $10 \text{ kg N-NH}_4^+ \text{ ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  et le Nord de l'Ecosse où ils sont inférieurs à  $2 \text{ kg N-NH}_4^+ \text{ ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  (CLAG, 1997; RGAR, 1997). En France, les dépôts humides varient entre  $2 \text{ kg N-NH}_4^+ \text{ ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  et  $15 \text{ kg N-NH}_4^+ \text{ ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ , avec globalement des dépôts plus importants au Nord et à l'Ouest qu'au Sud, ces variations étant en général liées aux concentrations et non aux intensités de précipitations (Ulrich *et al.*, 1998).

#### ***1.4.2 Dépôts secs***

L'estimation des dépôts secs n'est pas immédiate car ils dépendent énormément de la surface à plusieurs titres : tout d'abord, les dépôts secs peuvent difficilement être mesurés directement, car l'ammoniac "déposé" est à la fois présent à la surface de la feuille et absorbé à l'intérieur de la feuille. Si la fraction déposée à l'extérieur peut raisonnablement être estimée par des mesures de pluvioléssivats, qui sont la différence entre dépôts humides au-dessus et sous un couvert (Ulrich *et al.*, 1998), la fraction absorbée est inaccessible à toute mesure directe.

Pour contourner ce problème, les dépôts secs sont estimés à partir des concentrations d' $\text{NH}_3$  mesurées, et avec l'aide de modèles d'échange foliaire (Sutton *et al.*, 1995b) ou plus simplement par la prescription d'une vitesse de dépôt (RGAR, 1997). Cette méthode est elle-même incertaine, d'une part (i) à cause de la très forte variabilité spatiale des concentrations en  $\text{NH}_3$  liée à la distribution des sources (Dragosits *et al.*, 1998; Sutton *et al.*, 1998), et d'autre part (ii) parce que la vitesse de dépôt varie en fonction du climat, et de la végétation (Sutton *et al.*; 1994; Singles *et al.*, 1998).

#### ***1.4.3 Bilans nationaux d' $\text{NH}_3$ atmosphérique***

Le Tableau I.4 donne un exemple de bilan des échanges d'ammoniac à l'échelle du Royaume-Uni (RGAR, 1997). Il montre que les dépôts d' $\text{NH}_3$  par voie sèche sont du même ordre que ceux par voie humide, contrairement au composés soufrés et aux  $\text{NO}_x$  dont la composante humide des dépôts est plus importante. Les dépôts secs d' $\text{NH}_3$  sur le territoire du Royaume-Uni représente environ 1/3 des émissions, contrairement aux  $\text{NO}_x$  et soufres pour lesquels les dépôts secs représentent moins de 10% des quantités émises. On note que 1/5 des quantités émises sont transportées à l'extérieur des frontières.

**Tableau I.4.** Bilan des échanges d' $\text{NH}_3$  au Royaume-Uni sur la période 1994-1997, comparé au bilan des oxydes d'azote et des composés soufrés qui sont deux polluants principalement issus de l'activité humaine, et participant avec  $\text{NH}_3$  à l'acidification des écosystèmes.

Composé	Emissions kt a <sup>-1</sup>	Dépôts secs kt a <sup>-1</sup>	Dépôts humides kt a <sup>-1</sup>	Bilan Kt a <sup>-1</sup>	Fraction dépôt sec %	Références
$\text{NH}_3$	290 (260 + 30)	110*	120	60	48%	RGAR, 1997
$\text{NO}_x$	840 (780 + 60)	40	110	690	16%	RGAR, 1997
Soufre	1760 (1600 + 160)	140	210	1410	40%	RGAR, 1997

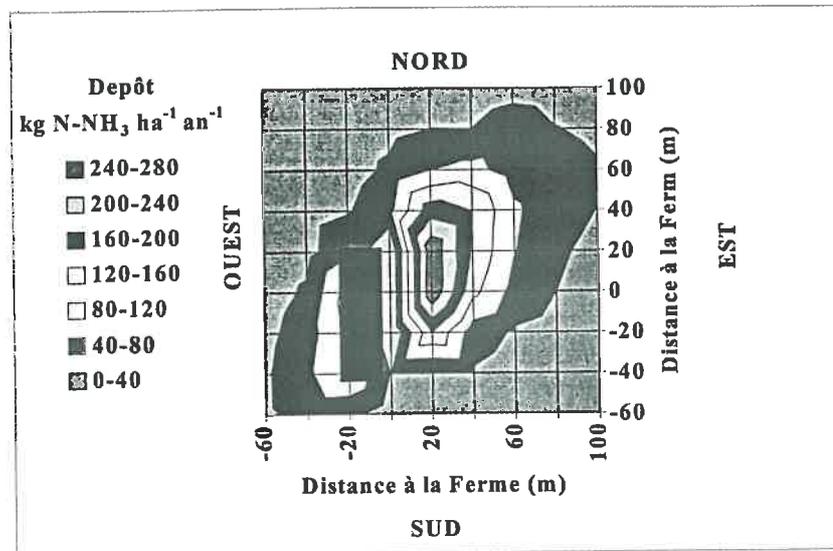
Sulfure = 40% du pouvoir acidifiant, 60% = azote... \* estimation basée sur des modèles de dépôts.

Ces bilans nous montrent combien le processus de dépôt sec est important dans le cycle de l'ammoniac atmosphérique, certainement plus que pour les autres principaux polluants acides que sont les  $\text{NO}_x$  et les composés soufrés. Mais ces dépôts secs sont estimés à partir de modèles, et sont donc sujets à une grande incertitude. De plus, ces modèles ne prennent généralement pas en compte les dépôts locaux si ce n'est de façon simpliste.

#### ***1.4.4 Variabilité spatiale et temporelle des dépôts secs***

Comme le montre l'étude de Sutton *et al.* (1998), la variabilité spatiale des émissions a des effets importants sur la distribution des dépôts secs. Les auteurs trouvent en effet, à l'aide d'un modèle de dispersion local, et de données détaillées d'émissions et de concentration, que dans un secteur de 5x5 km, les concentrations varient d'un facteur 100, et les dépôts en conséquence. Boermans et Erisman (1993 ; cités dans Sutton *et al.*, 1998) trouvent des résultats semblables à l'aide du même type de modèle.

Plusieurs études basées sur des mesures et des simulations montrent que les dépôts secs à deux kilomètres d'une source, peuvent varier de 0% à 50% de la quantité d' $\text{NH}_3$  émise (Sommer et Jensen, 1991; Asman, 1998; Fowler *et al.*, 1998). La Figure I.3 montre une estimation des dépôts annuels d' $\text{NH}_3$  à proximité d'un bâtiment d'élevage de volaille dont les émissions annuelles ont été évaluées à 4800 kg N- $\text{NH}_3$  a<sup>-1</sup> (repris de Fowler *et al.*, 1998). Cette figure montre à quel point les dépôts varient sur 100 m autour de la source. Les dépôts les plus élevés se trouvent sous le vent dominant de la ferme, à quelques dizaines de mètres et s'élèvent à plus de 200 kg N- $\text{NH}_3$  ha<sup>-1</sup> a<sup>-1</sup>. Au delà d'un rayon de 100 m, les dépôts secs sont inférieurs à 40 kg N- $\text{NH}_3$  ha<sup>-1</sup> a<sup>-1</sup>, et les concentrations mesurées sont inférieures à 2  $\mu\text{g NH}_3$  m<sup>-3</sup>.



**Figure I.3.** Dépôts moyens annuels d'ammoniac à proximité d'un bâtiment d'élevage émettant 4800 kg N-NH<sub>3</sub> an<sup>-1</sup>. Les dépôts sont calculés avec le modèle LADD (Hill, 1997), et sont basés sur de statistiques annuelles de direction et vitesse de vent et de classes de stabilité estimées avec des données mesurés sur une station micrométéorologique proche du site. Adapté de Fowler *et al.* (1998).

La concentration varie également au cours du temps. Le rapport P95 / P50<sup>1</sup> pour une année de mesures sur le réseau national hollandais de la qualité de l'air est approximativement de 5/1, que ce soit dans les régions d'agriculture intensive où la concentration excède 10 µg NH<sub>3</sub> m<sup>-3</sup> où dans les régions moins polluées où la concentration est inférieure à 5 µg NH<sub>3</sub> m<sup>-3</sup> (van der Eerden *et al.*, 1998). De même Aben et Dekkers (1996) ont estimé que le rapport entre concentration de jour et concentration de nuit est d'environ 1/3, indiquant (i) qu'il y a moins de dispersion la nuit, et (ii) que les sources émettent également la nuit (par exemple bâtiments). Cette variabilité temporelle des concentrations entraîne, elle aussi, des variations du dépôt car elle est corrélée à des variations des conditions de dispersion et d'absorption du couvert (jour/nuit).

Van der Eerden *et al.* (1998) ont estimé les niveaux de risque de dommage de la végétation en fonction de l'intensité de la source, à partir des mesures de concentration en NH<sub>3</sub> (Figure I.4). Leur étude montre, outre le fait que la zone située à moins de 100 m de la source est exposée à des concentrations élevées, qu'il existe une zone où le risque dépend des conditions microclimatiques locale.

<sup>1</sup> Où  $PX = \frac{1}{N} \sum \{x \text{ tels que } \sum_{-\infty}^x P(t) \geq X\}$ , donc P50 est la médiane, et P95 est la moyenne des cas correspondant aux "5 derniers %" de la fonction de répartition de la concentration.

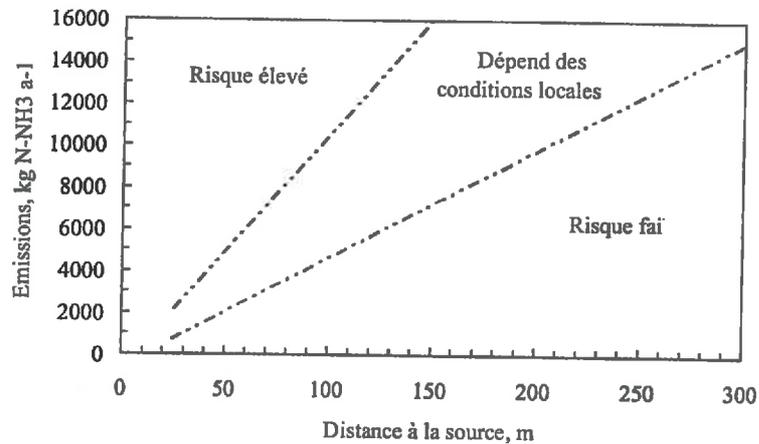


Figure I.4. Rayons critiques autour d'une source correspondant à différents niveaux de risque de dommage, en fonction des émissions. Le niveau de risque est estimé à l'aide de la dose d'ammoniac reçue par la plante. La dose est la concentration multipliée par la durée d'exposition. Adapté de van der Eerden *et al.* (1998).

### I.5 Impact des dépôts d'ammoniac sur l'environnement

Comme nous l'avons noté plus haut, l'intérêt récent pour l'ammoniac atmosphérique est lié à son caractère polluant, à travers les effets écologiques de son dépôt. Les protocoles internationaux négociés récemment sous l'égide des Nations Unies, après la convention sur la pollution transnationale (Long Range Transboundary Air Pollution, LRTAP, signée en 1979 et entrée en vigueur en 1983) montrent également un intérêt croissant pour les effets écologiques des dépôts de polluants.

Les premiers protocoles (Protocole d'Helsinki, 1985) visaient plutôt à contrôler uniquement les émissions de dioxyde de soufre et d'oxydes d'azote. Pour le Protocole d'Oslo (1994), l'approche s'est orientée vers une diminution des émissions en relation avec leurs effets sur la santé publique et sur les écosystèmes naturels. Pour cela, le concept de *charge critique* a été introduit, qui correspond à la dose au-delà de laquelle la cible subit des dommages notables (RGAR, 1997 ; Ulrich *et al.*, 1998). Une dose est le produit d'une concentration moyenne par la période d'exposition.

Un nouveau protocole sur les oxydes d'azote est en cours de négociation, et devrait inclure plusieurs polluants et plusieurs effets, en tentant d'appliquer l'approche de charge critique à tous les polluants liés aux émissions d'azote, et inclure notamment les dépôts acides, d'ammoniac et des autres composés azotés (RGAR; 1997). La Communauté Européenne, dans le cadre de ces négociations internationales, a développé des actions sur la santé des personnes, ou des programmes comme CORINAIR, dont l'un des objectifs est de réaliser des inventaires d'émissions et de dépôts de polluants en Europe.

On voit que dans ce cadre, où l'effet des polluants sur les écosystèmes est le critère utilisé pour juger de l'efficacité des politiques de réduction des émissions, l'effet des dépôts d'ammoniac sur l'environnement constitue une question centrale. Nous donnons donc ici une

brève présentation des effets connus des dépôts d'ammoniac sur les écosystèmes, en essayant de mettre en avant ceux pour lesquels les dépôts secs pourraient contribuer plus que les dépôts humides.

Les effets des dépôts d' $\text{NH}_3$  peuvent être séparés en deux catégories : (i) ceux qui sont une réponse à l'excès d'azote, entraînant l'eutrophisation des eaux et des sols, ainsi que des modifications de la biodiversité, et (ii) ceux liés à l'acidification (des sols), et à la modification des équilibres de nutriments. Dans la première catégorie les effets des dépôts d' $\text{NH}_x$  doivent être étudiés en parallèles avec ceux de  $\text{NO}_y$  ( $\text{NO}_x$ ,  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{HNO}_2$ ,  $\text{NO}_3^-$ ), puisque les deux contribuent à l'apport d'azote fixé. Dans la seconde catégorie, les composés  $\text{NH}_x$ ,  $\text{NO}_y$  et  $\text{SO}_x$  ( $\text{SO}_2$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ) contribuent tous à l'acidification et à la modification des équilibres électrochimiques du sol.

### *1.5.1 Eutrophisation des écosystèmes semi-naturels - effets sur la biodiversité*

Dans les écosystèmes semi-naturels, les espèces végétales sont adaptées au déficit de nutriments du sol (Sutton *et al.*, 1993). L'augmentation des dépôts d'azote fixé sur ces écosystèmes, durant les dernières décades, pourrait avoir entraîné une baisse de la biodiversité. Celle-ci a bien été observée à travers l'Europe, notamment sur les écosystèmes de type "moorland", zones inondées, régions alpines, prairies sur sols calcaires, et dunes côtières (Sutton *et al.*, 1993). Par exemple, Bobbink *et al.* (1992) rapportent que dans certaines régions du Pays-Bas, 35% la bruyère a été remplacée par de la prairie.

Ces changements sont attribués aux dépôts d'azote, et plusieurs résultats expérimentaux confirment cette hypothèse (Skeffington et Wilson, 1988; Sutton *et al.*, 1993; Maaiké *et al.*, 1998; Power *et al.*, 1998). Toutefois la plupart de ces expérimentations sont réalisées avec des apports de fertilisants solides ou liquides sur le sol, et sont donc peu représentatifs des dépôts secs qui correspondent à une absorption foliaire d' $\text{NH}_3$ , ou des dépôts humides pour lesquels les doses et la composition chimique des apports sont différents (Skeffington et Wilson, 1988). Ces expérimentations apportent toutefois des indications sur les mécanismes à l'origine de la transition d'écosystème (Power *et al.*, 1998).

Plusieurs mécanismes peuvent être avancés pour expliquer cette transition : (i) l'augmentation de la quantité d'azote foliaire entraîne une plus grande résistance et un meilleur taux de reproduction des insectes se nourrissant de cette plante. Ces attaques engendrent l'apparition de trous dans le couvert qui, combinés à l'augmentation des apports d'azotes vont permettre le développement d'espèces nitrophiles plus aptes à utiliser l'excès d'azote (Sutton *et al.*, 1993 ; Power *et al.*, 1998). (ii) La présence d'animaux est également à l'origine de transition d'écosystèmes, et il est difficile de séparer cet effet de celui engendré par le dépôt (Sutton *et al.*, 1993). (iii) Pour les forêts en particulier, le déséquilibre en cations du sol engendré par l'excès d' $\text{NH}_4^+$  peut entraîner une diminution de croissance du couvert (Sutton *et al.*, 1993), ainsi qu'une augmentation de la sensibilité au gel (Jalkanen *et al.*, 1998). Le

déséquilibre en cations du sol peut être exacerbé par leur lessivage suite à la compétition avec  $\text{NH}_4^+$  pour les sites d'échange cationique du sol. (iv) D'importants dépôts d'azote peuvent aussi favoriser la formation d'algues et de champignons sur les branches et épinettes de conifères (Sutton *et al.*, 1993).

Seules quelques études réalisées à proximité de bâtiments d'élevage permettent d'évaluer l'impact des dépôts secs sur les plantes (Kaupenjohann *et al.*, 1989; Pitcairn *et al.*, 1998). Pitcairn *et al.* (1998) ont mesuré une modification de la composition florale avec la distance en aval d'un bâtiment d'élevage, avec une majorité d'espèces ayant une affinité pour l'azote près de la source, comme par exemple *Deschampsia flexuosa* L. et *Holcus lanatus* L., où la concentration en  $\text{NH}_3$  atteint  $50 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ , et les quantités déposées excèdent  $40 \text{ kg N-NH}_3 \text{ ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ . Pitcairn *et al.* (1998) montrent en outre que la proportion d'espèce nitrophile décroît très vite en aval de la source, et passe de près de 50% à 20 m à moins de 10% au delà de 50 m. En revanche les espèces plus sensibles et les mousses, représentent moins de 5% des espèces présentes à 20 m, et augmentent progressivement pour atteindre plus de 50% à 300 m.

Pitcairn *et al.* (1998) montrent par ailleurs que la concentration foliaire en azote des mousses croît avec la concentration en  $\text{NH}_3$  dans l'air, et atteint un maximum d'environ 3% du poids sec pour des concentrations supérieures à 20 à  $40 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$  (Figure I.5). Le même type de résultat est observé sur les arbres, mais la croissance de la concentration foliaire est moins marquée, parce que l'absorption foliaire représente une faible fraction de l'absorption d'azote total chez les arbres. Les résultats de Pitcairn *et al.* (1998) suggèrent le potentiel intéressant que représente les mousses comme bioindicateurs des dépôts secs.

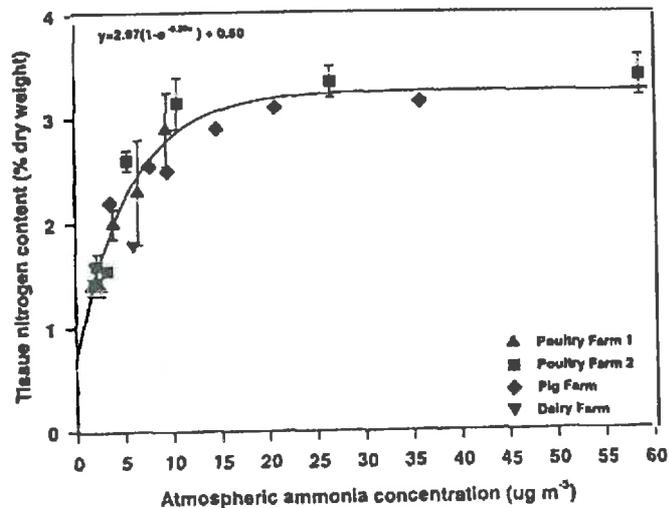


Figure I.5. Concentration foliaire en azote (% poids sec) dans des mousses en fonction de la concentration en ammoniac dans l'air à proximité de 4 bâtiments d'élevage. Repris de Pitcairn *et al.* (1998).

### I.5.2 Acidification des sols et eaux douces

Le cycle interne des nutriments dans les écosystèmes naturels engendre une production importante de protons  $H^+$  qui sont consommés lorsque l'écosystème n'est pas perturbé. L'acidification du sol est donc liée à une perturbation de l'écosystème, notamment, la coupe en forêt, qui entraîne le lessivage des cations (Sutton *et al.*, 1993 ; Nissinen et Hari, 1998), ou le dépôt de polluants atmosphériques (Skeffington et Wilson, 1988).

Les processus conduisant à l'acidification du sol suite à des dépôts d' $NH_x$  sont schématisés sur la Figure I.6. L'azote dans la plante est assimilé sous forme  $R-NH_2$ , donc l'assimilation d'azote sous forme  $NH_4^+$  doit théoriquement entraîner la libération d'un proton dans le sol afin de maintenir l'électroneutralité des tissus. Toutefois, certaines mesures (Yin *et al.*, 1997), sur des plantes en  $C_3$  et  $C_4$ , semblent indiquer que la plante rejette entre 1.5 et 2 moles d' $H^+$  par mole d'ammonium assimilée et n'absorbe que 0.5 à 1 mole d' $H^+$  lorsqu'elle assimile 1 mole de nitrate. Ces valeurs engendreraient une acidification plus importante du sol (bilan en gras sur la Figure I.6).

L'ammonium qui n'est pas assimilé par les plantes ou la matière organique peut être nitrifié en  $NO_3^-$  par l'activité microbienne du sol. L'effet est également acidifiant, et libère en théorie 2 protons (Figures I.2 et I.6). L'assimilation ou la dénitrification du nitrate neutralise partiellement cette acidité (Figure I.6). Une partie du nitrate présent dans le sol peut également être lessivée, entraînant avec elle un proton ou un cation par mole de nitrate, ce qui accroît l'acidification du sol.

La Figure I.6 montre également que le dépôt d' $NH_x$  sous forme d' $NH_3$  ou d' $NH_4^+$  a un effet différent sur le bilan de proton du sol, puisque l'apport sous forme  $NH_3$  consomme un proton pour la transformation en ion ammonium. Ainsi donc le dépôt sec est moins acidifiant

que le dépôt humide. Toutefois, il faut garder à l'esprit que l'ion  $\text{NH}_4^+$  qui se dépose est le produit de la neutralisation de  $\text{H}_2\text{SO}_4$  ou  $\text{HNO}_3$ , et que donc l'acidité apportée par  $\text{NH}_4^+$  trouve en réalité son origine dans les polluants acides  $\text{SO}_2$  et  $\text{NO}_x$ .

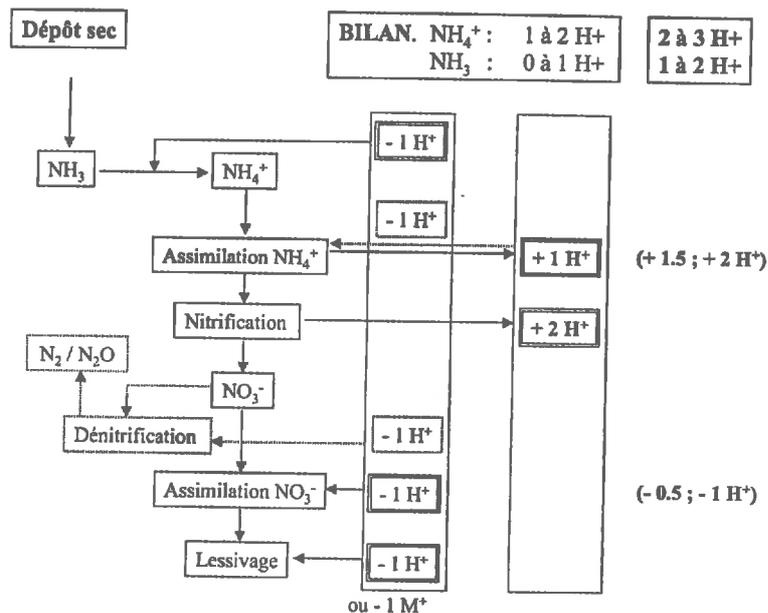


Figure I.6. Effets des dépôts atmosphériques d' $\text{NH}_3$  ou d' $\text{NH}_4^+$  sur le bilan de protons du sol. La production d' $\text{H}^+$  dépend de la forme de dépôt d' $\text{NH}_x$  et du devenir de l'ion  $\text{NH}_4^+$ .  $\text{M}^+$  représente les cations du sol ( $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{K}^+$ ). Le bilan correspond à la somme des contributions positives et négatives. Les chiffres entre parenthèses correspondent aux mesures de Yin *et al.* (1997) pour une plante en  $\text{C}_4$  et en  $\text{C}_3$  de gauche à droite. Le bilan correspondant, au-dessus, conduit à une acidification plus importante du sol. En revanche, la dénitrification ou la minéralisation (traits pointillés) conduisent à une acidification moins importante. Adapté de Sutton *et al.* (1993).

L'ammonium peut dans certains cas être lui même lessivé auquel cas cela induit une alcalinisation du sol, mais potentiellement une acidification ultérieure de l'eau lorsqu'il y aura nitrification de cet ammonium.

### 1.5.3 Baisse de la résistance aux stress abiotiques des plantes

Nous avons évoqué ci-dessus les risques de stress biotiques (attaques d'insectes, champignons) liés à l'accroissement de la concentration d'azote des feuilles. Mais les dépôts d' $\text{NH}_x$  ont également des effets indirects sur les plantes, par les déséquilibres de nutriments qu'ils peuvent engendrer.

$\text{NH}_4^+$ , est le cation dominant dans les dépôts humides (Kallweit, 1995). S'il est en excès, il peut limiter l'absorption d'autres cations et engendrer alors un déséquilibre de nutriments dans les tissus qui va diminuer la résistance de la plante au gel ou à la sécheresse (Power *et al.*, 1998 ; Jalkanen *et al.*, 1998).

Le déséquilibre en nutriments peut être induit par la compétition avec  $\text{NH}_4^+$  présent dans le sol, mais il peut également être exacerbé par le lessivage des cations du sol. En effet, en occupant les sites de rétentions cationiques du sol, il peut provoquer le lessivage d'autre

cations ( $K^+$ ,  $Mg^{2+}$ ,  $Ca^{2+}$ ,  $Al^{3+}$ ), entraînant le déséquilibre nutritif de l'écosystème (Roelofs *et al.*, 1985).

#### ***1.5.4 Effets bénéfiques des dépôts d' $NH_x$ ?***

Potentiellement, l'apport d'azote dans les écosystèmes ayant un déficit d'azote pourrait entraîner une augmentation de la croissance des plantes. L'effet sur la séquestration du carbone serait bénéfique du point de vue du réchauffement global. Toutefois, l'effet n'est pas linéaire, comme l'indiquent les travaux de Nissinen et Hari (1998). Ils montrent, sur la base de simulations, qu'une multiplication par 5 des dépôts humides d'azote ( $NH_4^+$  et  $NO_3^-$ ) pourrait entraîner une augmentation de 12% de la croissance d'une forêt de pin.

A l'inverse, Cannell et Thornley (1998) montrent, en utilisant le Hurley Pasture Model, que les écosystèmes pauvres en azote pourraient, à long terme, être capables de séquestrer proportionnellement plus de carbone dans une atmosphère plus riche en  $CO_2$ . Leur résultats montrent en outre qu'il est important de prendre en compte l'évolution dynamique des échanges de nutriments, et notamment l'azote, pour simuler la réponse des écosystèmes à une augmentation du  $CO_2$  atmosphérique.

Parallèlement, MacDonnald *et al.* (1992) indiquent que l'augmentation des dépôts d'ammonium d'un même facteur 5 pourrait entraîner une diminution d'environ 50% de l'oxydation du méthane par les micro-organismes du sol. Le méthane ( $CH_4$ ) étant un puissant gaz à effet de serre, l'effet combiné de l'augmentation de la croissance des plante et de la diminution de l'oxydation de  $CH_4$  pourrait ne pas être positif. Par ailleurs, MacDonnald *et al.* (1992) suggèrent également qu'une augmentation des dépôts pourrait entraîner une augmentation des émissions de  $N_2O$  qui est un puissant gaz à effet de serre.

### **I.6 Objectifs de la thèse**

Nous avons vu dans cette introduction que les dépôts locaux d'ammoniac constituent à plusieurs titres un problème important en matière de la pollution. L'objectif de cette thèse est de mieux comprendre les facteurs à l'origine du dépôt sec local, de développer un modèle permettant de quantifier ces dépôts et leurs variabilité en fonction de la végétation et du climat. Le développement du modèle nécessite d'obtenir les données expérimentales permettant d'évaluer la qualité et la sensibilité de ce modèle.

- Le chapitre II fait la synthèse bibliographique des mécanismes à l'origine des dépôts secs. Les mécanismes de la dispersion dans l'atmosphère et dans le couvert sont d'abord étudiés, puis sont abordés ceux concernant l'échange de l'ammoniac gazeux entre la plante et l'atmosphère.
- Le chapitre III traite du développement du modèle. Le modèle de dispersion lagrangien stochastique est d'abord présenté, suivi de la paramétrisation de la turbulence dans le couvert, puis le modèle d'échange foliaire est détaillé, et enfin la

méthode de couplage et la mise en œuvre du modèle sont décrites.

- Le chapitre IV présente les expérimentations de dépôt local réalisées sur un champ de maïs qui permettront d'évaluer le modèle. Le détail de la méthode expérimentale est donné, et les résultats discutés. Une estimation des dépôts secs locaux est également discutée.
- Le chapitre V détaille, dans une première partie, la "validation" du modèle à l'aide des données du chapitre IV et d'autres données sur prairie. Dans une seconde partie, la sensibilité du modèle à ses paramètres est étudiée.
- Enfin, dans le chapitre VI le modèle est utilisé pour étudier l'impact des facteurs liés à la plante et au climat sur le dépôt sec local. L'effet de chacun de ces facteurs est d'abord étudié indépendamment des autres. Leur effet couplé est ensuite étudié à l'aide de données climatiques contrastées.

## I.7 Bibliographie

- Aben J.J.M., Dekkers A.L.M., 1996: Some aspects of ammonia concentrations in the Netherlands. In Poster papers and abstracts from the international conference on atmospheric ammonia, October 1995, Culham, UK, pp. 57-61.
- Alexandratos, N., ed. 1995: World Agriculture: Towards 2010. An FAO Study. Food and Agriculture Organization, Rome. Wiley, Chichester, New-York.
- Allison F.E., 1955: The enigma of soil Nitrogen balance sheets. *Adv. Agron.*, 7: 213-251.
- Asman W.A.H., 1992: Ammonia emission in Europe: updated emission and emission variations. *RIVM Report 228471008*, RIVM, Bilthoven.
- Asman W.A.H., 1998: Factors influencing local dry deposition of gases with special reference to ammonia. *Atmos. Environ.*, 32(3): 415-421.
- Asman W.A.H., Drukker B., Jansen A.J., 1988: Modelled historical concentrations and depositions of ammonia and ammonium in Europe. *Atmos. Environ.*, 22: 725-735.
- Asman W.A.H., Harrison R.M., Ottley C.J., 1994: The net air-sea flux of ammonia over southern bight of the North Sea. *Atmos. Environ.*, 28: 3647-3654.
- Asman W.A.H., Janssen A., 1987: A long-range transport model for ammonia and ammonium for Europe. *Atmos. Environ.*, 21(10): 2099-2119.
- Asman W.A.H., Pinksterboer E.F., Maas J.F.M., Erisman J.-W., Waijers-Ypelaan 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.
- Avnimelech Y. Laher M., 1977: Ammonia volatilization from soils: equilibrium considerations. *Soil Sci. Am. J.*, 41: 1080-1084.
- Ball P.R., Ryden J.C., 1984: Nitrogen relationships in intensively managed temperate grasslands. *Plant and Soil*, 76: 23-33.
- Behra P., Sigg L., Stumm W., 1989: Dominating the influence of NH<sub>3</sub> on the oxidation of aqueous SO<sub>2</sub>: the coupling of NH<sub>3</sub> and SO<sub>2</sub> in atmospheric water. *Atmos. Environ.*, 23(12): 2691-2707.
- Bineau A., 1854: Etudes chimiques sur les eaux pluviales et sur l'atmosphère de Lyon et de quelques points des environs. Lyon (Cité dans Hall et Miller, 1911).

- Bobbink R., Boxman R., Fremstad E., Heil G., Houdijk A., Roelofs J., 1992: Critical loads for Nitrogen eutrophication of terrestrial and wetland ecosystems based upon changes in vegetation and fauna. In Critical loads for nitrogen, Eds. P. Grennfelt and E. Thörnelof, pp. 111-160. Nord 1992: 41, Nordic Council of Ministers, Copenhagen.
- Boermans, G.M.F., Erisman J.-W., 1993: Final report on the additional programme on ammonia. Report 222105002, National Institute of Public Health and Environmental protection (RIVM), Bilthoven, The Netherlands.
- Boussingault J.B., 1856: Recherches sur la végétation. Troisième mémoire. De l'action du salpêtre sur le développement des plantes. *Ann. Chim. Phys. Ser. 3*, 46: 5-41.
- Bouwman A.F., Lee D.S., Asman W.A.H., Dentener J.F., van de Hoek K.W., Olivier J.J.G., 1997: A global emission inventory for ammonia. *Glob. Biogeochem. Cycles*, 11: 561-587.
- Bouwman A.F., van der Hoek, K.W., 1997: Scenarios of animal waste production and fertilizer use and associated ammonia emission for the developing countries. *Atmos. Environ.*, 31(24): 4095-4102.
- Brimblecombe P., Pitman J., 1980: Long-term deposit at Rothamsted, southern England. *Tellus*, 32: 261-267.
- Buijsman E., Mass H.F.M., Asman W.A.H., 1987: Anthropogenic emissions in Europe. *Atmos. Env.*, 21(5): 1009-1022.
- Burkhardt J., Eiden R., 1994: Thin water films on coniferous needles (With an Appendix "A new device for the study of water vapour condensation and gaseous deposition to plant surfaces and particle samples" by J. Burkhardt and J. Gerchau). *Atmos. Environ.*, 28(12): 2001-2017.
- Burkhardt J., Kaiser H., Goldbach H., Kappen L., 1999: Measurements of electrical leaf surface conductance reveal recondensation of transpired water vapour on leaf surfaces. *Plant, Cell and Environ.*, 22: 189-196.
- Cannell M.G.R., Thornley H.M., 1998: N-poor ecosystems may respond more to elevated [CO<sub>2</sub>] than N-rich ones in the long term. A model analysis of grassland. *Global Change Biol.*, 4: 431-442.
- Chaillou S., Lamaze T. 1997: Nutrition ammoniacale des plantes. In *Assimilation de l'azote chez les plantes, aspects physiologique, biochimique et moléculaire.*, Morot-Gaudry J.-F. ed., INRA éditions. 422 p.
- Chaillou S., Lamaze T. 1997: Nutrition ammoniacale des plantes. In *Assimilation de l'azote chez les plantes, aspects physiologique, biochimique et moléculaire.*, Morot-Gaudry J.-F. ed., INRA éditions. 422 p.
- CLAG (Critical Loads Advisory Group), 1997: Deposition fluxes of acidifying compounds in the United Kingdom. Sub-group report on deposition fluxes. Department of the Environment, London, UK.
- Dambrine E., Probst A., Party J.-P., 1993: Détermination des charges critiques de polluants atmosphériques pour les écosystèmes naturels, en particulier forestiers. Bases théoriques - Projet d'application au cas des Vosges. Pollution atmosphérique, Numéro Spécial, Juin 1993.
- De Saussure Th., 1804: Recherches Chimiques sur la Végétation. Vol. V. Nyon, Paris. (cité dans Sutton *et al.*, 1993).
- De Ville G., 1850: Note sur l'assimilation de l'azote de l'air par les plantes, et sur l'influence qu'exerce l'ammoniaque dans la végétation. *Compte Rendus de l'Acad. Sci., Paris*, 31: 578-580.
- Dentener F.J., Crutzen P.J., 1993: Reaction of N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> on tropospheric aerosols: Impact on the global distributions of NO<sub>x</sub>, O<sub>3</sub> and OH. *J. Geophys. Res.*, 98: 7149-7163.
- Dentener F.J., Crutzen P.J., 1994: A three-dimensional model of the global ammonia cycle. *J. Atmos. Chem.*, 19: 331-369.
- Dlugi R., Kins L., Seiler Th., Seidl W., Seifert P., Kasper A., Sievering H., Zelger M., Köhler E., Reusswig K., 1994: The chemical behaviour and deposition of ammonium nitrate, nitric acid and ammonia. In *Biosphere-Atmosphere exchange of pollutants and trace substances*, Ed. S. Slanina, Springer-Verlag, Berlin, pp 277-284.
- Dragosits U. Sutton M.A., Place C.J., Bayley A., 1998: Modelling the spatial distribution of ammonia emissions

- in the United Kingdom. *Environ. Pollut.*, **102(S1)**: 195-203.
- Eggleton A.E.J., Atkins D.H.F., 1972: Results of the Teesside investigation. Report AERE-R6983. Harwell Laboratory, Didcot, Oxon.
- Egnér H., Eriksson E., 1955: Current data on the chemical sampling of air and precipitation. *Tellus*, **7**: 134-137.
- Eriksson E., 1952: Composition of atmospheric precipitation. A. Nitrogen compounds. *Tellus*, **4**: 215-232 ; 296-303.
- Erisman J.-W., Hensen A., Duyzer J., Monteny G.-J., Huijsmans J., 1999: Scientific basis for an integrated nitrogen approach. In *Abstracts of the 10<sup>th</sup> Nitrogen Workshop, Vol. 1*, 23-26 August 1999, Copenhagen Denmark.
- Erisman J.-W., van Pul A., 1997: Assessment of dry deposition and total acidifying loads in Europe. In *Biosphere-Atmosphere exchange of pollutants and trace substances*, Ed. S. Slanina, Springer-Verlag, Berlin, pp 93-116.
- Farquhar G.D., Wetselaar R., Weir B., 1983: Gaseous nitrogen loss from plants. In *loss Gaseous nitrogen from plant-soil systems*. ed Freney J.R., Simpson J.R., M. Nijhoff, W. Junk publishers.
- Firestone M.K., Davidson E.A., 1989: Microbial basis of NO and N<sub>2</sub>O production and consumption in soil. In *Exchange of Trace Gases between the Terrestrial Ecosystems and the Atmosphere*, M.O. Andreae and D.S. Schimel Eds., Dahlem Workshop Reports, Wiley-Interscience, New-York, pp 7-22.
- Flécharde C.R., Fowler D., 1998: Atmospheric ammonia at a moorland site. II: Long-term surface-atmosphere micrometeorological flux measurements. *Quart. J. R. Met. Soc.*, **124**: 759-791.
- Fouler D., Duyzer J.H., Baldocchi D.D., 1991: Inputs of trace gases, particles and cloud droplets to terrestrial surfaces. *Proceedings of the Royal Society of Edinburgh*, **97B**: 35-59.
- Fowler D., Duyzer J.H., Baldocchi D.D., 1991: Inputs of trace gases, particles and cloud droplets to terrestrial surfaces. *Proc. Roy. Soc. Edinburgh*, **97B**: 35-59.
- Fowler D., Pitcairn C.E.R., Sutton M.A., Flécharde C., Loubet B., Coyle M., Munro R.C., 1998: The mass budget of atmospheric ammonia within 1 km of livestock buildings and deposition patterns within adjacent woodland. *Environ. Pollut.*, **102(S1)**: 343-348.
- Galbally I.E., 1989: factors controlling NO<sub>x</sub> emissions from soils. In *Exchange of Trace Gases between the Terrestrial Ecosystems and the Atmosphere*, M.O. Andreae and D.S. Schimel Eds., Dahlem Workshop Reports, Wiley-Interscience, New-York, pp 23-37.
- Génermont S., Cellier P., 1997: A mechanistic model for estimating ammonia volatilisation from slurry applied to a bare soil. *Agricultural and Forest Meteorol.*, **88**: 145-167.
- Glorennec P., Jouan M., Le Goaster C., Sauvaget G., Morvan T., Cellier P., Génermont S., Masson S., Loubet B., 1999: Evaluation du risque sanitaire lié aux expositions environnementales à l'ammoniac atmosphérique en zone rurale. Rapport de la Cellule Inter Régionale d'Epidémiologie (CIRE).
- Goulding K.W.T., Poulton P.R., Thomas V.H., Williams R.J.B., 1986: Atmospheric deposition at Rothamsted, Saxmundham and Woburn experimental stations, England, 1969-1984: *Water, Air Soil Pollut.*, **29**: 27-49.
- Hall A.D., Miller N.H.J., 1911: On the absorption of ammonia from the atmosphere. *J. Agric. Sci.*, **4**: 56-68.
- Heinrich R., 1881: Über die Ammoniakmengenwelche der Atmosphäre im Lauf eines Jahres durch Salzeure entzogen werden. *Wollnys Forschungen*, **4**: 446-452.
- Hightower R.L., Richardson C.B., 1988: Evaporation of ammonium nitrate particles containing sulfate. *Atmos. Environ.*, **22(11)**: 2587-2591.
- Hill J.D., 1997: Application of computational modelling to ammonia dispersion from agricultural sources. *Ph.D. Thesis*, Imperial College Centre for Environmental Technology, University of London.
- Horvath L., Sutton M.A., 1998: Long term record of ammonia and ammonium concentrations at Kpuszta,

- Hungary. *Atmos. Environ.*, **32**: 339-344.
- Husted S., Schjørring J. K., 1995: Apoplastic pH and Ammonium Concentration in leaves of *Brassica napus* L. *Plant Physiol.*, **109**: 1453-1460
- Husted S., Schjørring J. K., 1995: Apoplastic pH and Ammonium Concentration in leaves of *Brassica napus* L. *Plant Physiol.*, **109**: 1453-1460
- IPCC, 1995: Climate change 1994 - Radiative forcing of climate change and an evaluation of the IPCC IS92 emissions scenarios. Cambridge University Press, Cambridge UK.
- Jalkanen R.E., Redfern D.B., Sheppard L.J., 1998: Nutrient deficits increase hardiness in Sitka spruce (*Picea sitchensis*) needles. *Forest Ecology and Management*, **107**: 191-201.
- Junge C.E., Ryan T.G., 1958: Study of SO<sub>2</sub> oxidation in solutions and its role in atmospheric chemistry. *Quart. J. R. Meteor. Soc.*, **84**: 46-55.
- Kallweit D., 1995: Deposition Network of the Federal Environment Agency (UBA) - Results and Trends. In *Acid rain Research: do we have enough answers?* G.J. Heij and J.W. Erisman Eds., Elsevier Science BV, pp91-102.
- Kaupenjohann M., Döhler H., Bauer M., 1989: Effects of N-immissions on nutrients status and vitality of *Pinus sylvestris* near a hen-house. *Plant Soil*, **113**: 279-282.
- Kellner , 1986: Über das Maximum auf gebundenen Stickstoff Welches des Ackerboden der Atmosphäre zu enziehen vermag. *Landwirtschaftliche Jahrb.*, **15**: 701-711.
- Langner J., Rodhe H., 1991: A global three-dimensional model of the tropospheric sulfur cycle. *J. Atmos. Chem.*, **13**: 225-265.
- Lawes J.B., Gilbert J.H., 1851: On agricultural chemistry. *J. R. Agr. Soc.*, **12**: 1-40.
- Levy A.A., 1880: Ammoniaque de l'air et des eaux. *Compte Rendus de l'Acad. Sci., Paris*, **91**: 94-97.
- Liebig J., 1847: Liebig on manure v. Boussingault and Kuhlman (extraits d'une lettre à la *Revue Scientifique et Industrielle*). *Farmers Magazine*, **16**: 511.
- Lovelock J.E., Margulis L., 1974: Atmospheric homeostasis by and for the biosphere : the gaia hypothesis. *Tellus*, **26**: 2-9.
- Maaik C., de Graaf C., Bobbink R., Roelofs J.G.M., Verbeek P.J.M.V., 1998: Differential effects of ammonium and nitrate on three heathland species. *Plant Ecology*, **135**: 185-196.
- MacDonald J.A., Skiba U., Sheppard L.J., Ball B., Roberts J.D., Smith K.A., Fowler D., 1997: The effect of nitrogen deposition and seasonal variability on methane oxidation and nitrous oxide emission rates in an upland spruce plantation and moorland. *Atmos. Environ.*, **31(22)**: 3693-3706.
- Mariotti A., 1997: Quelques réflexions sur le cycle biogéochimique de l'azote dans les agrosystèmes. In *Maîtrise de l'azote dans les agrosystèmes*, G. Lemaire et B. Nicolardot Eds., INRA Editions Paris.
- Matthews E., 1994: Nitrogen fertilizers: global distribution of consumption and associated emissions of nitrous oxide and ammonia. *Global Biochem. Cycles*, **8(4)**: 411-439.
- Melillo J.M., Steudler P.A., Aber J.D., Bowden R.D., 1989: Atmospheric deposition and nutrient cycling. In *Exchange of trace gases between terrestrial ecosystems and the atmosphere*. Eds. M.O. Andreae and D.S. Schimel, Wiley-Interscience, New-York, pp. 263-280.
- Milford C., Sutton M.A., Dragosits U., Harisson R., Moss D., Epenhahn S., Lee D.S., Hill J., Wyers J.P., 1997: Measurements of horizontal gradients of NH<sub>3</sub>, and NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, downwind of slurry spreading. *ADEPT Final Report, Annexes volume 2*.
- Müntz A., Aubin E., 1882: De la distribution de l'ammoniaque dans les météores aqueux aux grandes altitudes. *Compte Rendus de l'Acad. Sci., Paris*, **95**: 788.
- Nilsson J., Grennfelt P., 1988: Critical loads for sulphur and Nitrogen, Nordic Council of Ministers, Copenhagen.

- Nissinen A., Hari P., 1998: Effects of nitrogen deposition on tree growth and soil nutrients in boreal Scots pine stands. *Environ. Pollut.*, **102**:61-68.
- Pitcairn C.E.R., Leith I.D., Sheppard L.J., Sutton M.A., Fowler D., Munro R.C., Tang S., Wilson D., 1998. The relationship between nitrogen deposition, species composition and foliar nitrogen concentrations in woodland flora in the vicinity of livestock farms. *Environ. Pollut.*, **102(S1)**: 41-48.
- Power S.A., Ashmore M.R., Cousins D.A., Sheppard L.J., 1998: Effects of nitrogen addition on the stress sensitivity of *Calluna vulgaris*. *New. Phytol.*, **138**: 663-673.
- RGAR (Review Group on Acid Rain), 1997: Acid deposition in the United-Kingdom 1992-1994. DoE Publication Despatch Centre. London.
- Roelofs J.G.M., Kempers A.J., Houdijk A.L.F.M., Jansen J., 1985: The effect of air-borne ammonium on *Pinus nigra var. maritima* in the Netherlands. *Plant Soil*, **84**: 45-56.
- Schaug J., Pacyna J., Harstad T., Krognest T., Skjelmoen J.E., 1987: ECE co-operation programme for monitoring and evaluation of the long range transmission of air pollutants in Europe. Report EMEP/CCC 2/87. Norwegian Institute for Air Research, Lillestrøm.
- Schjørring J.K., 1991: Ammonia emission from foliage of growing plants. In *Trace Gas Emissions by Plants*, Academic Press inc.
- Schlesinger W.H., Hartley A.E., 1992: A global budget for atmospheric NH<sub>3</sub>. *Biogeochem.*, **15**: 191-211.
- Schlösing Th., 1874: Sur l'absorption de l'ammoniaque de l'air par les végétaux. *Compte Rendus de l'Acad. Sci., Paris*, **78**: 1700-1703.
- Seinfeld J.H., Pandis S.N., 1998: Atmospheric Chemistry and Physics. From air pollution to climate change. Wiley-Interscience. pp 1326.
- Singles R.J., 1996: Fine resolution modelling of ammonia dry deposition over Great-Britain. PhD, University of Edinburgh.
- Singles R.J., 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.
- Skeffington R.A., Wilson J.E., 1988: Excess nitrogen deposition: Issues for consideration. *Environ. Pollut.*, **54**: 159-184.
- Söderlund R., Svensson B.H., 1976: The global nitrogen cycle. In *N, P, S: Global Cycles*, Eds Söderlund R., Svensson B.H., SCOPE Report 7. *Ecol. Bull.*, **22**: 23-73.
- Sommer S.G., Jensen E.S., 1991: Foliar absorption of atmospheric ammonia by ryegrass in the field. *J. Env. Qual.*, **20(1)**: 153-156.
- Sutton M.A., Asman W.A.H., Schjørring J.K., 1994: Dry deposition of reduced nitrogen. *Tellus*, **46B**: 255-273.
- Sutton M.A., Burkhardt J.K., Guerin D., Fowler D., 1995a: Measurement and modelling of ammonia exchange over arable croplands. In *Acid rain Research: do we have enough answers?* G.J. Heij and J.W. Erisman Eds., Elsevier Science BV, pp71-80.
- 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(S1)**: 349-361.
- 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., Schjørring J.K., Wyers G.P., 1995b: Plant-atmosphere exchange of ammonia. *Phil. Trans. Roy. Soc. Lond. A*, **351**: 261-278.

- Ulrich E., Lanier M., Combes D., 1998: (RENECOFOR) Dépôts atmosphérique, concentrations dans les brouillards et dans la solution du sol (sous-réseau CATAENAT). Rapport Scientifique 1993-1996. Office National des Forêts, 1998.
- Van Breemen N., van Dijk H.F.G., 1988: Ecosystems effects of atmospheric deposition of nitrogen in the Netherlands. *Environ. Pollut.*, 54: 249-274.
- Van der Eerden L.J.M., de Visser P.H.B., van Dijk C.J., 1998: Risk of damage to crops in the direct neighbourhood of ammonia sources. *Environ. Pollut.*, 102(S1): 49-53.
- Whitehead D.C., Raistrick N., 1990: Ammonia volatilisation from five nitrogen compounds used as fertilizers following surface application to soils of differing characteristics. *J. Soil Sci.*, 41: 387-394.
- Wyers G.P., Erisman J.-W., 1998: Ammonia exchange over coniferous forest. *Atmos. Environ.*, 32(3): 441-451.
- Yin Z.-H., Raven J.A., 1997: A comparison of the impacts of various nitrogen sources on acid-base balance in C<sub>3</sub> *Triticum aestivum* L. And C<sub>4</sub> *Zea mays* L. Plants. *J. Experimental Botany*, 48(307): 315-324.

## II. LES MECANISMES DU DEPOT SEC D'AMMONIAC

### Résumé

Dans ce chapitre, nous décrivons les mécanismes à l'origine du dépôt sec d'ammoniac. Trois processus sont décrits successivement : la dispersion de scalaires passifs dans la couche limite de surface (CLS), le transfert dans la végétation, et l'échange d'ammoniac entre l'air et la feuille.

La dispersion dans la CLS résulte de la combinaison de l'advection, et de la diffusion turbulente du scalaire. Cette dernière est une fonction de la vitesse de frottement  $u_*$  et du paramètre de stabilité  $Z/L$ . Mais la dispersion peut également s'exprimer en fonction de l'écart-type des composantes de la vitesse du vent ( $\sigma_u$ ,  $\sigma_v$ , et  $\sigma_w$ ), et des échelles de temps lagrangiennes de la turbulence ( $T_{Lu}$  et  $T_{Lw}$ ). L'évolution de ces variables dans la couche limite et en fonction du paramètre de stabilité est détaillée, ainsi que la cohérence de leur paramétrisation.

Dans le couvert végétal, le transfert de scalaires est fortement affecté par l'intermittent de l'écoulement. Cette intermittence résulte de l'existence de structures cohérentes de grande échelle. On retrouve sa signature dans les spectres d'énergie des vitesses et des flux, mais aussi dans les moments d'ordre 3 (Skewness) et 4 (Kurtosis) de la turbulence, et dans  $T_{Lu}$  et  $T_{Lw}$ . Dans le couvert, ces dernières sont constantes, tandis que la vitesse moyenne du vent ( $\bar{u}$ ),  $\sigma_u$  et  $\sigma_w$  augmentent exponentiellement avec la hauteur et sont fonctions de l'indice foliaire.

L'échange foliaire d'ammoniac est un processus bidirectionnel. L'ammoniac en effet peut être absorbé ou émis par la plante. Nous utilisons ici l'analogie avec les schémas de résistance pour décrire les processus d'échanges foliaires. L'intensité et le sens des échanges dépendent, de la résistance de couche limite de feuille ( $r_b$ ) de la résistance stomatique ( $r_s$ ), mais aussi du point de compensation stomatique ( $C_s$ ), et de la résistance cuticulaire ( $r_w$ ).

La résistance  $r_b$ , est souvent déduite de lois de convection forcée, mais des régimes de convection libre ou mixte peuvent également apparaître dans le couvert, notamment en lien avec l'intermittence de l'écoulement. La résistance  $r_s$  pour l'ammoniac ( $r_{sNH_3}$ ) est en général équivalente à celle pour la vapeur d'eau, à un coefficient près. Elle dépend toutefois également de la distance moyenne de diffusion dans les stomates qui pourrait être une fonction de  $C_s$ .

Le point de compensation  $C_s$  varie très fortement en fonction de la température des feuilles, entraînant une variation saisonnière importante. Mais il dépend aussi du métabolisme azoté de la plante, à travers la concentration en ions  $NH_4^+$  et  $H^+$  dans l'apoplasme. Cette dépendance est à l'origine de fortes variations de  $C_s$  entre écosystèmes, notamment en fonction des apports azotés de la plante. Elle entraîne également des variations saisonnières liées à la sénescence. La résistance  $r_w$  caractérise les dépôts d' $NH_3$  sur les surfaces externes des feuilles. Elle dépend de la présence d'eau à la surface des feuilles, et c'est pourquoi elle est souvent paramétrée en fonction de l'humidité relative de l'air. Mais la combinaison de la transpiration des feuilles et de la présence de sels acides à leur surface affecte également  $r_w$ . Le déterminisme de  $C_s$  et  $r_w$  est aujourd'hui encore mal connu.

Le dépôt sec d'ammoniac gazeux à proximité des sources dépend de nombreux facteurs, liés à la turbulence atmosphérique mais aussi à la plante et sa capacité à échanger l'ammoniac. Dans ce chapitre, nous allons détailler les mécanismes de transport turbulent de "scalaire passif" dans la couche limite de surface et dans le couvert végétal, qui assurent le transfert du gaz entre les sources et les puits, et présenter les différentes approches permettant de modéliser ces mécanismes. Ensuite nous analyserons les processus d'échange entre la feuille et l'air qui l'entoure, ainsi que le dépôt sur les surfaces externes de la plante, en fonction de paramètres liés au microclimat et à la plante.

## II.1 Dispersion de polluants dans la couche limite atmosphérique

### II.1.1 Structure de la couche limite atmosphérique

La couche limite atmosphérique (CLA) se décompose en plusieurs sous-couches qui sont caractérisées par des processus de transfert et des paramètres d'échelle différents (Holtslag et Nieuwstadt, 1986 ; Figure II.1). La structure de la CLA est déterminée par le cycle de réchauffement et de refroidissement de la surface terrestre sous l'action du rayonnement solaire.

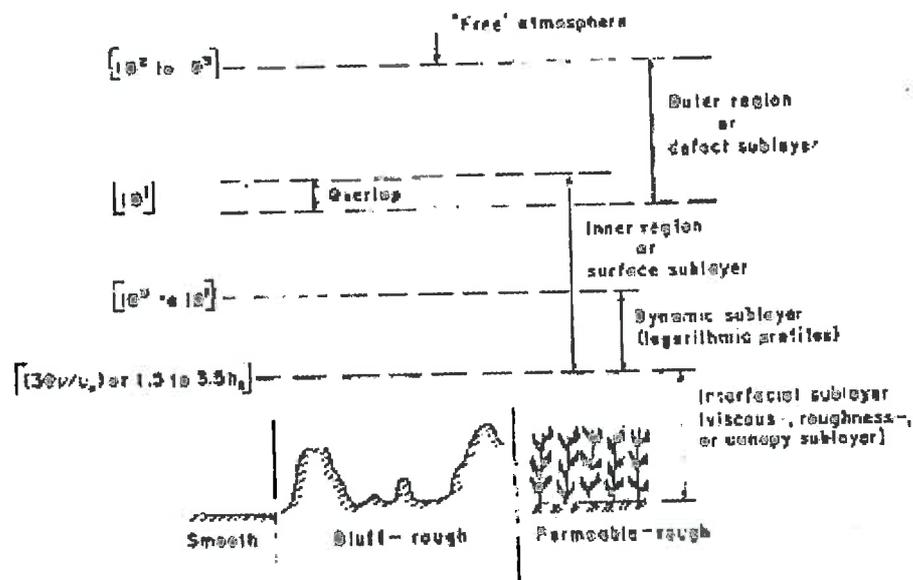


Figure II.1. Schéma simplifié des différentes sous-couches de la couche limite atmosphérique, avec les hauteurs caractéristiques de jour, où  $h_0$  est la hauteur caractéristique des éléments de rugosité,  $\nu$  est la viscosité cinématique de l'air, et  $u_*$  la vitesse de frottement.

De jour, par ciel clair, lorsque la surface du sol est plus chaude que l'air, la CLA prend la forme d'une couche de convection mixte (CCM), c'est à dire dans laquelle la convection est à la fois d'origine thermique et dynamique. Autour de midi solaire, elle peut atteindre 2 km d'altitude et correspond à une zone où la vitesse du vent et la température potentielle de l'air varient peu avec l'altitude sur (Figure II.2).

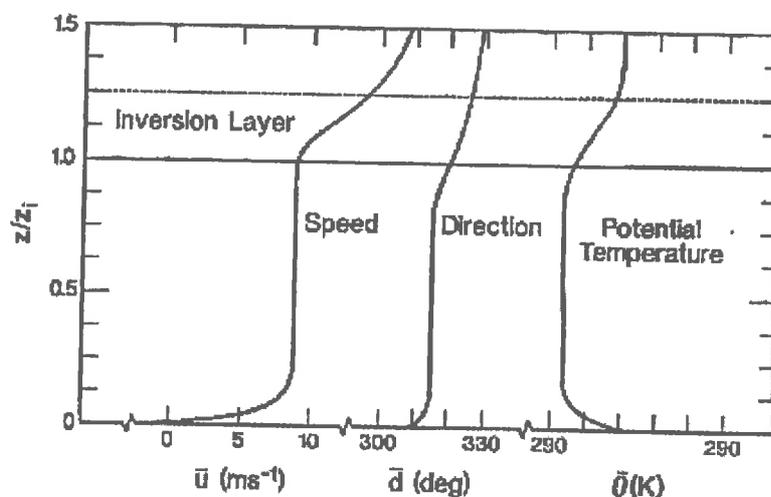


Figure II.2. Profils caractéristiques de vitesse du vent  $U$ , direction du vent  $d$ , et température potentielle  $\theta$ , dans la couche limite atmosphérique, de jour par ciel dégagé, repris de Kaimal et Finnigan (1994).

Le haut de la CCM est délimité par une couche d'inversion thermique où le gradient thermique positif "détruit" la turbulence (Figure II.2). Ainsi de jour, cette couche d'inversion forme un "couvercle" et la CLA constitue alors un "réservoir" quasiment étanche. La variation temporelle de la masse d'un composé, contenue dans une colonne d'air verticale ( $s_m$ ), peut donc être déterminée à partir de la différence entre le flux à la surface ( $F_0$ ) et celui à la hauteur d'inversion  $z_i$  ( $F_{z_i}$ ) par (Garratt, 1992) :

$$\frac{\partial s_m}{\partial t} = \frac{F_0 - F_{z_i}}{z_i} \quad (II.1)$$

Cette approche permet de réaliser des estimations de flux de surface sur de larges échelles spatiales par sondage régulier de l'atmosphère, avec des ballons ou des avions.

De nuit, par ciel dégagé, la surface du sol devient plus froide que l'air, par refroidissement radiatif, et une couche limite nocturne (CLN) s'installe. Cette couche est dite "stable", ou stratifiée, car le gradient thermique positif agit contre la turbulence. Une CLN peu stratifiée est caractérisée par une turbulence relativement homogène. Par vent faible et fort refroidissement, l'écoulement devient intermittent : de longues périodes pendant lesquelles les fluctuations sont presque nulles, alternent avec de courtes périodes de turbulence prononcée (Garratt, 1992 ; Gryning, 1999).

La hauteur de la CLN est très faible (50 à 200 m de nuit), soit de l'ordre de 10% de la CCM. La conservation de la masse exprimée dans l'Eqn. II.1 est valable pour la CLN, en remplaçant  $z_i$  par  $h_n$ , la hauteur de la CLN, et en notant que de nuit, le flux à la hauteur  $h_n$  ( $F_h$ ) est négligeable.

La température utilisée en météorologie est la *température potentielle*,  $\theta = T + (g / C_p) z$  qui est la température qu'une parcelle d'air, située à la hauteur  $z$  et donc à la pression hydrostatique  $p(z) = p_0 - \rho_0 g z$ , aurait si elle était portée de façon adiabatique à la pression

$p_0 = 1$  bar. Ici,  $\rho_0$  est la densité de l'air à la surface, et  $g$  est l'accélération due à la gravité. Le terme  $g / C_p$  est appelé *gradient adiabatique sec*, et vaut approximativement  $1^\circ\text{C} / 100$  m en atmosphère non saturée de vapeur d'eau. On voit donc qu'en pratique, sur une faible épaisseur à proximité de la surface, température et température potentielle sont approximativement égales, et peuvent être confondues.

Près de la surface, se développe une couche limite de surface (CLS), de quelques dizaines de mètres de hauteur, qui est définie comme la zone où la direction du vent ne varie pas avec l'altitude. Elle atteint 10% de la hauteur de la CCM de jour. De nuit, elle est plus petite, mais représente une plus grande proportion de la couche limite nocturne. Dans la CLS, la force de Coriolis peut être négligée, et la variation de la direction du vent avec l'altitude est négligeable. Coantic (1976) donne une estimation de la hauteur de la couche limite de surface, basée sur la définition du vent géostrophique :

$$h_0 \geq \frac{\delta u_*^2}{G / |f_c|} \quad (II.2)$$

où  $h_0$  est la hauteur pour laquelle les flux restent invariants à  $\delta$  près,  $u_*$  est la vitesse de frottement à la surface,  $G$  est le vent géostrophique dû aux gradients de pression horizontaux typiquement de l'ordre de  $10 \text{ m s}^{-1}$ , et  $f_c$  est le paramètre de Coriolis,  $f_c = 2 \Omega \sin \phi_L$ , où  $\Omega$  est la vitesse de rotation angulaire de la terre ( $7.29 \times 10^{-5} \text{ rad s}^{-1}$ ), et  $\phi_L$  est la latitude (rad).  $f_c$  est positif dans l'hémisphère Nord, négatif dans l'hémisphère sud, sa valeur à Paris (latitude  $48^\circ\text{N}$ ) est d'environ  $10 \text{ s}^{-1}$ , il vaut  $5 \text{ s}^{-1}$  à  $20^\circ\text{N}$  et de  $13 \text{ s}^{-1}$  à  $60^\circ\text{N}$ . La Figure II.3 montre qu'aux latitudes tempérées, la couche de surface n'excède pas 20 à 30 m sur prairie ( $u_*$  typiquement de l'ordre de  $0.3$  à  $0.5 \text{ m s}^{-1}$ ), et 50-100 m sur forêt. Cela signifie que l'analyse des transferts basée sur les lois de la CLS ne se justifie qu'à proximité de la surface.

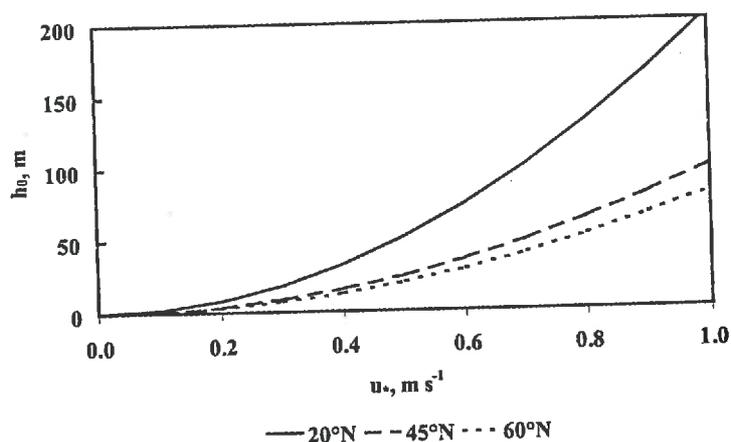


Figure II.3. Evolution théorique de la hauteur  $h_0$  de la couche limite de surface.  $h_0$  est calculée à partir de l'Eqn. II.2, avec  $\delta = 10\%$ , en fonction de la vitesse de frottement, et de la latitude du lieu considéré. Le vent géostrophique est fixé à  $10 \text{ m s}^{-1}$ , mais en réalité il est lié à  $u_*$ .

Une caractéristique importante de la CLS est que les transferts y sont déterminés par

l'interaction avec la surface, et les flux de quantité de mouvement et de matière sont constants et égaux à leur valeur "à la surface". En neutralité thermique, le transfert dans la CLS est entièrement déterminé par  $d$ , et la vitesse de frottement  $u_*$ . Holtslag et Nieuwstadt (1986) proposent une classification des différentes couches de l'atmosphère en fonction du paramètre de stabilité  $h_a/L$ , et de la hauteur adimensionnée  $z/h_a$ . Ici  $h_a$  est la hauteur de la couche limite atmosphérique, et  $L$  est la longueur de Monin et Obukhov. La couche limite de surface n'est définie qu'en condition faiblement stable ou instable. Les processus d'échange de masse et de quantité de mouvement dans la CLS sont abordés ci-après.

### II.1.2 Moyennes de Reynolds

Dans la suite, les coordonnées d'espace seront notées  $x$ ,  $y$  et  $z$  pour les directions dans le sens du vent, perpendiculaire au vent vers sa gauche, et verticale respectivement. Les vitesses instantanées du vent correspondantes seront respectivement notées  $u(t)$ ,  $v(t)$ ,  $w(t)$ . La concentration instantanée d'un gaz non pesant quelconque sera notée  $c(t)$ . Les modèles qui seront présentés par la suite sont paramétrés par les moments statistiques de la turbulence, et il paraît donc important de rappeler certaines notions sur la mesure de ces moments dans la couche limite et le couvert végétal.

Chaque variable d'état de la turbulence (par exemple  $u(t)$ ) se décompose en une composante moyenne  $\bar{u}$  indépendante du temps puisque l'écoulement est stationnaire, et une composante fluctuante  $u'(t)$  (Reynolds 1895, cité dans Garratt, 1992), où  $\bar{u}$ , la moyenne de Reynolds, n'est pas une moyenne temporelle mais une moyenne d'ensemble sur un ensemble de réalisations "virtuelles" de l'écoulement. Les moyennes de Reynolds ont notamment les propriétés suivantes :

$$\overline{u'} = 0 \quad (II.3)$$

$$\overline{u w} = \overline{u} \cdot \overline{w} + \overline{u' w'} \quad (II.4)$$

Le terme  $\overline{u' w'}$  est la corrélation turbulente entre  $u$  et  $w$ , il s'agit du flux vertical de quantité de mouvement. Les spectres d'énergie des vitesses du vent et des scalaires passifs dans la CLS (Figure II.4) montrent qu'il est possible (1) d'assimiler moyenne temporelle et moyenne d'ensemble, à l'aide du théorème ergodique (Soize, 1993), et donc de relier la théorie de la turbulence basée sur des moyennes d'ensemble aux mesures basées sur des moyennes temporelles, et (2) de supposer la turbulence stationnaire sur des échelles de temps de l'ordre de 1 h (Figure II.4).

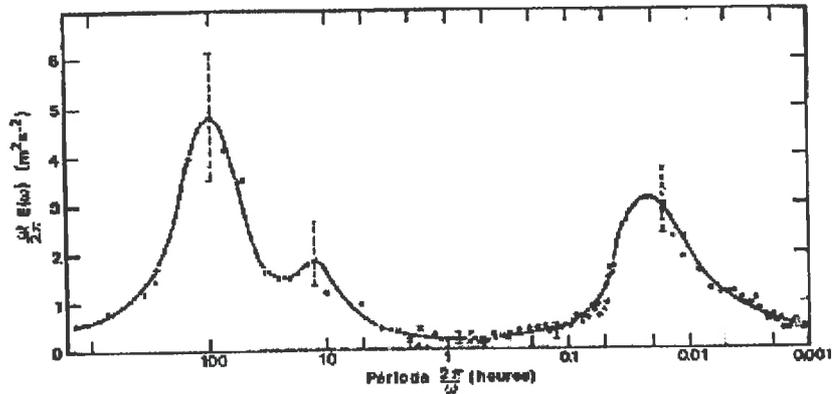


Figure II.4. Spectre caractéristique de la vitesse horizontale  $[(\omega / 2\pi) E(\omega) = f S_u(f)]$  à une altitude de 100 m, en fonction de la période en heures.  $f = \omega / 2\pi$  est la fréquence, D'après Van der Hoven, 1957.

Plusieurs remarques doivent être faites : (1) la durée nécessaire à l'estimation des variances est deux fois plus longue que pour l'estimation de la moyenne, et presque 10 fois plus longue pour l'estimation du coefficient d'aplatissement (moment d'ordre 4) (Lumley et Panofsky, 1964); (2) pour une turbulence gaussienne, cette durée augmente linéairement avec l'intensité de turbulence et l'échelle de temps intégrale  $\tau_u$  selon la loi suivante :

$$T_m > 2 \frac{\overline{u'^2}}{(\overline{u})^2} \frac{\tau_u}{\delta^2} \quad (II.5)$$

Où  $T_m$  est la durée d'intégration nécessaire, et  $\delta$  est l'erreur relative sur l'estimation de  $\overline{u'^2}$ . Haugen (1978) a estimé que pour des flux de gaz et de chaleur, et les variances concernées, l'erreur commise en utilisant un pas d'intégration d'une heure serait de l'ordre de 3.5 à 5% dans la CLS, et augmenterait jusqu'à 10-50% près de la surface. Les durées estimées pour obtenir une erreur de 1% sur les moyennes de vitesse en fonction de la hauteur dans un couvert de maïs montrent que l'hypothèse d'ergodicité est difficile à combiner avec l'hypothèse de stationnarité dans la partie inférieure du couvert végétal (Figure II.5).

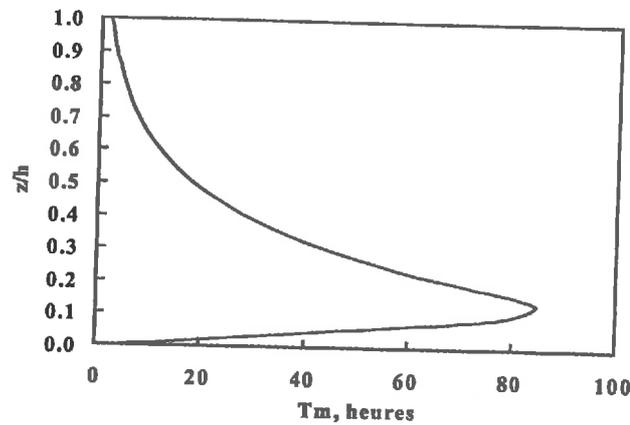


Figure II.5. Temps d'intégration ( $T_m$ ) nécessaire pour calculer la vitesse moyenne du vent horizontal en fonction de la hauteur dans un couvert de maïs, calculé à partir de l'Eqn. II.5, et des données de Wilson *et al.* (1982), en prenant comme échelle de temps lagrangienne  $T_L = 0.3 h / u_*$  (Raupach *et al.*, 1996). L'intensité de turbulence  $\sigma_z / \bar{u}$  est de l'ordre de 1 en haut du couvert et augmente jusqu'à 4 à  $z/h = 0.2$ .

L'erreur sur l'estimation de la moyenne temporelle à partir d'un nombre fini d'échantillons  $N$  décroît quant à elle comme l'inverse de  $N^{1/2}$ . Une valeur de  $N$  supérieur à 1000 permet d'assurer une erreur sur la moyenne inférieure à 10% (Haugen, 1978, cité dans Kaimal et Finnigan, 1994). Toutefois le nombre de points nécessaires augmente pour des moments d'ordre supérieur.

### II.1.3 Flux dans la couche limite de surface

En conditions de neutralité thermique, la CLS atmosphérique est l'analogue de la couche limite inertielle pour un écoulement en soufflerie (Garratt, 1992). C'est la zone située suffisamment haut au-dessus du couvert végétal, pour être en dehors de la sous-couche de rugosité (SCR) dont la hauteur  $z_*$  est de l'ordre de deux à quelques fois la hauteur du couvert végétal  $h$  (Cellier et Brunet, 1992).

Le flux vertical d'un scalaire dans la CLS est la somme de plusieurs composantes ; l'advection par le mouvement moyen, la diffusion moléculaire, et le mouvement turbulent :

$$F_c = \rho (\overline{wc} - D_c \frac{\partial \overline{C}}{\partial z}) = \rho (\overline{w} \cdot \overline{c} + \overline{w'c'} - D_c \frac{\partial \overline{C}}{\partial z}) \quad (II.6)$$

$$H = \rho C_p (\overline{wt} - D_T \frac{\partial \overline{T}}{\partial z}) = \rho C_p (\overline{w} \cdot \overline{T} + \overline{w't'} - D_T \frac{\partial \overline{T}}{\partial z}) \quad (II.7)$$

où  $F_c$  est le flux ( $\text{kg m}^{-2} \text{s}^{-1}$ ) du composé de concentration moyenne volumique  $C$  ( $\text{m}^3 \text{m}^{-3}$ ),  $D_c$  est la diffusivité moléculaire du composé gazeux considéré ( $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ ),  $H$  est le flux de chaleur sensible ( $\text{W m}^{-2}$ ),  $\overline{T}$  et  $t'$  sont respectivement les composantes moyennes et fluctuantes de la température,  $C_p$  est la capacité calorifique de l'air à pression constante ( $\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}$ ), et  $K$  est la diffusivité "thermique" moléculaire de l'air ( $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ ). Par convention, le flux de composé gazeux ou de chaleur est compté positivement lorsqu'il est dirigé vers le haut.

Dans la CLS, la diffusion moléculaire est négligeable devant la "diffusion" turbulente, ce qui simplifie les Eqns. II.6-II.7. Le spectre d'énergie des flux dans la CLS montre en effet que le poids des fréquences correspondant à la diffusion moléculaire est tout à fait négligeable dans le calcul du flux. La diffusion moléculaire reprend de l'importance à proximité des surfaces lorsque le flux turbulent est plus faible, et en particulier dans le couvert végétal.

En général, à proximité de la surface, la vitesse verticale moyenne  $\bar{w}$  peut-être considérée comme nulle au-dessus de couverts homogènes, (Lee, 1998). Toutefois, dans un certain nombre de cas,  $\bar{w}$  n'est pas nulle, par exemple lors d'un changement de rugosité (Finnigan et Brunet, 1995). Nous approfondirons le cas du changement de rugosité (Chapitre II.2) qui est un cas intéressant du point de vue du dépôt sec d'ammoniac à proximité des sources.

Plus haut dans l'atmosphère en condition de convection libre, on observe des remontées rapides d'air chaud et des descentes lentes d'air froid (Lee, 1998). La vitesse moyenne verticale est nulle à condition d'échantillonner sur une période suffisamment longue pour qu'un nombre important de structures convectives passent par le point de mesure. Cette variabilité spatiale de  $\bar{w}$  se reconnaît dans la non-symétrie de la distribution de probabilité de  $w$  dans la CCM (Luhar et Britter, 1989).

On peut donc considérer  $\bar{w}$  comme nulle près de la surface, et les Eqns. II.6-II.7 se simplifient pour donner dans la CLS :

$$F_c = \rho \overline{w'c'} \quad (II.8)$$

$$H = \rho C_p \overline{w't'} \quad (II.9)$$

Ces flux peuvent directement être mesurés à partir de méthodes de corrélations turbulentes (Kaimal et Finnigan, 1994). Toutefois pour l'ammoniac, ces méthodes sont difficilement applicables aujourd'hui, du fait de la forte réactivité du gaz, et d'autres méthodes ayant des périodes d'échantillonnage plus longues sont nécessaires. Notamment, des modèles de diffusion turbulente permettent d'exprimer le flux en fonction des gradients de grandeurs moyennes dans la CLS. Le chapitre suivant décrit ces modèles.

#### II.1.4 Relations flux-gradient

Par analogie avec la diffusion moléculaire, on définit dans la CLS des diffusivités turbulentes pour la quantité de mouvement, la chaleur et tout autre scalaire passif. Celles-ci relient les flux turbulents exprimés par les Eqns. II.8-II.9, aux gradients des grandeurs moyennes :

$$F_c = -\rho K_c \frac{\partial \bar{C}}{\partial z} \quad (II.10)$$

$$H = -\rho C_p K_h \frac{\partial \bar{T}}{\partial z} \quad (II.11)$$

Où  $K_c$ ,  $K_h$  sont respectivement les *diffusivités turbulentes verticales* pour les gaz et la chaleur. Nous les noterons parfois  $K_z$  dans la suite du document. Elles sont typiquement de trois ordres de grandeur supérieurs aux diffusivités moléculaires correspondantes.

Une hypothèse importante dans la CLS est que les diffusivités turbulentes pour tous les scalaires passifs sont identiques. Cette hypothèse se justifie si la densité du gaz considérée n'est pas beaucoup plus grande que celle de l'air. Ceci exclut notamment les gaz lourds (Gopalakrishnan *et al.*, 1997) et les gaz dont la température est très différente de la température de l'air (van Dop, 1992).

La Figure II.6 illustre le mécanisme de diffusion turbulente, et montre pourquoi il y a analogie entre flux turbulent et diffusion suivant le gradient moyen. Une particule située en A, dont la fluctuation de vitesse  $w'$  est positive aura une concentration plus élevée que la valeur moyenne entre A et B, et donc un «  $c'$  positif ». De même, une parcelle d'air située en B avec un  $w'$  négatif aura une concentration inférieure à la moyenne AB. Ainsi un gradient négatif de concentration moyenne entraîne un flux  $\bar{w}'c'$  positif.

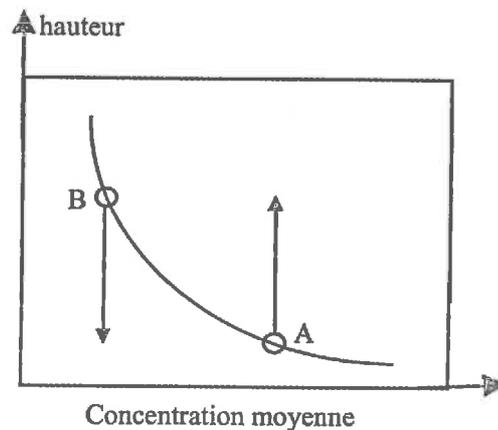


Figure II.6. Illustration de la relation entre flux turbulent et processus de diffusion. Le profil est typique d'un profil de concentration en vapeur d'eau ou température moyenne à proximité de la surface de jour. Voir dans le texte pour une explication.

L'analogie entre échange turbulent et diffusion moléculaire se justifie par le fait que les deux mécanismes sont des *processus diffusifs*, résultant de la combinaison d'un très grand nombre de trajectoires de "particules fluides" pour la turbulence, et de molécules pour la diffusion moléculaire. Pour la diffusion moléculaire, le libre parcours moyen des molécules est bien plus petite que l'échelle sur laquelle les gradients moyens varient significativement.

L'analogie est justifiée lorsque l'échelle à laquelle se font les échanges turbulents (l'échelle caractéristique des tourbillons porteurs d'énergie), est très inférieure à l'échelle de longueur pour laquelle les gradients de valeurs moyennes changent de façon significative

(Corrsin, 1974).

Une formulation différente de ce critère nous vient de Wyngaard (1982) qui a montré que l'analogie est justifiée si les termes de production et de dissipation des flux turbulents étaient localement en équilibre. Kaimal et Finnigan (1994) prolonge le raisonnement en indiquant qu'il faut également que le terme d'advection du flux turbulent soit négligeable. Ces définitions rejoignent celle de Corrsin (1974), puisqu'elles indiquent que la turbulence porteuse des échanges est générée localement, et n'est pas transférée par des mouvements de plus grande échelle. En d'autres termes, il n'y a pas de flux d'énergie cinétique de la turbulence (ECT), celle-ci est produite et dissipée localement.

Un autre argument vient de Raupach (1989), qui reprend la théorie de Taylor de la diffusion par mouvements continus (Taylor, 1921 ; Tennekes, 1982), pour montrer que l'analogie entre dispersion et diffusion turbulente n'est correcte que loin de la source de la quantité considérée. Dans la CLS, l'analogie est justifiée, et cohérente avec les mesures s'il n'existe pas de perturbations extérieures (collines, changement de rugosité) (Garratt, 1992 ; McNaughton, et Laubach, 1998), mais dans les couverts végétaux, ces conditions sont mises en défaut, par la combinaison de la proximité des sources, et de l'intermittence des échanges (Raupach, 1989; Denmead et Bradley, 1985). Nous reviendrons plus en détail sur ce point dans le chapitre III.

### II.1.5 Relations de similitude dans la CLS

Nous ne reviendrons pas sur la théorie maintenant classique des similitudes de Monin et Obukhov (Coantic, 1976 ; Garratt, 1992 ; Kaimal et Finnigan, 1994) qui définit la variation des diffusivités turbulentes  $K_c$  et  $K_h$  en fonction du paramètre de stabilité  $Z/L$ , où  $L$  est la longueur de Monin et Obukhov. Nous nous contenterons de définir les termes nécessaires à l'étude de la dispersion de l'ammoniac dans la CLS, ainsi que certains points qui nécessitent éclaircissement ou discussion.

Dans la CLS, au-dessus d'un couvert végétal, en conditions stationnaires et horizontalement homogènes, 5 paramètres déterminent entièrement l'écoulement. Il s'agit de la hauteur  $z - d$ , la tension de frottement de surface  $\tau_0 / \rho$ , le paramètre de flottabilité  $g / \bar{\theta}$ , et les flux de chaleur latente  $\lambda E / \rho$  et sensible  $H / \rho C_p$ . Cette combinaison de paramètres permet de construire trois échelles uniques : l'échelle de vitesse  $u_* = \sqrt{\tau_0 / \rho}$  l'échelle de température  $T_* = -H / \rho C_p u_*$ , et l'échelle de longueur  $L$ . Ici  $d$  est la hauteur de déplacement, liée à la présence du couvert,  $u_*$  est la vitesse de frottement,  $\lambda$  est la capacité calorifique de l'eau à pression constante,  $E$  est le flux de vapeur d'eau, et  $L$  est la longueur de Monin et Obukhov.  $L$  est égal au rapport de la production (ou destruction) d'énergie cinétique de la turbulence par le travail des forces d'Archimède sur celle par le mouvement turbulent (Coantic, 1976 ; voir aussi Annexe A6). Le paramètre de stabilité  $Z/L$  est défini par (Garratt, 1992) :

$$\frac{z-d}{L} = -\frac{g}{\rho} \frac{H / (C_p T) + 0.61 E}{u_*^3 / kz} \quad (II.12)$$

Le plus souvent, la contribution du flux de chaleur latente est négligée devant celle du flux de chaleur sensible. Cette approximation est justifiée à moins de 10%, pour des rapports de Bowen ( $H/LE$ , où  $L$  est la chaleur latente de vaporisation de l'eau) compris entre 0.6 et 1.5 (Garratt, 1992 ; p 37). Les cas où le flux de chaleur latente ne devrait pas être négligé sont essentiellement les systèmes saturés en eau, combinés avec des températures de surface élevées, tels que les forêts équatoriales, les rizières, ou les lacs dans la zone équatoriale humide. En conditions extrêmes, les corrections sont au maximum de 50%, et seront négligées dans cette étude.

Le paramètre de stabilité  $Z/L$  est négatif lorsque la stratification est instable, et positif pour une stratification stable. En conditions de stratification neutre,  $Z/L$  est nul. La théorie de Monin et Obukhov définit les diffusivités turbulentes pour les scalaires passifs, à partir d'une théorie de longueur de mélange, en y intégrant des fonctions de correction universelles qui dépendent du paramètre de stabilité  $Z/L$  (Kaimal et Finnigan, 1994) :

$$K_h = K_c = \frac{k u_* (z-d)}{\phi_c((z-d)/L)} \quad (II.13)$$

où  $k$  est la constante de von Kármán,  $k = 0.4$  dans la CLS et  $\phi_c$  est le gradient adimensionné de concentration. Ici l'hypothèse est faite qu'il y a équivalence entre  $\phi_h$  et  $\phi_c$ . La diffusivité turbulente pour la quantité de mouvement est définie de la même manière. Mais il n'y a pas similitude entre transfert de quantité de mouvement et transfert de scalaire passif, essentiellement à cause de l'action des forces de pression et de la localisation des sources et puits à la surface. Ainsi, l'expression du paramètre de correction  $\phi_m$  est différente de  $\phi_h$  et  $\phi_c$  (Kaimal et Finnigan, 1994)

Les fonctions de correction  $\phi_m$ ,  $\phi_c$ ,  $\phi_h$ , ont été paramétrées par de nombreux auteurs, à partir de plusieurs jeux de données expérimentaux (Dyer et Hicks, 1970 ; Dyer, 1974). Toutefois, d'une part, les fonctions  $\phi_h$  ayant été estimées à partir des mesures de flux de chaleur sensible, il convient de rappeler que l'expression de  $\phi_c$  résulte de l'hypothèse  $\phi_c = \phi_h$ , et d'autre part, il est étonnant de constater que les paramétrisations sont assez différentes selon les auteurs (Garratt, 1992 ; Annexe A4). Nous retiendrons les expressions de Dyer (1974), basées sur un grand nombre de données, en gardant à l'esprit que celles-ci ont été obtenues sur sol nu ou prairie (Garratt, 1992, p 52) :

$$\phi_m = \begin{cases} (1 - 16 (z-d) / L)^{-1/4} & -2 \leq (z-d) / L \leq 0 \\ (1 + 5 (z-d) / L) & 0 \leq (z-d) / L \leq 1 \end{cases} \quad (II.14a)$$

$$(II.14b)$$

$$\phi_h = \phi_c = \begin{cases} (1 - 16 (z-d) / L)^{-1/2} & -2 \leq (z-d) / L \leq 0 \\ (1 + 5 (z-d) / L) & 0 \leq (z-d) / L \leq 1 \end{cases} \quad (II.14c)$$

$$(II.14d)$$

Où l'on voit qu'en conditions de neutralité thermique, les fonctions de correction tendent toutes vers 1. Dans l'Eqn. II.14a d'autres auteurs donnent des valeurs supérieures à 16 (de l'ordre de 20), tandis que dans l'Eqn II.14c d'autres donnent des valeurs inférieures à 16 (autour de 12). De même la valeur 5 est un minimum parmi les différentes études (Garratt, 1992).

Si la majorité s'accorde sur les paramétrisations des Eqns. II.14a,b,c,d, dans les limites  $-2 \leq Z/L \leq 1$ , le comportement asymptotique de ces fonctions pour des cas de très forte instabilité et de très forte stabilité n'est pas déterminé, car il faut alors introduire d'autres paramètres que  $Z/L$ : En conditions très instables un régime de convection libre s'installe pour lequel les échelles de vitesse et de température sont différentes (Wyngaard *et al.*, 1971). En conditions de forte stabilité, l'écoulement devient quasi-laminaire, mais perturbé par des phénomènes d'intermittence qui rendent ces relations erronées à proximité de la surface (Denmead et Bradley, 1985).

### II.1.6 Profils de vitesse du vent dans la CLS

L'intensité du vent et son profil au-dessus de la surface a une influence importante sur la dispersion de polluants émis depuis la surface. En condition de neutralité thermique, pour une surface homogène, le profil de vitesse du vent dans la CLS prend la forme logarithmique bien connue :

$$\overline{u}(z) = \frac{u_*}{k} \ln\left(\frac{z-d}{z_0}\right) \quad (II.15)$$

où  $z_0$  est la *longueur de rugosité dynamique*. Ce profil de vitesse logarithmique, ou profil de paroi, se retrouve par des considérations d'analyse dimensionnelle (voir par exemple Raupach *et al.*, 1991). Lorsque la stratification est stable ou instable, l'intégration des gradients de vitesse conduit à des expressions faisant intervenir le paramètre de stabilité (voir par exemple Garratt, 1992) :

$$\overline{u}(z) = \frac{u_*}{k} \left\{ \ln\left(\frac{z-d}{z_0}\right) - \Psi_m((z-d)/L) + \Psi_m(z_0/L) \right\} \quad (II.16a)$$

$$\Psi_m(\xi) = \begin{cases} 2 \ln[(1+x)/2] + \ln[(1+x^2)/2] - 2 \operatorname{atan} x + \pi/2 & -2 \leq \xi \leq 0 \\ -5 \xi & 0 \leq \xi \leq 1 \end{cases} \quad (II.16b)$$

Dans l'Eqn. II.16a, le terme  $\Psi_m(z_0/L)$  est souvent négligé, car il est petit comparé devant le terme précédent, et dans l'Eqn. II.16b,  $x = (1 - 16 \xi)$ . Noter que cette formulation n'est valable qu'en condition modérément stable ou instable. L'Eqn. II.16a montre par ailleurs que la stratification thermique des basses couches de l'atmosphère influence le profil de vitesse du vent, comme l'illustre la Figure II.7.

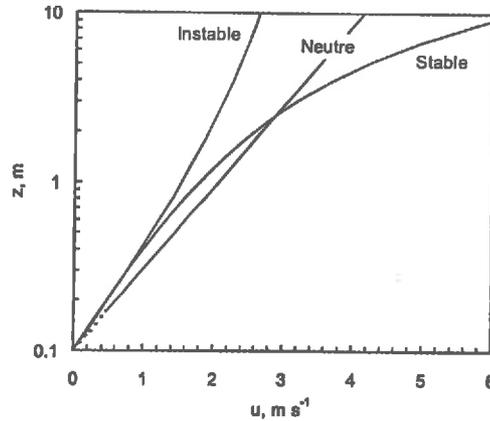


Figure II.7. Profil de vitesse du vent caractéristique au-dessus d'un couvert de maïs développé, pour une stratification stable, neutre, et instable. Les profils sont calculés à partir des Eqns. II.16a et II.16b, avec  $z_0 = 0.1$  m. En conditions stables,  $u_* = 0.26$  m s<sup>-1</sup>,  $L = 10$  m. En conditions neutres,  $u_* = 0.36$  m s<sup>-1</sup>,  $L = \infty$  m. En conditions instables,  $u_* = 0.30$  m s<sup>-1</sup>,  $L = -10$  m. Ici  $Z$  est la hauteur au-dessus de la hauteur de déplacement.

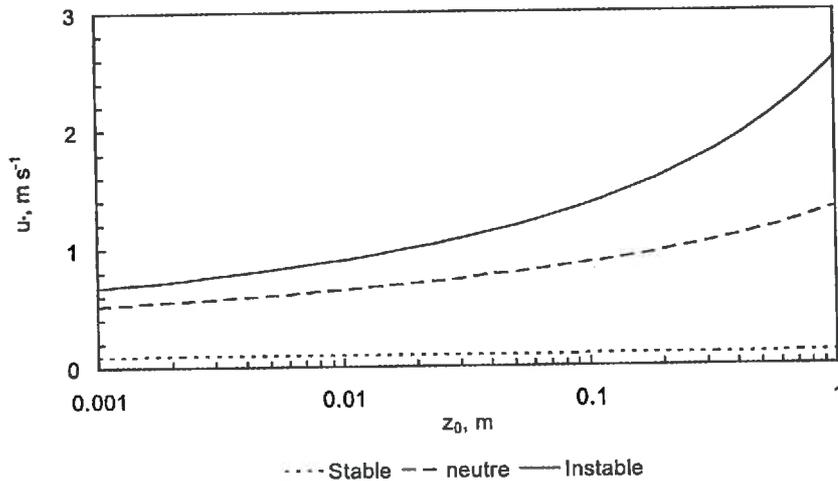
Pour une même vitesse du vent à 2 m, le gradient de vitesse sera plus fort près de la surface et plus faible en altitude dans le cas instable et inversement dans le cas stable (Figure II.7). Toutefois, les conditions de stabilité thermique ne sont pas totalement découplées des intensités du vent : plus les conditions sont éloignées de la neutralité thermique, moins  $u_*$  peut être grand. En conditions extrêmement stables,  $u_*$  tend vers 0, mais les Eqns. II.16a,b ne sont alors plus valables.

En plus de l'état de stratification thermique, le profil de vent dans la CLS dépend fortement de  $z_0$ ,  $d$ , et  $u_*$ . Ici,  $d$  peut-être assimilé à la hauteur moyenne d'absorption de la quantité de mouvement par le couvert végétal (Thom, 1975). Ces paramètres ne sont pas indépendants, et en particulier,  $z_0$  et  $d$  sont reliés à la structure géométrique des éléments du couvert végétal. Il est couramment admis que  $z_0$  est de l'ordre de  $0.1 h$ , et  $d$  de l'ordre de  $0.75 h$  (Thom, 1975 ; Raupach *et al.*, 1991), où  $h$  est la hauteur du couvert végétal.

Toutefois,  $z_0$  et  $d$  varient en fonction d'autres paramètres de la structure géométrique du couvert tels que la densité de rugosité  $\lambda_d$  (Raupach *et al.*, 1991), mais aussi la distribution des surfaces foliaires (Shaw et Pereira, 1982). Souvent l'hypothèse d'un écoulement dynamiquement rugueux est implicite, c'est à dire que l'on suppose que  $z_0$  et  $d$  ne dépendent pas du nombre de Reynolds de rugosité  $h_+ = h u_* / \nu$ , et donc de l'écoulement (Raupach *et al.*, 1991). Toutefois plusieurs auteurs ont observé une variation de  $z_0/h$  et  $d/h$  en fonction de la vitesse du vent : Bosveld (1997) a mesuré sur une douglaie ( $h = 18$  m), en utilisant quatre méthodes différentes, une décroissance de  $d/h$  avec la vitesse du vent au sommet du couvert ( $U_h$ ). Ils ont observé que lorsque  $U_h$  variait entre 1 et 5 m s<sup>-1</sup>,  $d/h$  diminuait de 0.9 à 0.7. alors que  $z_0/h$  augmentait de 0.07 à 0.14.

En général, la vitesse de frottement  $u_*$  est associée à la longueur de rugosité  $z_0$ . Ce point de vue se justifie par le fait qu'à méso-échelle, la vitesse du vent en altitude varie peu, alors

que la rugosité de surface change avec  $h$ . L'Eqn. II.16 montre qu'en conditions de neutralité, la vitesse de frottement varie comme le logarithme népérien de la longueur de rugosité. En conditions non neutres, le raisonnement tient toujours, mais il faut ajouter à la variation de rugosité, la variation de flux de chaleur de surface susceptible de modifier l'état de stratification localement (Garratt, 1990 ; Itier *et al.*, 1994). La Figure II.8, montre pour une vitesse du vent fixe à 50 m d'altitude, la variation de  $u_*$  en fonction de  $z_0$  pour différentes conditions de stratification de l'atmosphère.



**Figure II.8.** Vitesse de frottement  $u_*$  en fonction de la longueur de rugosité  $z_0$  pour différentes conditions de stratification thermique. La vitesse du vent à 50 m au-dessus du couvert est fixée à  $15 \text{ m s}^{-1}$ . Les cas stables, neutres et instables correspondent respectivement à  $L = 10 \text{ m}$ ,  $L = -1 \times 10^5 \text{ m}$ , et  $L = -10 \text{ m}$ .

### II.1.7 Variances de vitesse du vent dans la CLS

Les variances des composantes de la vitesse du vent  $\sigma_u^2$ ,  $\sigma_v^2$ , et  $\sigma_w^2$ , sont des paramètres clés pour la dispersion d'un polluant à la surface terrestre (Gryning *et al.*, 1987 ; Thomson, 1987). Comme il l'a été évoqué précédemment, l'intensité des échanges dépend de la fluctuation de vitesse verticale du vent. De même, la théorie statistique de la turbulence montre qu'en conditions stationnaires et homogènes la diffusivité turbulente verticale  $K_z$  s'exprime en fonction de  $\sigma_w^2$  et de l'échelle de temps lagrangienne verticale  $T_{Lw}$  (Taylor, 1921 ; Tennekes, 1982 ; Durbin, 1984 ; voir Chapitre III).

Il existe de nombreuses références dans la littérature sur les variances de vitesses du vent mesurées en soufflerie mais aussi au-dessus de couverts végétaux de différentes tailles. Les mesures en soufflerie sont extrêmement utiles pour déterminer la variabilité de  $\sigma_u^2$ ,  $\sigma_v^2$ , et  $\sigma_w^2$  en fonction du type de surface. Mais les mesures en conditions réelles sont essentielles, car elles intègrent des processus de grande échelle qui ne peuvent être reproduits en soufflerie, tels que la convection thermique ou les perturbations liées à la topographie. Une analyse comparée entre mesures dans la CLS et en soufflerie peut être trouvée dans Raupach *et al.* (1991). Le Tableau II.1 donne plusieurs exemples de mesures dans différentes conditions.

Tableau II.1. Ecart types des composantes de la vitesse du vent  $\sigma_u$ ,  $\sigma_v$ , et  $\sigma_w$  dans la couche de surface et dans la couche de mélange. Les mesures ont été réalisées au laboratoire, au-dessus d'un couvert végétal, ou dans la couche limite de mélange en condition de neutralité thermique (sauf indication contraire).

Type d'écoulement	$\sigma_u / u_* (w_*)^1$	$\sigma_v / u_* (w_*)^1$	$\sigma_w / u_* (w_*)^1$	Auteurs
<b>Soufflerie</b>				
Surface rugueuse	2.06		1.21	Raupach (1981)
Blé	2.20		1.26	Raupach (1981)
<b>Couche de surface</b>				
Prairie plane	2.39 ± 0.03	1.92 ± 0.05	1.25 ± 0.03	Panofsky et Dutton (1984) <sup>2</sup>
Terrain accidenté	3.4 ± 1.0	2.9 ± 0.9	1.23 ± 0.02	Panofsky et Dutton (1984) <sup>2</sup>
Maïs	1.8		1.2	Shaw dans Raupach (1988)
Maïs	2.61 ± 0.31		1.35 ± 0.08	Brunet et Collineau (1994) <sup>3</sup>
Forêt	1.9	1.5	1.2	Moga dans Raupach (1988)
Prairie désertique <sup>4</sup>	2.89 ± 0.29	2.18 ± 0.52	1.13 ± 0.10	Yee <i>et al.</i> (1995)
zone urbaine	2.04 ± 0.26	1.94 ± 0.16	1.32 ± 0.17	Oikawa et Yan (1995)
<b>Couche de mélange <sup>1</sup></b>				
Instable	-	-	0.1 - 0.6	Lenschow <i>et al.</i> (1980) <sup>5</sup>
Instable	0.6	0.6	0.1 - 0.6	Caughey et Palmer (1979) <sup>5</sup>

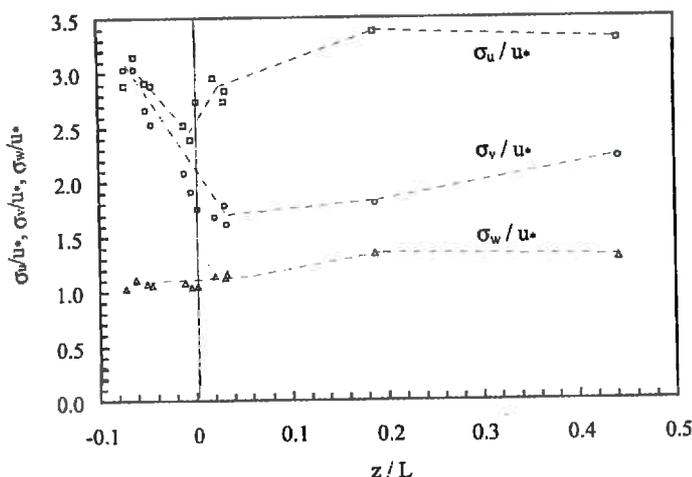
<sup>1</sup> Dans la couche de surface, et en soufflerie, l'échelle de vitesse est la vitesse frottement  $u_*$ , alors que dans la couche de mélange, c'est la vitesse convective,  $w_*$  qui est utilisée.  $w_*$  est définie par  $w_*^3 = g \overline{w' \theta_v'} z_i / \theta_v$  (Garratt 1992). <sup>2</sup> Cité dans Kaimal et Finnigan (1994). <sup>3</sup> Mesures à  $z/h = 4.6$  au-dessus d'un couvert de maïs de 1.15 m. <sup>4</sup> Mesures à 3 m de hauteur sur prairie désertique, avec 5 km de fetch, et présence d'arbustes épars ( $h \sim 0.5$  à 1 m) en condition modérément instable à relativement stable. <sup>5</sup> Cité dans Garratt (1992).

Les observations faites dans l'atmosphère ou en laboratoire, indiquent toutes que les rapports  $\sigma_u / u_*$ ,  $\sigma_v / u_*$ , et  $\sigma_w / u_*$  varient peu dans la couche de surface, et augmentent à proximité de celle-ci (Raupach *et al.*, 1996 ; Kaimal et Finnigan, 1994 ; Wang *et al.*, 1995). Les mesures suggèrent que  $\sigma_u / u_* = 1.8 - 2.4$  dans la couche de surface (Tableau II.1). Par ailleurs, comme le suggèrent les mesures de Panofsky et Dutton (1984) sur prairie,  $\sigma_u / u_*$  et  $\sigma_v / u_*$  semblent plus sensibles à la distribution horizontale des éléments de rugosité qu'à leur hauteur. En revanche,  $\sigma_w / u_*$  semble quant à lui moins dépendant des situations, et se situe dans une gamme variant de 1.2 à 1.35. Pour finir  $\sigma_v / u_*$  varie entre 1.5 à 2.9. Noter que dans l'atmosphère,  $\sigma_v / u_*$  est influencé par le vent géostrophique (Garratt, 1992).

Les résultats du Tableau II.1 confortent les résultats théoriques de Perry *et al.* (1986, cité dans Raupach *et al.*, 1991), qui montrent par des considérations de similitudes que  $\sigma_u / u_*$  et  $\sigma_v / u_*$  sont plus sensibles à la géométrie de la surface que ne l'est  $\sigma_w / u_*$ . De façon plus générale, les fluctuations de vitesse horizontales sont plus sensibles aux perturbations de l'écoulement que ne le sont les fluctuations verticales, que ces perturbations viennent de la surface (Raupach *et al.*, 1996), ou d'interaction avec les structures tourbillonnaires à grande échelle (Högström *et al.*, 1989). On note en effet dans le Tableau II.1, une grande variabilité de  $\sigma_u / u_*$ , dans les mesures en conditions réelles. On peut expliquer la différence de comportement entre  $\sigma_u / u_*$  et  $\sigma_w / u_*$  par la proximité de la surface qui limite l'amplitude des mouvements verticaux : le nombre de degrés de liberté passe de 3 à 2. Les perturbations sont alors transférées dans les mouvements horizontaux. Cette argumentation est appuyée par le fait que  $\sigma_w$  est maximal à mi-hauteur de la couche limite planétaire, là où le nombre de degrés de liberté est maximal (Garratt, 1992).

La Figure II.9 illustre les propos précédents. Elle montre le détail des données de Yee *et*

*al.* (1995), présentées dans le Tableau II.1. Ces données ont été obtenues dans des conditions micrométéorologiques idéales. On constate deux choses essentielles sur cette figure ; d'une part  $\sigma_w$  varie peu, y compris en conditions stables ( $\sigma_w \# 1.25 u^*$ ), et d'autre part,  $\sigma_u$  et  $\sigma_v$  varient eux beaucoup, puisque  $\sigma_v/u^*$  double presque entre régime neutre et légèrement instable. Ce résultat s'explique par l'existence d'une surface plane semi-désertique sur plus de 5 km, favorisant en régime d'instabilité l'apparition de cellules convectives de grandes tailles qui vont accroître  $\sigma_u/u^*$  et  $\sigma_v/u^*$ .



**Figure II.9.** Variances de vitesse du vent, en fonction de  $Z/L$ . Les points correspondent aux mesures de Yee *et al.* (1995), mesurées sur prairie semi-désertique ( $z_0$  allant de 0.07 à 0.15 m), avec des arbustes épars de 0.5 à 1 m de hauteur, et un fetch supérieur à 5 km.

Peu de données existent sur les statistiques de l'écoulement à des altitudes plus élevées dans l'atmosphère. Les principaux résultats ont été obtenus en laboratoire (Willis et Deardorf, 1981), et certains en atmosphère libre (Caughey et Palmer, 1979 ; Lenschow *et al.*, 1980). Dans la couche de mélange, de jour, la vitesse de frottement n'est pas une échelle de vitesse adaptée, et la vitesse de convection  $w^*$  lui est préférée (Tableau II.1 ; Garratt, 1992). Dans cette couche, les rapports  $\sigma_u/w^*$ , et  $\sigma_v/w^*$ , sont constants et égaux à 0.6, alors que  $\sigma_w/w^*$  évolue assez nettement avec la hauteur et atteint souvent un maximum à mi-hauteur (Garratt, 1992).

Il faut garder à l'esprit que  $\sigma_w$  est un paramètre donnant une information partielle sur les fluctuations temporelles de l'écoulement. La représentation spectrale de l'énergie associée à la turbulence est une représentation plus complète (Kaimal et Finnigan, 1994). De plus, dans l'atmosphère, les distributions de vitesse verticale du vent ne sont pas gaussiennes (Luhar et Britter, 1989). En particulier, le mode (maximum de la distribution) de la distribution est négatif et tend vers 0 près de la surface du fait de la conservation de la quantité de mouvement, i.e. les mouvements d'air descendant se transforment en mouvements horizontaux (Luhar et Britter, 1989).

La théorie des similitudes de Monin et Obukhov présentée dans le Chapitre II.1.5 s'applique à  $\sigma_w$  dans la CLS, et à  $\sigma_u$ ,  $\sigma_v$ ,  $\sigma_w$  dans la couche de mélange. Il est possible, comme pour  $\bar{u}$ , de définir des fonctions de correction pour les variances de vitesse verticale du vent dans la CLS, et les autres composantes dans la couche de mélange, et d'estimer ainsi leurs variations en fonction du paramètre de stabilité. La forme générale pour la composante verticale dans la CLS est la suivante :

$$\frac{\sigma_w}{u_*} = \phi_w \quad (II.17)$$

où  $\phi_w$  est une fonction du paramètre de stabilité  $Z/L$ . Les composantes horizontales  $\sigma_u$  et  $\sigma_v$  ne vérifient pas les mêmes similitudes dans la CLS (Figure II.9), car ils dépendent des mouvements d'air à plus grande échelle de la CLA. Ils sont donc adimensionnés par les paramètres d'échelle de la CLA :  $z_i$  ou  $h_n$  et  $w_*$ . En conditions instables, dans la CCM,  $L$  n'est plus un paramètre d'échelle, et seule la hauteur  $z_i$  intervient, tandis qu'en conditions stables, la hauteur de la couche limite  $h_n$  est également un paramètre d'échelle important. Les différentes formes de  $\phi_w$  que l'on trouve dans la littérature sont reportées dans le Tableau II.2.

Dans la CLS, lorsque la stratification thermique est faible,  $\sigma_w/u_*$  est supérieur à sa valeur à la neutralité (Tableau II.2). Le Tableau II.2 indique également à quel point les paramétrisations des écart-types de la vitesse du vent sont variables, et dépendent des conditions locales. En conditions très stables (couche limite nocturne),  $\sigma_w$  et  $\sigma_{u,v}$  décroissent avec l'altitude et atteignent zéro en haut de la couche limite  $h_n$ , où il n'y a plus de turbulence et où donc les flux sont nuls.

## II.1. Dispersion de polluants dans la couche limite atmosphérique

**Tableau II.2.** Expression des profils verticaux de  $\sigma_u$ ,  $\sigma_v$ , et  $\sigma_w$ , dans différentes couches de l'atmosphère, et dans différentes conditions de stratification thermique. Noter que  $\sigma_u$  et  $\sigma_v$  ne vérifient pas la théorie de similitude de Monin et Obukhov dans la couche limite de surface, c'est pourquoi ils ne s'expriment pas uniquement en fonction de  $Z/L$  et  $u_*$ .

Type d'écoulement	$\sigma_u / u_*$	$\sigma_v / u_*$	$\sigma_w / u_*$	Auteurs
<b>Couche limite de surface</b>				
Convection libre	$0.6 w_* / u_*$	$0.6 w_* / u_*$	$1.8(-Z/L)^{1/3}$ , $Z/L < -1$	Panofsky <i>et al.</i> (1977) <sup>1</sup>
Instable	$(12 - 0.5 z_i / L)^{1/3}$	$(12 - 0.5 z_i / L)^{1/3}$	$1.25(1 - 3Z/L)^{1/3}$	Panofsky <i>et al.</i> (1977); Ley <i>et al.</i> (1983)
Instable	$(2 + 0.35w_*^2 / u_*^2)^{1/2}$	$(2 + 0.35w_*^2 / u_*^2)^{1/2}$	$1.48(1 - 3Z/L)^{1/3}$	Flesch et Wilson (1995) <sup>2</sup>
Instable			$1.25(1 - 4.1Z/L)^{1/3}$	Leclerc et Thurtel (1990)
Instable			$1.25(1 - 3Z/L)^{1/3}$	Kaimal et Finnigan (1994)
Stable et instable			$1.3(\phi_m - 2.5Z/L)^{1/3}$	Merry et Panofsky (1976) <sup>1</sup>
Stable			$1.25(1 + 0.2Z/L)$	Kaimal et Finnigan (1994)
Stable	2	1.41	1.3	Flesch et Wilson (1995) <sup>3</sup>
<b>Couche de mélange</b>				
Instable	$0.6 w_* / u_*$	$0.6 w_* / u_*$	$1.08(z/z_j)^{1/3}(1 - z/z_j)^{1/3}$	Sorbjan (1990) <sup>1</sup>
Instable		$[0.35(-z_i/kL)^{2/3} + (2 - z/z_j)]^{1/2}$	$[1.5(-z/kL)^{2/3} \times \exp(-2z/z_j) + (1.7 - z/z_j)]^{1/2}$	Gryning <i>et al.</i> (1987) <sup>4</sup>
Instable	$(0.4w_*^2 + 3u_*^2)^{1/2}$	$(0.4w_*^2 + 3u_*^2)^{1/2}$	$(0.4w_*^2 + 1.1u_*^2)^{1/2}$	Ryall <i>et al.</i> (1998)
Neutre	$\frac{22}{(1 + 15 z / z_j)^{1/3}}$	-	1.3	Davis (1983)
Neutre			$1.1(z/z_j)^{2/3}(1 - z/z_j)$	Sawford et Guest (1987) <sup>5</sup>
			$\times [1 - \frac{4(z/z_j - 0.3)}{(2 +  z/z_j - 0.3 )^2}]$	
Stable	$2.3(1 - z/h_n)$		$1.5(1 - z/h_n)$	Caughey et Palmer (1979) <sup>1</sup> ; Ley <i>et al.</i> (1983)
Stable		$1.41(1 - z/h_n)$	$1.3(1 - z/h_n)^{3/4}$	Gryning <i>et al.</i> (1987)
Stable	1	1	0.65	Ryall <i>et al.</i> (1998)

Ici  $w_*$  est défini par  $w_*^3 = g w' \theta_v^{-1} z_i / \theta_v$  (Garratt, 1992). On peut l'exprimer sous la forme  $w_*^3 = -u_*^3 z_i / (Lk)$  (Flesch et Wilson, 1995).  $h_n$  est la hauteur de la couche limite stable et  $z_i$  la hauteur de la couche limite instable.  $\phi_m$  est défini dans les Eqns. II.14a,b. <sup>1</sup> Cité dans Garratt (1992). <sup>2</sup> basé sur la formulation de Gryning *et al.* (1987), en prenant  $z/z_j = 0$ . <sup>3</sup> basé sur les profils de Wyngaard *et al.* (1974), Hanna (1982) et Gryning *et al.* (1987), avec  $z/h_n = 0$ . <sup>4</sup> Cité dans Luhar et Britter (1989). <sup>5</sup> basé sur un modèle empirique de Brost *et al.* (1982) pour la production par frottement, et Baerentsen et Berkowics (1984) pour la production par poussée d'Archimède.

La Figure II.10 illustre la forme générale du profil de  $\sigma_w / u_*$  dans la couche limite planétaire. Ces profils sont basés sur les expressions de Kaimal et Finnigan (1994) dans la CLS, et de Gryning *et al.* (1987) au-dessus (Tableau II.2). On note que le profil est à peu près constant dans la couche de surface, alors qu'il augmente de façon notable dans le haut de la couche limite atmosphérique. On remarque également que les expressions utilisées dans la CLS surestiment très fortement les expressions de la couche de mélange pour  $z / z_i \geq 20\%$  ou  $z / h_n \geq 20\%$ .

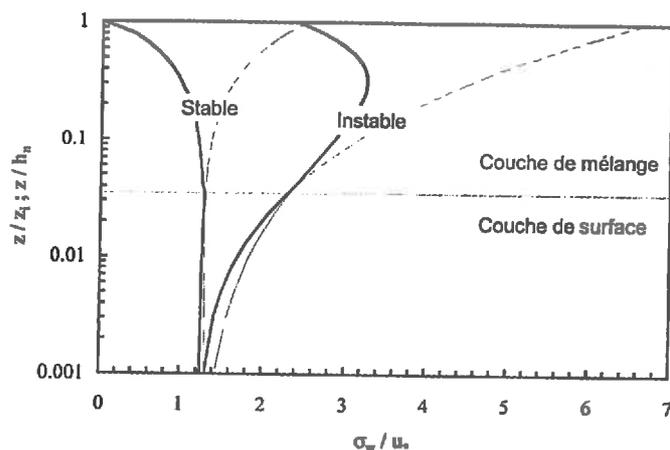


Figure II.10. Profils de  $\sigma_w / u_*$  dans la CLS et la Couche de mélange. Profils obtenus (en gras) à partir d'une paramétrisation de Kaimal et Finnigan (1994) dans la CLS (pointillés dans la couche de mélange), et d'une paramétrisation de Gryning *et al.* (1987) dans la couche de mélange (tirets dans la CLS). Le cas stable correspond à  $h_n / L = 5$  et le cas instable à  $z_i / L = -50$ .

Les paramétrisations discutées dans le Tableau II.2 sont relativement bonnes à proximité de la surface, en conditions homogènes et stationnaires. Toutefois, il est toujours recommandé de mesurer directement les statistiques du vent localement car c'est la non-stationnarité des écoulements de surface liée aux mouvements de grande échelle, qui peut entraîner la variabilité de  $\sigma_w$  et plus particulièrement de  $\sigma_{u,v}$  (McNaughton et Laubach, 1998). Dans la suite du document, pour garder une cohérence avec les Eqns. II.14a,b,c,d, nous retiendrons les fonctions de correction  $\phi_w$  de Kaimal et Finnigan (1994) (Tableau II.2) :

$$\phi_w = \begin{cases} 1.25 (1 - 3 (z-d) / L)^{1/3} & -2 \leq (z-d) / L \leq 0 \\ 1.25 (1 + 0.2 (z-d) / L) & 0 \leq (z-d) / L \leq 1 \end{cases} \quad (II.18)$$

Dans le cadre de l'étude des dépôts secs d'ammoniac avec la végétation, les distances horizontales mises en jeu sont de quelques centaines de mètres, et le panache se disperse peu, ainsi, ce qui limite notre étude aux paramétrisations  $\sigma_w / u_*$  dans la CLS. En revanche, la distribution verticale des variances de vitesse du vent à l'intérieur du couvert végétal est alors cruciale, puisque que les sources / puits se trouvent dans le couvert (Nemitz *et al.*, 1998). De même, lors de discontinuités de surface, telles qu'un changement brusque de rugosité (prairie-maïs ou maïs-forêt par exemple), la perturbation engendrée par rapport aux conditions

homogènes joue un rôle sur la dispersion et le dépôt de l'ammoniac, notamment à travers la variabilité de  $\sigma_w$ . Ces questions sont abordées dans la suite (cf. §II.1.9).

### II.1.8 Echelles de temps et de longueur dans la CLS

Nous avons vu que les échanges dans la couche limite de surface (CLS) et dans la couche limite atmosphérique (CLA) sont respectivement caractérisés par les échelles de vitesses ;  $u_*$ , et  $w_*$ . De même, les échelles de longueurs caractéristiques sont  $z - d$  et  $L$  dans la CLS,  $z_i$  ou  $h_n$  dans la CLA (Garratt, 1992; Kaimal et Finnigan, 1994). Ces échelles de longueur sont caractéristiques des "tourbillons porteurs d'énergie", et peuvent être déterminées par des considérations de similitude.

Le spectre d'énergie des composantes du vent permet d'illustrer ces échelles caractéristiques de la turbulence (Figure II.11). Ici, l'hypothèse du champ figé de Taylor est utilisée pour relier le nombre d'onde ( $m^{-1}$ ) et la fréquence  $f$  (Hz). Cela consiste à supposer que le champ turbulent soit "superposé" à la vitesse moyenne qui est stationnaire  $\bar{u}$ , le nombre d'onde est alors  $f/\bar{u}$ .

Sur la Figure II.11 le pic d'énergie correspond à la taille caractéristique des tourbillons porteurs d'énergie  $\Lambda_u$  (m) qui est appelée échelle de longueur intégrale eulérienne. Aux grands nombres d'onde l'énergie cinétique de la turbulence est dissipée en chaleur, l'échelle de longueur associée est l'échelle de Kolmogorov  $\eta = (\nu^3 / \varepsilon)^{1/4}$ . Entre ces deux échelles, se situe la zone inertielle, dans laquelle l'énergie est transférée des grandes structures tourbillonnaires vers les petites (Hinze, 1959).

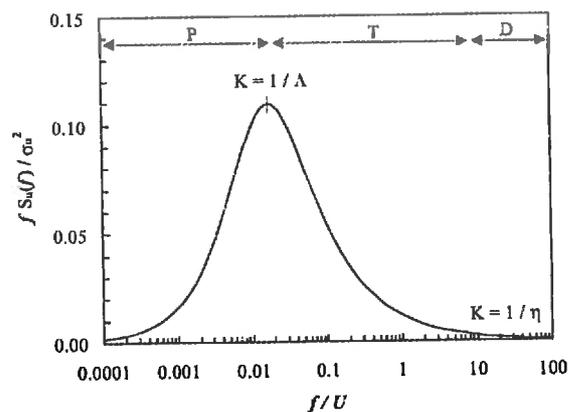


Figure II.11. Spectre d'énergie typique de la vitesse horizontale du vent dans la CLS. Représentation basée sur l'expression proposée par Kaimal et Finnigan (1994; p 44). Ici,  $f$  est la fréquence cyclique (Hz),  $S_u(f)$  est la densité spectrale d'énergie de  $u$  ( $m^2 s^{-1}$ ). L'intégrale de  $S_u(f)$  sur tout le spectre est égal à  $\sigma_u^2$ . Le spectre d'énergie peut être divisé en trois zones, une zone de production de turbulence par le mouvement moyen (P), une zone de transfert d'énergie vers les grosses structures, ou zone inertielle (T), et une zone de dissipation par frottement visqueux (D). La représentation en  $f S_u(f)$  dans un graphique semi-log, permet de conserver les surfaces (changement de variable  $f \rightarrow \ln(f)$ ): la surface sous la courbe est égale à 1.

L'hypothèse de Taylor permet de relier des échelles de longueur et des échelles de

temps. L'analogie de  $\Lambda_u$  est l'échelle intégrale de temps eulérienne  $\tau_u$ . On a les relations suivantes :

$$\Lambda_u = \bar{u} \tau_u = \bar{u} \int_0^{\infty} \rho_u(\xi) d\xi = \bar{u} \int_0^{\infty} \frac{u(t)u(t+\xi)}{\sigma_u^2} d\xi \quad (II.19)$$

$$\Lambda_w = \sigma_w \tau_w = \sigma_w \int_0^{\infty} \rho_w(\xi) d\xi \quad (II.20)$$

où  $\rho_u(\xi)$  et  $\rho_w(\xi)$  sont respectivement les fonctions d'autocorrélation de  $u$  et  $w$ . La définition de  $\rho_w$  est analogue à celle de  $\rho_u$  (Eqn. II.19). Noter que pour  $\Lambda_w$ ,  $\sigma_w$  est utilisé comme vitesse caractéristique, parfois  $\bar{u}$ . Physiquement,  $\tau_u$  et  $\tau_w$  représentent des temps de persistance des composantes de la vitesse eulérienne.

Dans la modélisation de la dispersion turbulente, l'échelle de temps lagrangienne  $T_{Lw}$  est un paramètre important. Sa définition est équivalente à celle de l'échelle de temps eulérienne, mais n'est rigoureusement valable que lorsque la turbulence est stationnaire et homogène, hypothèse qui est justifiée dans la CLS (Du, 1997 ; Figure II.10). L'échelle intégrale de temps lagrangienne pour la vitesse verticale  $T_{Lw}$  est (définition identique pour la composante horizontale) :

$$T_{Lw} = \int_0^{\infty} \rho_{wL}(\xi) d\xi = \int_0^{\infty} \frac{W_L(t)W_L(t+\xi)}{\overline{W_L^2}} d\xi \quad (II.21)$$

Ici  $\rho_{wL}(\xi)$  est la fonction d'autocorrélation de la vitesse lagrangienne  $W_L$  et  $\overline{W_L^2}$  est sa variance. Elle n'est égale à  $\sigma_w^2$ , la variance eulérienne, que lorsque la turbulence est homogène et stationnaire (van Dop *et al.*, 1985 ; Thomson, 1987 ; Annexes A4). L'échelle intégrale de temps lagrangienne  $T_{Lw}$  est une mesure de la persistance des structures tourbillonnaires (Raupach, 1988). En turbulence homogène,  $T_{Lw} = \beta \tau_w$ , (Tennekes, 1982), où  $\beta$  est compris entre 0.35 et 0.8 dans la majorité des cas (Pasquill et Smith, 1983 ; cité dans Sawford, 1985). Toutefois, l'échelle de temps lagrangienne n'est pas facilement mesurable, parce que les vitesses lagrangiennes ne le sont pas. Ainsi l'estimation de ces échelles est-elle problématique, et par voie de conséquence celle de  $\beta$  aussi. A titre d'exemple, Wang *et al.* (1995), estiment à partir de simulation numérique, des valeurs de  $\beta$  qui vont jusqu'à  $\beta=5$  dans le cas d'un écoulement en conduite.

$T_{Lw}$  est généralement déterminé indirectement par comparaison des simulations d'un modèle de dispersion avec des mesures de concentration d'un traceur stable (Du, 1997). Cette

méthode est légitime lorsque  $T_{Lw}$  est ensuite utilisé comme paramètre de dispersion dans un écoulement aux propriétés comparable. Récemment, Lehmann *et al.* (1998) ont présenté une méthode utilisant l'isotope 220 du Radon,  $^{220}\text{Rn}$ , pour mesure une « vitesse de diffusion » près du sol, où le vent est faible, et où les méthodes micrométéorologiques ne peuvent l'estimer. En utilisant leurs résultats, on peut estimer  $T_{Lw}$  qui atteint 120 s dans un couvert de 1 m de hauteur, ce qui est bien plus élevé que les valeurs habituellement avancées de l'ordre de la seconde.

D'autres utilisent des modèles d'écoulement type LES (Large Eddy Simulation) pour estimer  $T_{Lw}$  (Wang *et al.*, 1995). Enfin, une autre méthode consiste à dériver  $T_{Lw}$  des mesures de diffusivité turbulente  $K_z$ , en utilisant la limite asymptotique de l'équation de dispersion établie par Taylor (1921) (Kovaszny, 1976 ; Csanady, 1980 ; Raupach, 1989) :

$$K_z = \overline{W_L^2} T_{Lw} \quad (II.22)$$

Sous les hypothèses de turbulence homogène, i.e.  $\overline{W_L^2} = \sigma_w^2$ ,  $T_{Lw}$  peut être déduit de l'Eqn. II.22. Si l'on utilise alors les Eqns. II.13, II.14 et II.17,  $T_{Lw}$  s'exprime de la façon suivante :

$$T_{Lw} = \frac{k(z-d)}{u_* \phi_w^2 \phi_c} \quad (II.23)$$

où tous les termes ont été définis précédemment. En conditions neutres,  $\phi_c = 1$ , et  $k / \{\phi_w^2 \phi_c\}$  varie entre 0.25 et 0.5 suivant les expressions de  $\phi_w$ , mais il ne dépend pas de  $Z/L$ .  $T_{Lw}$  augmente donc linéairement avec l'altitude dans la CLS. Le Tableau II.3 montre les différentes estimations du paramètre  $k / \{\phi_w^2 \phi_c\}$  dans la CLS (calculés d'après Sawford, 1985)

La cohérence des paramétrisations de  $\sigma_w$  et de  $T_{Lw}$ , proposée dans la littérature, a été testée à partir de l'Eqn. II.23 par Sawford (1985). Reprenons son raisonnement :  $T_{Lw}$  et  $\sigma_w$  s'expriment en général comme suit :

$$\sigma_w = b_w u_* \quad (II.24)$$

$$T_{Lw} = b_2 \frac{z-d}{\sigma_w} \quad (II.25)$$

D'où, en couplant l'Eqn. II.23, on obtient la relation  $k = b_w b_2$ . Les valeurs de  $k$  ainsi estimées sont reportées dans le Tableau II.3. On rappelle que dans la théorie classique de la CLS, la constante de von Kármán est égale à 0.4.

Tableau II.3. Expressions de  $b_w$  et  $b_2$ , trouvées dans la littérature, en conditions neutres, ainsi que la constante de Von Kármán  $k$  que l'on obtiendrait à partir de la relation  $k = b_w b_2$ . Résultats adaptés de Sawford (1985).

Stratification	$K = b_w b_2$	$b_w$	$b_2$	Auteurs
Neutre	0.38	1.13	0.30	Legg (1983)
"	0.40	1.00	0.40	Durbin et Hunt (1980)
"	0.40	1.30	0.32	Ley (1982)
"	0.40	1.24	0.26	Kaimal et Finnigan (1994)
"	0.63	1.25	0.40	Wilson <i>et al.</i> (1981)
"	0.64	1.26	0.50	Reid (1979)
"	0.65	1.30	0.50	Davis (1983)

Comme l'a fait remarquer Sawford (1985), certaines paramétrisations de  $T_{Lw}$ , combinées avec les paramétrisations de  $\sigma_w / u_*$  et l'Eqn. II.23 ne sont pas cohérentes avec la théorie des similitudes dans la CLS, puisqu'elles induisent une valeur  $k \neq 0.4$  (Tableau II.3). Ceci pourrait s'expliquer soit par le fait que (i) l'estimation de  $\phi_w$  n'est pas bonne (voir Tableau II.2 pour une discussion), ou bien que (ii) l'Eqn. II.22 ne soit pas vérifiée dans la couche limite de surface où la turbulence n'est pas homogène. Cette dernière hypothèse est la plus probable, car les modèles aboutissant aux plus grandes valeurs de  $k$  sont aussi ceux qui s'approchent le plus des résultats expérimentaux. Ce n'est donc pas la paramétrisation de  $\sigma_w$  et  $T_{Lw}$  qui est mise en cause mais plutôt l'Eqn. II.22.

Il est intéressant de remarquer que le produit  $b_w b_2$ , peut être considéré comme le rapport de la diffusivité par  $u_* (z - d)$ , soit  $b_w b_2 = K_z / [u_* (z-d)]$ . Ce qui veut dire que des valeurs de  $b_w b_2 \geq 0.4$  dénotent d'une diffusivité plus grande que la normale.

Une autre méthode permet de comparer les différentes paramétrisations de  $\sigma_w$  et  $T_{Lw}$  et leur cohérence : en turbulence homogène et stationnaire  $T_{Lw}$  peut aussi s'exprimer en fonction du terme de dissipation d'énergie turbulente  $\varepsilon$  (Wilson et Sawford, 1996 ; Du, 1997) par :

$$T_{Lw} = \frac{2 \sigma_w^2}{C_0 \varepsilon} \tag{II.26}$$

Où  $C_0$  est une constante de structure lagrangienne "universelle", c'est à dire indépendante du type d'écoulement (van Dop *et al.*, 1985). La définition de  $C_0$  est donnée par (Monin et Yaglom, 1975 ; Wilson et Sawford, 1996 ; voir aussi §III.3.8.5) :

$$\overline{du_i du_j} = C_0 \varepsilon \delta_{ij} dt \tag{II.27}$$

où  $\overline{du_i du_j}$  est l'autocorrélation de l'incrément de vitesse pendant le temps  $dt$ , et  $\delta_{ij} = (1 \text{ si } i = j ; 0 \text{ sinon})$  est le symbole de Kronecker. La définition de  $T_{Lw}$  à partir de l'Eqn. II.26 est valable pour tout type de turbulence, y compris non homogène. Simplement,  $T_{Lw}$  ne peut alors plus être considéré comme une échelle de temps *intégrale* lagrangienne, mais plutôt comme une échelle de corrélation de la vitesse (Sawford, 1985). C'est cette définition qui est aujourd'hui retenue dans les modèles de dispersion.

Toutefois, la détermination de la constante  $C_0$  reste une question délicate, les

estimations variant entre 2 et 8 (Du, 1997). Du (1997) y a apporté une réponse vis-à-vis de l'utilisation dans les modèles de dispersion. Pour plusieurs types de turbulence, y compris dans la CLS en conditions neutres, il propose une valeur de  $C_0 = 3 \pm 0.5$ .

Dans la CLS, en conditions neutres,  $\varepsilon$  s'exprime par  $\varepsilon = u_*^3 / (k(z-d))$ . En combinant les Eqns. II.24, II.25 et II.24 avec cette expression de  $\varepsilon$ , on obtient une nouvelle relation liant  $b_w$ ,  $b_2$ ,  $C_0$  et  $k$  (Du, 1997) :

$$b_2 C_0 = 2 b_w^3 k \quad (II.28)$$

En utilisant l'Eqn. II.28 avec les valeurs de  $b_w$  et  $b_2$  fournies dans le Tableau II.3, nous avons estimé les valeurs de  $C_0$  correspondantes qui sont reportées dans le Tableau II.4.

**Tableau II.4.** Constante de structure lagrangienne  $C_0$  estimée à partir de l'Eqn. II.28, en reprenant les valeurs de  $b_w$  et  $b_2$  du Tableau II.3 pour les auteurs en commun. Voir Du (1997) pour une discussion détaillée.

Type d'écoulement	$C_0$	Auteurs
Soufflerie	5.3	Legg (1983)
Soufflerie	2.0	Durbin et Hunt (1980)
Project Praire Grass / Elora	5.9	Ley (1982)
Revue Project Prairie Grass et autres	4.7	Kaimal et Finnigan (1994)
Project Praire Grass / Porton	3.1	Wilson <i>et al.</i> (1981)
Porton	3.2	Reid (1979)
Project Praire Grass / Agesta	3.5	Davis (1983)
Soufflerie	2.1	Sawford et Guest (1987)
Soufflerie	2.0	Anand et Pope (1983) <sup>1</sup>
Couche limite convective, non homogène et non gaussienne	3.0	Weil (1990) <sup>2</sup>
Soufflerie et CLS	3.0 ± 0.5	Du (1997) ; Revue

<sup>1</sup> cité par Weil (1990); <sup>2</sup> basé sur une comparaison avec des données LES de Moeng et Wyngaard (1989)

Comme l'a fait remarquer Du (1997), les valeurs de  $b_w$  et  $b_2$  qui donnent des valeurs de  $k = 0.4$  (Tableau II.3), correspondent à des valeurs élevées de  $C_0$  (Tableau II.4). Etant donné que  $T_{Lw}$  ne peut être rigoureusement défini en turbulence inhomogène, et que la constante de structure  $C_0$  est une variable "universelle" (Du *et al.*, 1997), il nous paraît plus judicieux de considérer correcte les paramétrisation qui donnent  $C_0 = 3.0 \pm 0.5$  (Tableau II.4), plutôt que celles donnant  $k = 0.4$  (Tableau II.3).

Comme  $\varepsilon$  vérifie les similitudes de Monin et Obukhov dans la CLS, on peut définir comme pour  $\bar{u}$ ,  $\bar{T}$  ou  $\sigma_w$ , une fonction de correction  $\phi_\varepsilon$  dépendant du paramètre de stabilité  $Z/L$ , (Dyer, 1974 ; par exemple Kaimal et Finnigan, 1994) :

$$\phi_\varepsilon = \begin{cases} (1 - 0.5 ((z-d)/L)^{2/3})^{3/2} & -2 \leq (z-d)/L \leq 0 \\ (1 + 5 (z-d)/L) & 0 \leq (z-d)/L \leq 1 \end{cases} \quad (II.29)$$

A partir des Eqns. II.26 et II.29, on peut calculer les expressions de  $T_{Lw}$  dans la CLS, hors neutralité thermique. Le Tableau II.5 reporte les formulations proposées par 3 auteurs. Notre préférence, pour la CLS, va aux expressions de Wilson *et al.* (1981), qui correspondent à  $C_0 = 3$ . Noter que l'expression de Ley *et al.* (1983) en condition stable dépend de la hauteur de la couche limite  $h_n$ , et non de l'altitude  $z$ .

Tableau II.5. Expressions de  $T_{Lw}$  dans la couche limite de surface en fonction du paramètre de stabilité  $Z/L$ , pour des conditions modérément stables ou instables ( $-2 \leq Z/L \leq 1$ ).

Stratification	$T_{Lw}$	Auteurs
Instable	$\frac{0.5 Z}{\sigma_w} (1 - 6 Z/L)^{1/4}$	Wilson <i>et al.</i> , 1981
	$\frac{0.32 Z (1 - 16 Z/L)^{1/2}}{\sigma_w (1 - 3 Z/L)^{1/3}}$	Ley <i>et al.</i> , 1983
	$\frac{0.26 Z (1 - 16 Z/L)^{1/2}}{\sigma_w (1 - 3 Z/L)^{1/3}}$	Kaimal et Finnigan, 1994
Stable	$\frac{0.5 (z-d)}{\sigma_w} (1 + 5 z/L)^{-1}$	Wilson <i>et al.</i> , 1981
	$\frac{0.26 Z (1 + 5 Z/L)^{1/2}}{\sigma_w (12 + 0.5 h_n/L)^{1/3}}$	Ley <i>et al.</i> , 1983
	$\frac{0.26 Z (1 + 5 Z/L)^{1/2}}{\sigma_w (1 + 0.2 z/L)}$	Kaimal et Finnigan, 1994

Ces relations sont illustrées sur la Figure II.12, où l'on voit bien que les courbes sont qualitativement équivalentes, bien que la paramétrisation de Wilson *et al.* (1981) donne des valeurs plus grandes, y compris à la neutralité. On voit aussi que la stratification stable atténue de façon importante  $T_L u_* / (z-d)$ . Cela traduit l'existence de mouvements cohérents en conditions instables qui n'existent pas en conditions stables.

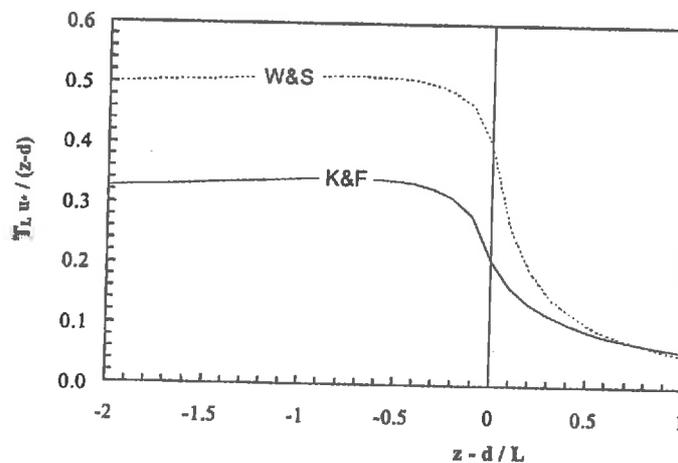


Figure II.12. Echelle de temps lagrangienne adimensionnée  $T_L u_* / (z-d)$  en fonction du paramètre de stabilité  $Z/L$ , estimée à partir de deux paramétrisations du Tableau II.5. Légende : K&F, Kaimal et Finnigan (1994) et W&S, Wilson *et al.* (1981).

Comme précédemment pour  $\sigma_w$ , il est instructif de connaître le profil de  $T_{Lw}$  au-dessus de la couche limite de surface. Les expressions sont souvent basées sur l'Eqn. II.26, qui a l'avantage d'être valable pour tout type de turbulence. Il existe toutefois peu de références bibliographiques dans ce domaine. Le Tableau II.6 montre quelques expressions utilisées dans la littérature.

Tableau II.6. Expressions donnant  $T_{Lu}$  et  $T_{Lw}$  au-dessus de la couche de surface, dans la couche de convection mixte, ou dans la couche limite stable. Ici  $f_c$  est le paramètre de Coriolis.

Stratification	$T_{Lu}$	$T_{Lw}$	Auteurs
Instable	$2 \sigma_u^2 / C_0 \varepsilon$ $\varepsilon = 0.6w_*^3 / z_i + 1.2 u_*^3 / k z_i$	$2 \sigma_w^2 / C_0 \varepsilon$ $\varepsilon = 0.6w_*^3 / z_i + 1.2 u_*^3 / k z_i$	Ryall <i>et al.</i> (1998) <sup>1</sup>
Stable	$0.05 h_n / \sigma_u$	$0.05 h_n / \sigma_w$	Ryall <i>et al.</i> (1998) <sup>1</sup>
Neutre	$\frac{1}{100 f_c} [1 - \exp(-400 f_c (z-d) / u_*)]$	$\frac{0.4 z}{u_*} \frac{1}{1 + 40 f_c (z-d) / u_*}$	Davis (1983) (citant Hanna, 1981)

<sup>1</sup> A partir des profils de Hanna (1982) pour les conditions stables, et des profils de Hibbert et Sawford (1994) pour les conditions instables.

Dans le Tableau II.6, Davis (1983) exprime  $T_{Lw}$  dépend du paramètre de Coriolis, et décroît quand  $f_c$  augmente. C'est d'ailleurs ce que propose Ley *et al.* (1983) en conditions stables (Tableau II.5), puisque la hauteur de la couche limite nocturne  $h_n$  dépend de  $f_c$ .

### II.1.9 Dispersion de polluants depuis la surface

Jusqu'ici, nous avons présenté les mécanismes du transfert dans les basses couches de l'atmosphère, mais pas très près de la surface, car nous verrons par la suite que la turbulence y est différente à plusieurs égards (§II.2). L'objet de cette étude étant de présenter les mécanismes du dépôt sec de l'ammoniac, il est important de s'intéresser aux caractéristiques de la *dispersion* de polluants émis dans l'atmosphère *depuis la surface*, que nous assimilons dans ce chapitre à la hauteur de déplacement  $d$ .

Le processus appelé dispersion correspond au couplage des processus de transfert vertical dont nous avons décrit les caractéristiques précédemment, et de *l'advection* qui est le transfert horizontal de scalaire sous l'action du vent. Si les conditions de surface - c'est à dire la distribution des sources et des puits, l'état de surface, et la topographie - sont uniformes, le transfert est uniquement vertical, et l'on ne parle pas de dispersion. La dispersion implique donc nécessairement l'hétérogénéité des sources et des puits. Son étude est donc intimement liée à la distribution de ces *sources et puits*. Une source est un point, une surface ou un volume d'où le composé est émis. Une cible désigne le capteur, la zone de surface, ou l'écosystème où se dépose le composé.

Dans l'étude des dépôts secs d' $\text{NH}_3$  à proximité des sources, la notion de dispersion est essentielle (Asman, 1998). Celle-ci dépend de la diffusivité verticale  $K_z$  et de la vitesse moyenne du vent  $\bar{u}$  (Csanady, 1980). Ces deux paramètres sont couplés, et le rapport  $\bar{u} / K_z$  change sous l'action de facteurs liés aux caractéristiques de la surface, tels que  $z_0$ , et  $d$ . Il dépend également de la stratification thermique, à travers le paramètre de stabilité  $Z/L$  (Kaimal et Finnigan, 1994). La position de la source est un autre paramètre essentiel de la dispersion. Dans cette section, nous abordons succinctement les caractéristiques essentielles de la dispersion dans la CLS, en se basant sur des modèles simplifiés.

### II.1.9.1 Les lois simplifiées de la dispersion

L'équation de dispersion d'un scalaire dans la CLS permet d'illustrer de façon claire les différents mécanismes de la dispersion. L'équation de dispersion n'est autre que l'équation de conservation de la masse. Les hypothèses permettant de simplifier cette équation sont : (i) l'hypothèse de Boussinesq qui nous place dans le cas d'un fluide de densité constante, et (ii) l'hypothèse de couche limite homogène qui impose que les vitesses moyennes verticale  $\bar{w}$  et transversale  $\bar{v}$  soient nulles (Coantic, 1976). Sous ces hypothèses, l'équation de conservation de la masse donne :

$$\frac{\partial \chi}{\partial t} + \bar{u} \frac{\partial \chi}{\partial x} = - \frac{\partial F_x}{\partial x} - \frac{\partial F_y}{\partial y} - \frac{\partial F_z}{\partial z} + S + P \quad (II.30)$$

où  $x, y, z$  sont les directions des axes orthonormés,  $\chi$  est la concentration massique moyenne en ( $\text{kg m}^{-3}$ ) égale à  $\rho C$  où  $C$  est la concentration volumique moyenne ( $\text{m}^3 \text{m}^{-3}$ ),  $t$  est le temps (s),  $\bar{u}$  est la vitesse moyenne horizontale,  $F_{x,y,z}$  sont les flux turbulents en ( $\text{kg m}^{-2} \text{s}^{-1}$ ) dans les directions  $x, y$ , et  $z$  respectivement,  $S$  est la densité de source ( $\text{kg m}^{-3} \text{s}^{-1}$ ) et  $P$  est la densité de puits (même unité). Si l'on introduit les diffusivités turbulentes dans chaque direction  $K_x, K_y$  et  $K_z$ , avec les mêmes définitions que dans l'Eqn. II.10 (en utilisant  $\chi$  au lieu de  $C$ ), on obtient l'équation suivante (adapté de Csanady, 1980) :

$$\frac{\partial \chi}{\partial t} + U \frac{\partial \chi}{\partial x} = + K_x \frac{\partial^2 \chi}{\partial x^2} + K_y \frac{\partial^2 \chi}{\partial y^2} + K_z \frac{\partial^2 \chi}{\partial z^2} + S + P \quad (II.31)$$

Il est intéressant d'étudier les solutions les plus simples de cette équation, qui sont obtenues en considérant une seule source ponctuelle  $q$  ( $\text{kg s}^{-1}$ ). En faisant l'hypothèse que la vitesse du vent  $\bar{u}$  et les diffusivité  $K_x, K_y$ , et  $K_z$  sont constantes et égales, que l'écoulement et les sources sont stationnaires. Noter que considérer  $\bar{u}$  constant revient à faire l'hypothèse qu'il n'y a pas de sol, puisque la présence du sol impose une vitesse nulle à la surface. Cette hypothèse est très contraignante, mais elle permet d'obtenir une solution simplifiée qui est importante et beaucoup utilisée, c'est le modèle Gaussien (Csanady, 1980) :

$$\chi = \frac{q}{4 \pi K r} \exp\left\{-\frac{U}{2 K} (r - x)\right\} \quad (II.32)$$

où  $K$  est la diffusivité égale dans toutes les directions, et  $r^2 = x^2 + y^2 + z^2$ . Cette équation nous indique que la concentration en aval d'une source dans l'axe du vent moyen, c'est à dire pour  $x = r$ , est inversement proportionnelle à la diffusivité  $K$  et la distance  $x$ . Par ailleurs, dans les directions latérales ( $y$ ) et verticales ( $z$ ), le gradient de concentration est d'autant plus fort que le rapport  $\bar{u} / K$  est grand, ce qui traduit une plus faible dilution.

L'Eqn. II.32 peut être généralisée pour tenir compte de diffusivités différentes dans les différentes directions. La surface peut également être prise en compte de façon relativement simple, en ajoutant à la concentration issue de la source  $q$ , celle d'une source *imaginaire* de

même densité  $q$ , symétrique à la première par rapport à la surface. En se plaçant suffisamment loin en aval de la source pour que  $x \gg (y, z)$ , la solution gaussienne devient alors (Casnady, 1980) :

$$\chi = \frac{q}{2 \pi U \sigma_y \sigma_z} \left[ \exp\left\{-\frac{y^2}{2 \sigma_y^2} - \frac{(z - h_s)^2}{2 \sigma_z^2}\right\} + \exp\left\{-\frac{y^2}{2 \sigma_y^2} - \frac{(z + h_s)^2}{2 \sigma_z^2}\right\} \right] \quad (II.33)$$

où  $h_s$  est la hauteur de la source,  $\sigma_y(x)$  et  $\sigma_z(x)$  sont les écart-types du panache selon les directions  $y$  et  $z$ . Toute la difficulté de la modélisation gaussienne revient à chercher des expressions de  $\sigma_y(x)$  et  $\sigma_z(x)$  en fonction des conditions locales. Le paradoxe est que l'Eqn. II.33 qui ne rend pas compte de la complexité des échanges à la surface, où la vitesse et l'échelle de temps intégrale tendent vers 0, est souvent utilisée pour prédire précisément la concentration de surface en aval de sources situées en altitude (Csanady, 1980). Les mesures expérimentales semblent toutefois montrer que cette approximation est souvent valide. En revanche, lorsque la source est proche de la surface, l'Eqn. II.33 devient une très mauvaise approximation puisque la phase initiale de dispersion à proximité de la source est mal prise en compte (Csanady, 1980).

D'autres expressions analytiques obtenues en considérant que les profils de vent et de diffusivité sont des fonctions puissance de  $Z$  permettent de reproduire très fidèlement la dispersion de scalaires depuis la surface, lorsque le couvert est homogène et peu développé (Huang, 1979). Les caractéristiques de la surface,  $z_0$  et  $d$ , ainsi que l'état de stratification thermique de la CLS peuvent être pris en compte à travers les paramètres des profils en puissance de  $\bar{u}$  et  $K_z$  (voir les détails dans Huang, 1979)

En se basant sur ces expressions simplifiées, nous allons voir quels sont les effets quantitatifs (i) des caractéristiques de surface  $z_0$  et  $d$ , (ii) de la stratification thermique, et (iii) de la position de la source, sur la dispersion. Le scalaire est considéré comme passif, et aucune interaction avec la surface (dépôt) n'est ici prise en compte.

#### II.1.9.2 Effets des caractéristiques de la surface

En considérant les paramétrisations classiques de la longueur de rugosité  $z_0$  et de la hauteur de déplacement  $d$  en fonction de la hauteur du couvert  $h$  (Thom, 1975) :  $z_0 = 0.1 h$  et  $d = 0.75 h$ , on se ramène en fait à l'étude de l'effet de la hauteur du couvert sur la dispersion. En vertu des Eqns. II.13 et II.16, pour une vitesse de vent fixe en altitude,  $u^*$  augmente avec  $h$ , de même que le rapport  $K_z / \bar{u}$ . Or nous avons vu avec l'Eqn. II.32 que l'efficacité de dispersion est proportionnelle à  $K_z / \bar{u}$ , donc plus le couvert est développé, plus la dispersion est intense, et plus la concentration en aval de la source décroît rapidement.

Mais les caractéristiques de la surface ont des effets sur la dispersion, qui peuvent difficilement être étudiés avec les modèles simplifiés des Eqns. II.32 et II.35. Ils sont étudiés dans la section II.2.

### II.1.9.3 Effets de la stratification thermique

En effectuant le même raisonnement que précédemment, à partir des Eqns. II.13 et II.16, on voit que pour une même vitesse du vent  $\bar{u}$ ,  $K_z$  est plus élevé en conditions instables qu'en conditions neutres, et qu'en conditions stables. L'intensité de la dispersion s'accroît donc avec le degré d'instabilité.

Toutefois, sous l'effet de la stratification thermique, la hauteur de la couche limite planétaire varie (voir le §II.1.1), de quelques dizaines de mètres en conditions stables à plusieurs centaines de mètres en conditions instables. Le haut de la couche limite planétaire est caractérisée par une inversion thermique qui constitue une "barrière" à travers lequel les flux sont nuls. Lorsque l'on s'intéresse à la dispersion très près de la source (quelques centaines de mètres), comme pour le dépôt d' $\text{NH}_3$  à proximité des sources, la prise en compte de cette inversion de jour n'a aucune influence. En revanche, de nuit cette barrière peut engendrer une accumulation plus forte du gaz près de surface, qu'il peut être important de prendre en compte (Csanady, 1980).

La Figure II.13a montre l'effet de la présence d'une inversion thermique située à différentes hauteurs exprimées en multiples de la hauteur de la source  $h_s$ . La présence d'inversion entraîne une augmentation de la concentration de surface.

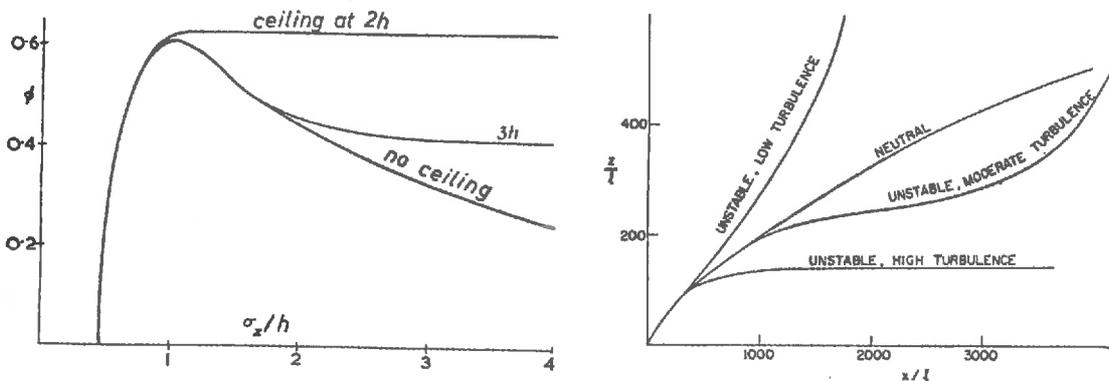


Figure II.13. (a) Concentration de surface estimée à partir d'un modèle Gaussien avec présence de "sources miroir" symétriques par rapport au sommet de la couche limite, afin de reproduire l'effet de stratification thermique (reproduit de Csanady, 1980 ; pp. 168). La source est située à la hauteur  $h_s$ . (b) illustration qualitative des panaches en conditions instables, avec des vitesses de vent variées (reproduit de Csanady, 1980 ; pp. 207).

La Figure II.13b, illustre la forme des panaches, suivant que la turbulence d'origine "mécanique", liée la vitesse de frottement, est plus ou moins élevée par rapport à la turbulence générée par le gradient thermique.

### II.1.9.4 Effet de la position de la source

La hauteur de la source est essentielle car elle détermine la dispersion initiale du panache (Raupach, 1889). Plus la hauteur de la source est grande, plus la dispersion initiale est forte, et donc plus la concentration décroît vite en aval, mais aussi plus la concentration à la surface est

faible, et plus la distance à laquelle celle-ci atteint son maximum est grande. Ces considérations simples sont essentielles dans l'appréhension de phénomènes de dépôts secs, pour lesquels la concentration de surface détermine l'intensité des échanges (Asman, 1998).

Le cas d'une source de surface est encore plus complexe car il introduit des difficultés conceptuelles liées à la connaissance de l'écoulement juste au-dessus de la surface. Wilson et Flesch (1993) appellent cette couche "the unresolved basal layer". La difficulté provient du fait que l'écoulement près de la surface subit une transition turbulent / visqueux, qui est encore aujourd'hui pour les couverts végétaux. On sait notamment que l'écoulement y est fortement intermittent (Aylor *et al.*, 1993 ; Shaw *et al.*, 1979), et que cela modifie les caractéristiques des échanges. On sait aussi que les propriétés moléculaires des composés jouent un rôle important, qui différencie les échanges de chacun d'entre eux (Brutsaert, 1975). La complexité des échanges dans cette couche située très près de la surface est discutée dans le chapitre suivant.

### II.2 Transferts turbulents à l'interface végétation-atmosphère

Nous avons jusqu'ici restreint la discussion à la dispersion au-dessus de la surface, plus précisément dans la couche limite de surface atmosphérique. Le dépôt sec d' $\text{NH}_3$ , est en réalité un processus d'échange entre l'atmosphère et la végétation, donc pour lequel les « puits » et « sources » sont situés au sein du couvert. Le transfert dans la végétation y joue donc un rôle prépondérant. Ce rôle est d'autant plus important que le couvert est développé, et donc que les mécanismes du transfert turbulent sont perturbés (Raupach, 1989). Il dépend aussi de la distribution des sources et des puits dans le couvert : l'étude d'un composé émis depuis le sol - comme de l'ammoniac par une litière sous un couvert développé - nécessite de bien décrire son transfert dans le couvert, alors que pour un composé émis dans la partie supérieure du couvert, les mécanismes de transfert dans le couvert seront moins importants.

Pourquoi traiter de façon séparée le transfert dans le couvert végétal? Nous avons vu que les transferts dans la CLS sont décrits de façon satisfaisante par la théorie des similitudes de Monin et Obukhov, une analogie à la diffusion turbulente, tout au moins dans des conditions idéalement homogènes (Kaimal et Finnigan, 1994). Mais cette analogie n'est valable que lorsque les termes de transport turbulent sont négligeables (Wyngaard, 1982), ce qui n'est pas le cas dans les couverts végétaux : une partie importante de l'énergie de transfert turbulent est transportée par des grosses structures tourbillonnaires dont la dimension caractéristique est de l'ordre de la hauteur du couvert  $h$ . Par ailleurs, dans le couvert, les échelles de temps et de vitesse caractérisant l'écoulement sont très différentes de leurs contreparties dans la CLS. Par exemple,  $h$  et  $u_*$  sont des échelles de longueur et de vitesse adaptées (Raupach *et al.*, 1996).

### II.2.1 Transfert dans la sous couche de rugosité

Tout près de la surface, au-dessus du couvert végétal (ou urbain), i.e.  $z^*/h \leq 2-3$  ( $z^*$  étant la hauteur de cette zone), les caractéristiques de l'écoulement s'écartent de celles décrites dans la CLS. Cette zone dans laquelle la géométrie des éléments de rugosité influence les propriétés de l'écoulement est appelée sous-couche de rugosité (SCR) (Raupach *et al.*, 1991). A l'intérieur de celle-ci, les relations flux-gradient dérivées de la théorie des similitudes dans la CLS sont modifiées ; il ressort en effet d'études expérimentales (Raupach *et al.*, 1986 ; Cellier et Brunet, 1992) que les diffusivités turbulentes  $y$  sont de 2 à 3 fois supérieures, pour les scalaires, à celles de l'Eqn. II.13 (p-41). A ces diffusivités plus grandes correspondent des gradients plus faibles. Par ailleurs, les transports de scalaire et de quantité de mouvement ne sont plus égaux, comme dans la CLS (Cellier et Brunet, 1992).

Les arguments mis en avant pour expliquer cette "anomalie" sont multiples, et l'on peut consulter Cellier et Brunet (1992), pour une liste des publications sur le sujet. L'intermittence des échanges au sommet du couvert végétal est une des raisons essentielle, mais la répartition verticale et horizontale des sources et puits (Denmead et Bradley, 1985) associés aux effets de champs proches, (Raupach, 1989), en est un autre.

Le bilan d'énergie cinétique de la turbulence (ECT) à l'intérieur du couvert végétal et dans la sous-couche de rugosité (Kaimal et Finnigan, 1994 ; Raupach *et al.*, 1996 ; Figure II.14) montre que le terme de dissipation de l'ECT,  $\varepsilon$ , est loin d'être en équilibre avec le terme de production d'énergie cinétique  $P_T$ , contrairement à la CLS (Annexes A8). En effet, le terme de transport turbulent d'ECT  $|T_T|$  croît à mesure que l'on se rapproche du sommet du couvert (Figure II.14 ; Brunet *et al.*, 1994 ; Meyers et Baldocchi, 1991). Or, dans ces conditions, les relations flux-gradients (au 1<sup>o</sup> ordre) ne sont plus valables (Wyngaard, 1982; Annexe A8). On voit bien sur la Figure II.14, que les termes de transport deviennent non nuls à  $z/h = 3$  qui correspond à la hauteur  $z^*$ . D'autres études montrent les mêmes caractéristiques (Meyers et Baldocchi, 1991), et des modèles suggèrent même une diminution de l'épaisseur de cette couche limite de rugosité en conditions de forte instabilité thermique (Shen et Leclerc, 1997).

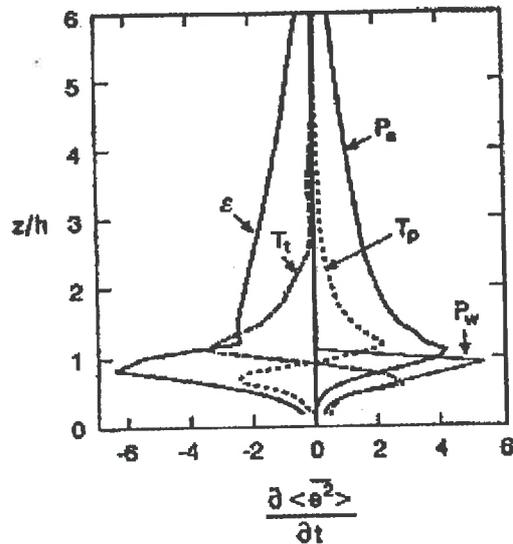


Figure II.14. Bilan d'énergie cinétique de la turbulence ( $\langle e^2 \rangle$ , ECT) dans un couvert de blé. D'après Brunet *et al.* (1994). Les termes sont définis par :  $\epsilon$ , dissipation d'ECT en chaleur ;  $P_s$ , production d'ECT par le mouvement moyen ;  $P_w$ , production d'ECT par traînée de pression ;  $T_t$ , Transport turbulent d'ECT ;  $T_p$ , transfert d'ECT par l'action des fluctuations de pression.

Le coefficient d'asymétrie  $Sk_{u,w}$  (Skewness ; moment d'ordre 3) des composantes du vent augmente en valeur absolue dans la SCR pour atteindre un maximum dans le couvert ( $Sk_u \geq 0$  et  $Sk_w \leq 0$  ; voir §II.2.5.3). Ces valeurs sont une signature du caractère intermittent des échanges, avec des périodes courtes de balayages ( $w$  négatif,  $u'$  positif) et de longues périodes d'éjection ( $w$  positif,  $u'$  négatif) (Brunet et Collineau, 1994 ; Raupach *et al.*, 1996).

Par ailleurs, Weil (1990) a montré que des coefficients d'asymétrie positifs dans la couche limite convective, dénotaient une diffusion accrue depuis la surface. Dans le couvert,  $Sk_w$  est négatif, mais la comparaison est valable en notant que  $Sk_w$  augmente à la surface dans un couvert comme dans la simulation de Weil (1990). L'équation de conservation de l'ECT indique par ailleurs que les gradients de moments du troisième ordre ( $Sk_{u,w}$ ) interviennent dans la définition du terme de transport turbulent de l'ECT (Stull, 1988 ; cité par Heinz *et al.*, 1996 ; voir aussi Annexe A7). D'autres auteurs ont même montré que l'existence de coefficients d'aplatissement  $Ku_{u,w}$  (Kurtosis, moment d'ordre 4) non gaussien est le signe d'une diffusivité turbulente plus grande (Heinz *et al.*, 1996).

L'augmentation apparente de la diffusivité turbulente a été modélisée par l'introduction d'un coefficient  $\gamma_{m,h,v}$ , exprimé comme le rapport de la diffusivité mesurée sur la diffusivité théorique de l'Eqn. II.13 (Cellier et Brunet, 1992). Comme la diffusivité est inversement proportionnelle aux gradients adimensionnés  $\phi_{m,h,c}$ , l'Eqn. II.13 est corrigée de la façon suivante :

$$\phi_m^*(z/L, z/z^*) = \frac{\phi_m(z/L)}{\gamma_m(z/z^*)} \quad (II.34)$$

Cellier et Brunet (1992) ont proposé une modélisation simple de  $z^*$ , et de  $\gamma_{m,h,v}$ , où  $z^* / \delta \approx 4$ ,

$\delta$  étant la distance moyenne entre deux éléments de rugosité (par exemple inter-rang d'une culture), et où  $\gamma_{h,v} = z^*/z$ , et  $\gamma_m = (z^*/z)^{\bar{\omega}}$ , avec  $\bar{\omega} \approx 0.45$ . Leurs estimations sont basées sur des mesures sur un couvert de maïs de 2.30 m de hauteur.

Garratt (1977) propose quant à lui  $\gamma_m = \exp[\alpha(1 - z/z^*)]$  pour  $z \leq z^*$ , sur savane. Wenzel *et al.* (1997), remarquent toutefois que les expressions de Cellier et Brunet (1992) et Garratt (1977) ont l'inconvénient de donner une dérivée de  $\gamma_m$  discontinue en  $z^*$ , alors que leurs mesures montrent qu'elle est continue. Wenzel *et al.* (1997), proposent donc une forme plus complexe de  $\gamma_m$  pour pallier ce problème :

$$\begin{aligned} \gamma_m &= \exp[g_w(z)] \\ g_w(z) &= -\exp\left[\frac{h-d}{l_*}\right] Ei\left(-\frac{z}{l_*}\right) \end{aligned} \quad (II.35)$$

où  $h$  est la hauteur du couvert végétal,  $l_*$  est une échelle de longueur définie comme  $z^*$ ,  $l_* = 4 \delta$ , et  $E_i$  est la fonction exponentielle intégrale  $Ei(x) = \int (e^{-x'}) dx'$  (voir par exemple Press *et al.*, 1994). En utilisant l'Eqn. II.35, et des données sur forêt de 30 m, Wenzel *et al.* (1997) trouvent une valeur de  $\gamma_m = 4$  au sommet du couvert.

Il est intéressant d'essayer d'intégrer les corrections proposées par Cellier et Brunet (1992) et Wenzel *et al.* (1997), dans les expressions des profils de  $\sigma_w$  et  $T_{Lw}$ . Si l'on utilise l'Eqn. II.23, en supposant  $\sigma_w/u_*$  constant (bien que certaines mesures semblent indiquer qu'il décroît dans la SCR,  $\sigma_w/u_* = 0.8$ ; Nemitz *et al.*, 1998), et en intégrant le paramètre  $\gamma$  on obtient une échelle de temps lagrangienne corrigée  $T_{Lw}^*$ , en neutralité thermique :

$$T_{Lw}^* = T_{Lw} \frac{\sigma_w^2}{\sigma_w^{*2}} \gamma \quad (II.36)$$

Comme nous avons vu que  $\sigma_w^*$ , était inférieure (ou égale) à  $\sigma_w$ , et que  $\gamma \geq 1$  l'Eqn. II.36 indique donc que  $T_{Lw}^* \geq T_{Lw}$ . Noter que nous n'avons pas précisé si  $\gamma$  était égal à  $\gamma_m$  ou  $\gamma_h$ . Le fait d'utiliser l'Eqn. II.23, implique en fait que nous utilisons  $\gamma_h$ . Si l'on remplace dans l'Eqn. II.36  $\gamma_h$  par  $\gamma_h = z^*/z$  (Cellier et Brunet, 1992), et en supposant  $\sigma_w^2/\sigma_w^{*2} = 1$ , on obtient  $T_{Lw}^* = b_2 z^*/\sigma_w$ . Ceci montre donc que dans la SCR,  $T_{Lw}^*$  serait constant, et supérieur à  $T_{Lw}$ , alors qu'en général il est supposé croître linéairement avec  $Z$ . Il est intéressant de constater que les quelques mesures de corrélation spatiale de vitesse, qui donnent une estimation de  $\tau_u$  et  $\tau_w$  (Shaw *et al.*, 1995) (Figure 5 dans Raupach *et al.*, 1996), ainsi que des mesures de pic spectral (Raupach *et al.*, 1996), semblent confirmer ce résultat.

En prenant  $z^* = 3 \delta$ , comme le suggèrent Cellier et Brunet (1992), avec  $\delta = 0.7$  m (cas du maïs), on trouve pour un couvert de maïs développé,  $z^* \approx 2h$ , ce qui correspond aux mesures relatées ci-dessus. Au-dessus d'une prairie (60 cm), Aylor *et al.* (1993) trouvent également des échelles de temps intégrales constantes jusqu'à  $z = 2h$ , mais dans leur cas, l'estimation de  $\delta$  est difficile. Nemitz *et al.* (1998) trouvent quant à eux que  $f_{mw}$  (le pic du spectre de puissance) n'est constant qu'en dessous de  $z/h = 0.7$  ( $\sim d$ ), dans un couvert de

colza, qui présente une géométrie très différente du maïs (forte densité en haut du couvert), et pour lequel il est difficile de définir une valeur de  $\delta$ .

### II.2.2 Profils de $\bar{u}$ et $\sigma_w / u_*$ dans les couverts

Nous avons vu qu'en conditions neutres,  $\sigma_w / u_*$  était invariant avec la hauteur dans la CLS (Tableau II.2, p-48). Dans le couvert végétal, la turbulence est fortement inhomogène, comme l'indique la Figure II.15. Toutefois, on voit qu'en normalisant la hauteur par la hauteur du couvert  $h$ , la vitesse par  $U_h$  et les moments d'ordre deux par  $u_*^2$ , les profils sont reproductibles d'un couvert à l'autre (Figure II.15a,b).

La vitesse du vent dans le couvert décroît par frottement sur les éléments du couvert (feuilles, et tige ou troncs). De façon identique, la tension de frottement  $\overline{u'w'}$ , normalisée par sa valeur au-dessus du couvert, décroît en descendant dans le couvert. Ainsi, la turbulence transmet l'énergie du mouvement moyen au-dessus du couvert à la plante, essentiellement par traînée de pression (Figure II.15 ; Grace, 1977).

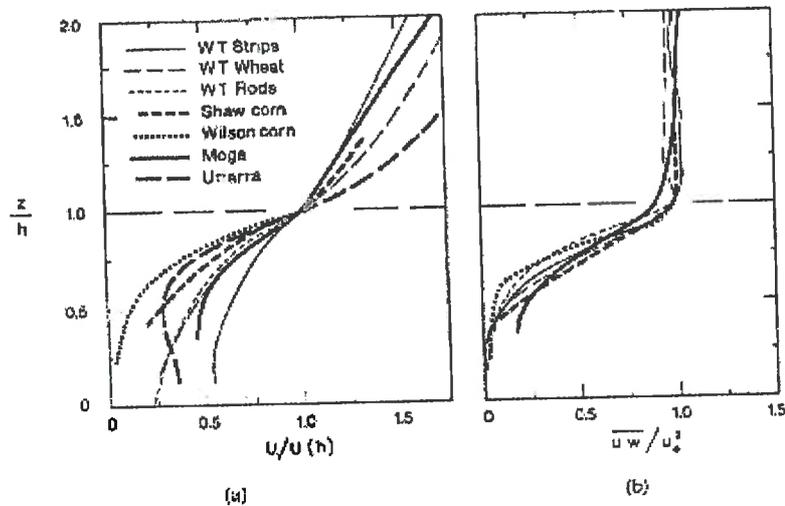


Figure II.15. Profils en fonction de la hauteur normalisée  $z/h$ , de (a)  $\bar{u} / U_h$ , (b)  $-\overline{u'w'} / u_*^2$ . Reproduit de Raupach *et al.* (1991).

Le profil de vitesse moyenne dans le couvert végétal est souvent paramétré par des profils exponentiels (Legg et Raupach, 1982 ; Wilson *et al.*, 1982). Cette paramétrisation nous vient des premières tentatives de modélisation de l'écoulement dans un couvert végétal (Inoue, 1963 ; cité dans Tuzet *et al.*, 1996) où, en considérant que la densité de surface foliaire  $a(z)$  et la longueur de mélange  $l(z)$  sont homogènes dans le couvert, on obtient la paramétrisation suivante :

$$\bar{u}(z) = \bar{u}(h) \exp\{\zeta(z - h)\} \quad (II.37)$$

où,  $\zeta = (C_d a / 2 l^2)^{1/3}$  en  $[m^{-1}]$ , est le coefficient d'extinction, où  $C_d$  est un coefficient de traînée des feuilles,  $a$  est la densité de surface foliaire moyenne (1 face), et  $l$  est la longueur de

mélange. Cette formulation, bien que basée sur des hypothèses fortes permet de reproduire fidèlement le profil de vitesse dans un couvert de maïs (Wilson *et al.*, 1982). Ces mêmes auteurs trouvent  $\zeta \times h = 4$  pour un couvert de maïs dense à maturité haut de 2.20 m.

Afin que le profil soit continu au sommet du couvert, il faut relier le profil exponentiel (Eqn. II.37) au profil logarithmique du vent qui existe au-dessus (Eqns. II.16a,b). Legg et Raupach (1982), proposent d'imposer la continuité de  $\bar{u}$  et de  $\partial \bar{u} / \partial z$  à la hauteur  $h$ , ce qui en remaniant leur résultat, nous donne pour  $\zeta$  en conditions neutres :

$$\zeta = \frac{1}{(h-d) \ln \left( \frac{h-d}{z_0} \right)} \quad (\text{II.38})$$

Un rapide calcul d'ordre de grandeur montre que  $\zeta$  est de l'ordre de  $4/h$ .

Les variances de vitesse du vent  $\sigma_u$  et  $\sigma_w$ , sont représentées dans la Figure II.16. D'après la Figure II.16, elles décroissent dans le couvert à mesure que l'on se rapproche du sol, et leurs caractéristiques sont identiques pour des couverts très variés. De manière générale, juste au-dessus du couvert, les variances  $\sigma_{u,w}$  sont légèrement inférieures à leurs valeurs à l'équilibre dans la CLS;  $\sigma_u / u_* \approx 2$ , et  $\sigma_w / u_* \approx 1.1$ .

Dans le couvert,  $\sigma_{u,w} / u_*$  est en première approximation proportionnel à la hauteur, mais il n'est pas nul même très près de la surface. Ainsi, sur la Figure II.16,  $\sigma_u / u_*$  est de l'ordre de 0.5 à 1, à  $z/h = 0.1$ , et  $\sigma_w / u_*$  est de l'ordre de 0.25 à 0.5, à la même hauteur. Peu de mesures donnent des valeurs précises de  $\sigma_{u,w}$  très bas dans le couvert, à cause des dimensions des capteurs. Certaines paramétrisations fixent  $\sigma_w / u_* = 0.1$  au sol, alors que d'après la condition de non-glissement à la surface, on sait que  $\sigma_w \rightarrow 0$  quand  $z \rightarrow 0$  (Hinze, 1959). Toutefois, la couche dans laquelle  $\sigma_w \rightarrow 0$  est très peu profonde, typiquement  $z^+ = 30$ , où  $z^+ = z u_{*0} / \nu$ , où  $u_{*0}$  est la vitesse de frottement au sol ( $\approx 5\%$  de  $u_*$ ; Wilson *et al.*, 1982), et  $\nu$  est la viscosité cinématique de l'air ( $\approx 1.5 \times 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ ), ce qui donne  $z \approx 4.5 \times 10^{-3} / u_*$ , soit pour  $u_* = 0.3 \text{ m s}^{-1}$ ,  $z \approx 1-2 \text{ cm}$ . Il ne paraît donc pas essentiel de forcer  $\sigma_w / u_*$  vers 0 à la surface du sol, étant donné la finesse de cette couche.

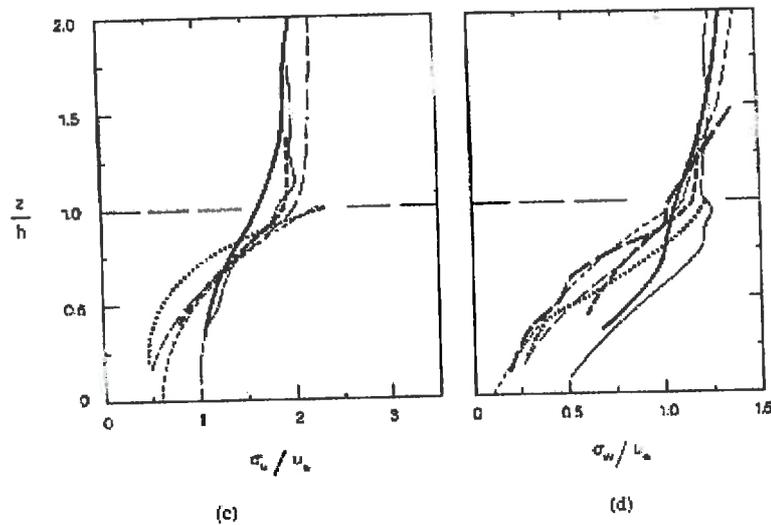


Figure II.16. Profils de variances de vitesses du vent dans plusieurs couverts végétaux, (c)  $\sigma_u / u_*$ , et (d)  $\sigma_w / u_*$ . Les légendes sont les mêmes que dans la Figure II.15. Reproduit de Raupach *et al.* (1991)

Si nous nous attardons sur la paramétrisation de  $\sigma_w / u_*$  à proximité du sol, c'est qu'elle peut s'avérer essentielle pour estimer les émissions depuis le sol, telles que les émissions d' $\text{NH}_3$  par les litières (Nemitz *et al.* 1998), ou plus généralement des échanges avec la partie basse du couvert. Le Tableau II.7 reporte plusieurs estimations de  $\sigma_{u,v,w} / u_*$ , en bas et en haut de la canopée.

Tableau II.7. Expressions de  $\sigma_{u,v,w}$  à la base et au sommet de la canopée, pour différents types de couverts. Les données de Baldocchi (1997), proviennent de Raupach (1988) pour la "forêt générique", d'Amiro (1990) pour la forêt boréale, et de Baldocchi et Meyers (1988) pour la forêt tempérée.

Hauteur $z/h$	$\sigma_u$	$\sigma_v$	$\sigma_w$	Auteurs
<b>Bas du couvert</b>				
0.06	$0.22 \sigma_u(h)$	$0.31 \sigma_v(h)$	$0.17 \sigma_w(h)$	Wilson <i>et al.</i> (1982) (Maïs)
0.16	$0.36 u_*$	$0.10 u_*$	$0.11 u_*$	Nemitz <i>et al.</i> (1998) (Colza)
0.10	$0.11 u_*$		$0.07 u_*$	Aylor <i>et al.</i> (1993) (Prairie)
0*			$0.25 u_*$	Baldocchi (1997) (Forêt "générique")
0*			$0.32 u_*$	Baldocchi (1997) (Forêt Boréale)
0*			$0.10 u_*$	Baldocchi (1997) (Forêt tempérée)
<b>Haut du couvert</b>				
1	$2.06 u_*$	$1.65 u_*$	$1.13 u_*$	Wilson <i>et al.</i> (1988) (Maïs)
1	$1.41 u_*$	$0.89 u_*$	$0.79 u_*$	Nemitz <i>et al.</i> (1998) (Colza)
1	$2.39 u_*$		$1.25 u_*$	Baldocchi (1997) (Forêt "générique")
1	$2.39 u_*$		$1.25 u_*$	Baldocchi (1997) (Forêt Boréale)
1	$2.35 u_*$		$1.25 u_*$	Baldocchi (1997) (Forêt tempérée)
<b>CLS</b>				
>> 1	$2.4 u_*$	$1.9 u_*$	$1.25 u_*$	Panofsky et Dutton (1984) <sup>1</sup>

<sup>1</sup> cité dans Kaimal et Finnigan (1994).

Dans le couvert, la décroissance des différentes variances est souvent considérée comme linéaire, par souci de simplicité. Mais il semble que la décroissance dans plusieurs types de couvert soit exponentielle pour la composante  $\sigma_u$  et pour  $\sigma_w$  (Wilson *et al.*, 1982 ; Aylor *et al.*, 1993 ; Nemitz *et al.*, 1998). Aylor *et al.* (1993) trouvent avec une très bonne approximation

un profil  $\sigma_{u,w}/u_* = \alpha \exp[2.5(z/h)]$ , avec  $\alpha = 0.07$  pour la composante verticale et  $\alpha = 0.11$  pour l'horizontale. En général,  $\sigma_u \geq \sigma_v \geq \sigma_w$  dans le couvert, et Ayotte *et al.* (1999) suggèrent que les rapports de la variance sur l'ECT soient constants et tels que  $\sigma_u^2/e^2$ ,  $\sigma_v^2/e^2$ ,  $\sigma_w^2/e^2$  soient respectivement égaux à 0.45, 0.35, 0.2.

Massman *et al.* (1999), en simplifiant l'équation de conservation de l'énergie cinétique de la turbulence, et en faisant le même type d'hypothèse que Ayotte *et al.* (1999), proposent des profils de variances dans le couvert, qui dépendent du LAI du couvert et de paramètres ajustables. Leur démarche est très intéressante pour l'approche lagrangienne, car elle définit à l'aide d'arguments physiques les paramètres d'entrée des modèles lagrangiens stochastiques. L'un de leurs résultats intéressant pour la discussion présente, concerne les valeurs des variances de vitesse du vent à  $z=0$ . Ils trouvent que  $\sigma_{u,v,w}(0)/u_*$  décroît lorsque le LAI augmente, selon une loi approximative du type  $\alpha_i \exp^{-0.6 LAI}$ , où  $\alpha_i$  représente la valeur du rapport  $\sigma_{ui}/u_*$  au-dessus du couvert végétal (Tableau II.7).

Les données de Wilson *et al.* (1982) semblent indiquer de leur côté que  $\sigma_w/\sigma_w(h)$  est une fonction du LAI cumulé depuis  $h$ , pour le maïs. Denmead *et al.* (1999) s'est basé sur ces données pour dériver une loi simple d'évolution de  $\sigma_w$  en fonction du LAI cumulé :

$$\begin{array}{lll} z/h \geq 1, & LAI = 0, & \sigma_w = \sigma_{wh} \\ z/h \leq 1, & 0 \leq LAI \leq 3, & \sigma_w = \sigma_{wh} (1 - 0.283 LAI) \\ z/h \leq 1, & 3 \leq LAI, & \sigma_w = 0.15 \sigma_{wh} \end{array} \quad (II.39)$$

Ces équations peuvent être comparées à celles obtenues par Aylor *et al.* (1993) sur prairie.

### II.2.3 Echelles de longueur et de temps caractéristiques dans les couverts

Comme dans la CLS,  $T_{Lw}$  est un paramètre important pour expliquer les échanges turbulents dans les couverts végétaux. Alors que dans la CLS,  $T_{Lw}$  est proportionnelle à l'altitude et inversement proportionnelle à la vitesse de frottement (Eqn. II.23), elle reste constante dans le couvert, et est de l'ordre de  $0.3-0.4 h/u_*$  (Raupach *et al.*, 1996). Comme  $T_{Lw}$  est une indication de la persistance des structures tourbillonnaires, cela indique l'existence de larges structures "cohérentes" de dimensions importantes dans le couvert. Les échelles de longueur eulérienne mesurées dans plusieurs couverts (Figure II.17) sont des bons indicateurs de la taille importante de ces structures tourbillonnaires, malgré le fait que l'hypothèse de Taylor utilisée dans le calcul de ces échelles ne soit pas théoriquement justifiée quand les intensités de turbulence, i.e.  $\sigma_{u,w}/\bar{u}$ , sont importantes.

On note sur la Figure II.17, que les échelles de longueur de la turbulence ne tendent pas vers 0 à proximité du sol, bien que la plupart des mesures ne descendent pas plus bas que  $0.3 h$ . Typiquement, à  $z/h = 1$ ,  $A_w$  est de l'ordre de  $0.3 h$ , et  $A_u$  est de l'ordre de  $h$  (Raupach *et al.*, 1996).

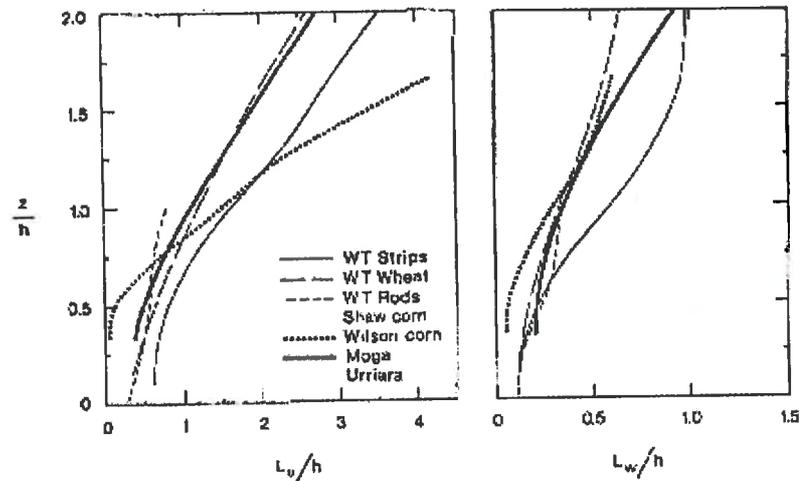


Figure II.17. Profils d'échelle de longueur intégrale eulérienne  $L_u$  et  $L_w$  dans le couvert, normalisés par la hauteur du couvert  $h$ .  $L_u$  et  $L_w$  correspondent respectivement à  $\Lambda_u$  et  $\Lambda_w$  dans le texte et dans les Eqns. II.19 et II.20. Repris de Raupach *et al.* (1991).

La fréquence  $f_m$ , à laquelle le spectre d'énergie des fluctuations turbulente atteint un maximum, peut être considérée comme la fréquence de rotation des structures porteuses d'énergie.  $f_m$  est relié à  $\Lambda_w$  par  $\Lambda_w = \bar{u} / (2\pi f_m)$ . Dans le couvert,  $f_m$  varie peu, et les mesures disponibles suggèrent que  $f_m h / U_h \approx 0.15 \pm 0.05$  pour les spectres de la vitesse horizontale. De même  $f_m h / U_h \approx 0.45 \pm 0.05$  pour les spectres de  $w$  (Kaimal et Finnigan, 1994). Comme le font remarquer Nemitz *et al.* (1998), ces estimations peuvent être biaisées par le calcul de  $U_h$  par interpolation du profil mesuré à la hauteur  $z = h$ .

Raupach *et al.* (1996) ont montré sur la base de nombreux arguments que l'écoulement à l'interface couvert / atmosphère était comparable à l'écoulement dans une couche de mélange, i.e. interface entre deux fluides ayant des vitesses d'écoulement différentes. L'échelle de cisaillement  $L_s$ , caractéristique de ces couches de mélange est introduite (Raupach *et al.*, 1996) :

$$L_s = \bar{u}(h) \left\{ \frac{\partial \bar{u}}{\partial z} \Big|_{z=h} \right\}^{-1} \quad (II.40)$$

où  $L_s/h$  est de l'ordre de  $L_s/h = 0.5$ . Raupach *et al.* (1996) ont montré, pour une grande variété de couverts, que  $L_s$  était proportionnelle à la distance moyenne horizontale entre deux structures turbulentes  $\Lambda_x$ . Ils trouvent  $\Lambda_x = m L_s$ , avec  $m \approx 8.1$  (Figure II.18). Mais  $L_s$  est également proportionnelle à  $\Lambda_w$ , et Raupach *et al.* (1996) obtiennent  $\Lambda_w = 0.71 L_s$ , à  $z = h$ .

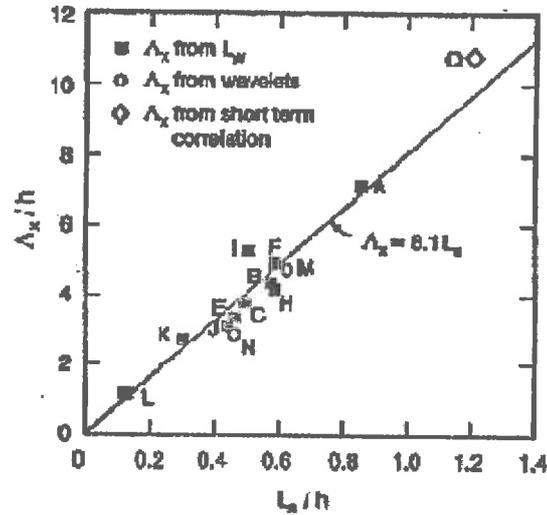


Figure II.18. Relation entre la distance horizontale moyenne séparant deux structures cohérentes  $\Lambda_x$ , et l'échelle de cisaillement  $L_s$ . D'après Raupach *et al.* (1996).

Il faut toutefois remarquer qu'il existe peu de mesures permettant de consolider l'estimation du rapport  $U_c / \bar{u} \approx 1.8$ , où  $U_c$  est la vitesse de convection (Shaw *et al.*, 1995). Malgré cette réserve, Raupach *et al.* (1996) apportent une méthode alternative d'estimation de  $\Lambda_w$  et donc de  $T_L$  où :

$$T_L = \frac{0.71 L_s}{\sigma_w} \quad (\text{II.41})$$

Il est intéressant de comparer les valeurs de  $L_s$  proposées par Raupach *et al.* (1996), avec celles obtenues en utilisant les expressions analytiques des profils de vitesse moyenne du vent dans (exponentielle) et au-dessus du couvert (logarithmiques), exprimés à la hauteur  $z = h$  (Eqn. II.38). D'après les Eqns. II.16a,b II.37 et II.40, il vient :

$$L_s = 1 / \zeta \quad (\text{II.42})$$

$$L_s = \frac{h-d}{\Phi_m((h-d)/L)} \{ \ln((h-d)/z_0) - \Psi_m((h-d)/L) + \Psi_m(z_0/L) \} \quad (\text{II.43})$$

Parce que  $h - d \approx 3 z_0 \ll 1$ , les termes  $\Psi_m$  sont négligeables dans l'Eqn. II.43, et  $L_s$  se simplifie. En conditions neutres l'Eqn. II.43 donne  $L_s / h \approx (h - d) / h \approx 0.25 - 0.3$  [avec  $\ln((h-d) / z_0) \approx 1$ ]. L'Eqn. II.42 conduit également à des valeurs de  $L_s / h \approx 0.25 - 0.4$ , pour un couvert de maïs. Ces valeurs sont inférieures aux valeurs typiques qui sont  $L_s / h = 0.5$  (Raupach *et al.*, 1996), ce qui conduit donc à des valeurs de  $T_{Lw}$  légèrement inférieures à celles généralement proposées. Ceci pourrait notamment s'expliquer par le fait que les expressions utilisées dans les Eqns. II.42-43 ne prennent pas en compte le gradient de vitesse plus faible lié à la sous-couche de rugosité.

Il ne faut toutefois pas oublier, que  $T_{Lw}$  est non mesurable, et qu'il peut uniquement être estimé de façon indirecte, par comparaison de modèles avec des mesures de dispersion.

D'autre part,  $T_{Lw}$  n'est rigoureusement défini qu'en turbulence homogène et stationnaire (Du, 1997), ce qui n'est pas le cas au sein du couvert (Figure II.16). C'est pour ces raisons que dans les modèles de dispersion modernes,  $T_{Lw}$  est plutôt considéré comme un paramètre défini par l'Eqn. II.26. En effet, dans les modèles de dispersion lagrangiens modernes (Thomson, 1987; Wilson et Sawford, 1996),  $T_{Lw}$  n'intervient pas directement, et on lui préfère  $\varepsilon$ , le terme de

dissipation de l'ECT, que nous abordons maintenant.

#### II.2.4 Dissipation d'énergie turbulente dans le couvert

Dans un écoulement turbulent, la dissipation d'ECT en chaleur se fait par frottement visqueux, à des échelles de temps très faibles, de l'ordre de la micro-échelle de Kolmogorov  $\tau_k = (\nu / \varepsilon)^{1/2}$ .  $\tau_k$  est d'environ  $2.5 \cdot 10^{-3} u_*^{-3/2}$  à 1 m de hauteur, et varie entre quelques 0.1 et 1.0 s dans la CLS. L'expression exacte de  $\varepsilon$  est (Coantic, 1976) :

$$\varepsilon = \nu \overline{\left( \frac{\partial u'_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u'_j}{\partial x_i} \right)^2} \quad (II.44)$$

où  $\nu$  est la viscosité cinématique de l'air,  $u'_i$  sont les composantes des fluctuations de la vitesse du vent, et  $x_i$  sont les directions des axes. Ici la convention de sommation d'Einstein est utilisée (somme sur tous les indices  $i$  et  $j$ ). D'après la théorie de Kolmogorov, en turbulence homogène et isotrope, l'ECT est transférée des grandes échelles aux petites, par une "cascade d'énergie", mais n'est pas détruite au cours de ce transfert, et ce n'est que lorsque la dimension des tourbillons devient suffisamment petite pour que le frottement visqueux soit prépondérant que l'ECT est dissipée en énergie interne.

Dans le couvert végétal, l'interaction de l'écoulement avec le feuillage entraîne une dissipation de l'ECT plus rapide par deux effets conjugués ; (i) création d'ECT à petite échelle par travail de l'écoulement moyen contre la traînée de pression du couvert (Ayotte *et al.*, 1999), et (ii) dissipation visqueuse dans la couche limite des éléments du couvert. Ces effets rendent inapplicable la théorie de Kolmogorov, et sont caractérisés par des pentes de spectres d'énergie supérieures à  $-5/3$  (Raupach *et al.*, 1996). Par ailleurs, cette dissipation "de frottement" n'est pas isotrope, puisqu'elle est issue de l'action de l'écoulement moyen sur les feuilles (Ayotte *et al.*, 1999; Wilson, 1987).

En général, la dissipation totale est estimée comme étant la somme d'une contribution "isotrope"  $\varepsilon_l$  et d'une autre "de frottement"  $\varepsilon_d$  (Shen et Leclerc, 1997; Ayotte *et al.*, 1999). La première est basée sur la théorie de Kolmogorov, tandis que la seconde peut être exprimée en fonction du coefficient de frottement du couvert. Des modèles plus ou moins complexes permettent d'estimer  $\varepsilon_l$  et  $\varepsilon_d$  (Ayotte *et al.*, 1999). Voici les formulations souvent utilisées, que l'on peut généraliser de la façon suivante :

$$\varepsilon = \varepsilon_l + \varepsilon_d \quad (II.45a)$$

$$\varepsilon_l = c_\varepsilon \frac{e^{3/2}}{l} \quad (II.45b)$$

$$\varepsilon_d = 2 C_d a \bar{u} f_{ed}(\bar{u}, \sigma_{u,v,w}) \quad (II.45c)$$

où  $c_\varepsilon$  est une constante,  $e^2$  est l'ECT,  $l$  est une échelle de longueur caractéristique,  $C_d$  est le coefficient de traînée de forme et de frottement,  $a$  est la densité de surface foliaire (2 faces),  $\bar{u}$  est la vitesse moyenne de l'air, et  $f_{ed}$  est une fonction de  $\bar{u}$  et  $\sigma_{u,v,w}$ . Les modèles diffèrent dans leur formulation de  $c_\varepsilon$ ,  $l$  et  $f_{ed}$ . Quelques formulations, qui sont représentatives ou innovatrices ont été reprises dans le Tableau II.8. Ayotte *et al.* (1999) montrent que  $\varepsilon_d / \varepsilon_l$  est de l'ordre de  $\frac{1}{2} C_d a \bar{u} h / e^{1/2}$ .

Tableau II.8. Formulation des constantes  $c_\varepsilon$  et  $l$ , et de la fonction  $f_{ed}$  définissant les termes de dissipation de l'énergie cinétique de la turbulence, selon différents auteurs.  $\Delta s$  est un élément de volume, et  $U$  est le module de la vitesse de l'air.

$c_\varepsilon$	$l$	$f_{ed}$	Auteurs
$0.19 + 0.51 l / \Delta s$	$\Delta s$ (instable) $0.76 e^{-1/2} \left( \frac{g}{\theta} \frac{\partial \theta}{\partial z} \right)^{-1/2}$ (stable)	$e$	Shen et Leclerc (1997)
$u_*^3 / e_h^{3/2}$	$kz$	$(U^2 / \bar{u} - \bar{u}U) / 2$ $\sigma_u^2 + \frac{1}{2}(\sigma_v^2 + \sigma_w^2)$ $\frac{\sigma_u^2}{2} + \frac{\bar{u}^2 \sigma_u^2 + \sigma_u^4 + \sigma_w^4 + 2 \overline{uw}^2}{\bar{u}^2}$	Shaw et Seginer (1985) Wilson (1988) Ayotte <i>et al.</i> (1999)

<sup>1</sup> Cité dans Wilson (1988).

### II.2.5 Caractère intermittent des échanges dans les couverts

Comme nous l'avons évoqué à plusieurs reprises, les transferts dans le couvert, sont caractérisés par une forte intermittence, dont le trait principal est l'existence de structures cohérentes de grandes dimensions (Kaimal et Finnigan, 1994 ; Brunet et Collineau, 1994). L'observation des flux dans les couverts met en défaut les théories classiques de diffusion turbulente. On peut évoquer au moins trois arguments : (i) une part non négligeable de la turbulence n'est pas créée localement, mais est transportée (Wyngaard, 1982), (ii) des structures cohérentes sont responsables d'une part importante des échanges (Brunet et Collineau, 1994), et (iii) la diffusivité apparente est fortement dépendante de la distribution des sources (Raupach, 1988).

#### II.2.5.1 Flux à "contre-gradient"

Dans les couverts végétaux, plusieurs auteurs ont observé des flux orientés dans le sens du gradient moyen, alors que en diffusion, le flux est opposé au gradient. Par abus de langage, ils sont appelés flux à contre-gradient. Ceci est illustré par les travaux de Denmead et Bradley (1985) (Figure II.19), qui ont mesuré des flux turbulents de chaleur et de CO<sub>2</sub> à "contre-gradient". Ces flux à contre-gradient sont en général localisés en bas du couvert, là où

l'intensité de turbulence est grande (Wilson *et al.*, 1982).

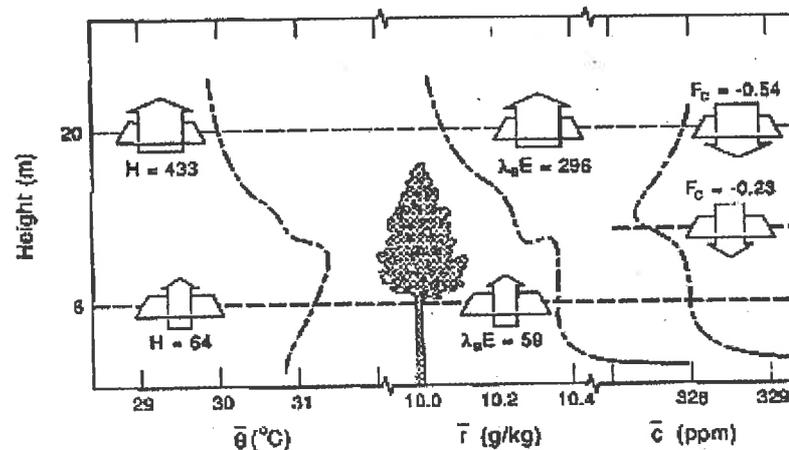


Figure II.19. Profils de température moyenne ( $\bar{\theta}$ ), rapport de mélange en vapeur d'eau ( $\bar{r}$ ), concentration en CO<sub>2</sub> ( $\bar{c}$ ), et flux turbulents à deux niveaux ( $W m^{-2}$  pour  $\lambda_o E$  et H), observés dans une forêt sur une période de 1 heure, à midi. D'après Denmead et Bradley (1985).

L'existence de ces flux à contre-gradient est liée au caractère intermittent des échanges dans le couvert végétal, où des périodes d'éjection (vent faible) sont entrecoupées de courts épisodes de balayage (rafale). L'air dans le couvert reste calme pendant une durée d'environ  $1.8 h / u^*$  (Collineau et Brunet, 1993 ; Brunet et Collineau, 1994 ; Lu et Fizjarald, 1994), pendant laquelle, de jour, l'air se réchauffe au contact du couvert, et un gradient positif de température apparaît dans les basses couches du couvert, et est associé à un flux négatif (situation normale de diffusion). Au-dessus du couvert, les profils et flux sont inversés. Cette période calme est alors perturbée par l'incursion d'air plus froid venu de dessus, couplé à une vitesse de l'air plus élevée, expulsant l'air chaud du couvert, donnant lieu à un flux de chaleur positif très important.

Comme les périodes d'éjection ont une durée bien plus grande que celles de balayages (rafales), elles ont un poids plus important sur la concentration moyenne. Le gradient de concentration moyenne reflète donc ces périodes ; il peut-être positif de jour dans le couvert. Mais le flux lui est représentatif des périodes de balayage pendant lesquelles les échanges sont plus intenses. Il est donc aussi positif, de même sens que le gradient. Ces périodes de balayage et éjections sont caractérisées par des "rampes" sur le signal turbulent que l'on voit bien sur la Figure II.20.

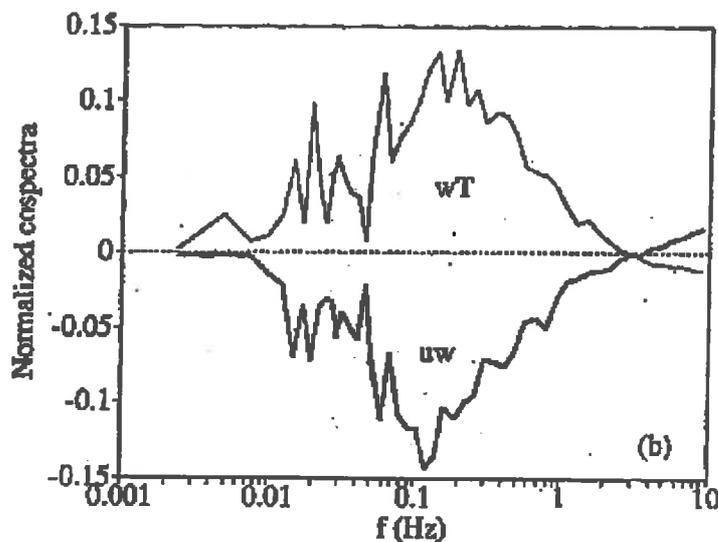


Figure II.22. Cospectres d'énergie des flux turbulents de chaleur et de quantité de mouvement, au-dessus d'un couvert de maïs. Le pic spectral,  $f = 0.1-0.2$  Hz, correspond au temps moyen entre deux rampes 5 à 15 s. Noter la grande variabilité du signal dans les basses fréquences, et la corrélation des spectres à ces fréquences. Noter également l'inversion de signe du spectre aux fréquences élevées. D'après Brunet et Collineau (1994).

### II.2.5.3 Moments d'ordre supérieur de la distribution des vitesses du vent

Les moments d'ordres 3 et 4 des composantes  $u$  et  $w$  de la vitesse du vent sont intéressants à plusieurs titres. Tout d'abord, (i) ils sont liés au caractère intermittent du vent par deux aspects : l'asymétrie des distributions de vitesse du vent, caractérisée par les moments d'ordre 3, dénote la présence de mouvements cohérents (Collineau et Brunet, 1993 ; Brunet et Collineau, 1994) et l'aplatissement des distributions (moments d'ordre 4) indique la présence de rafales (Shaw *et al.*, 1979 ; Aylor *et al.*, 1993). Par ailleurs, (ii) les moments d'ordre 3 sont liés aux termes de transport turbulent de l'ECT qui sont de la forme  $-1/2 \partial(u_i u_j u_k) / \partial x_i$  (Wyngaard, 1982 ; Ayotte *et al.*, 1999 ; Meyers et Baldocchi, 1991). Or l'existence de ces termes invalide la théorie de diffusion turbulente dans les couverts (Wyngaard, 1982 ; Annexe A8). De plus, (iii) les moments d'ordre 3 et 4 peuvent directement être introduits dans les modèles de dispersion lagrangiens (Baerentsen et Berkowicz, 1984 ; Flesch et Wilson, 1992 ; Du *et al.*, 1994a, 1994b ; Monti et Leuzzi 1996 ; Reynolds, 1998). Enfin, (iv) les moments d'ordre 3 et 4 peuvent aussi être introduits dans des facteurs correctifs de la diffusivité turbulente sous certaines conditions (Heinz *et al.*, 1996).

Pour cadrer la discussion, rappelons tout d'abord le lien qui existe entre probabilité, et intermittence. Si l'on considère l'intervalle de temps  $T$  sur lequel sont basées les statistiques du vent ; la probabilité que la fluctuation de vitesse du vent  $u'$  soit supérieure à un seuil  $u_s$  est égale au rapport de la fraction de temps  $\Delta t$  pendant lequel  $u'$  est supérieur à  $u_s$  sur l'intervalle de temps  $T$ . En notation mathématique, cela donne  $P\{u' \geq u_s\} = \Delta t / T$ . Kristensen *et al.*, (1990) propose une analyse plus poussée des "statistiques extrêmes", et une réflexion générale sur la définition de rafales.

Le moment d'ordre 3 d'une variable aléatoire  $x$  centrée (de moyenne nulle), noté  $\overline{x^3}$ , indique l'asymétrie d'une distribution. Si  $\overline{x^3}$  est positif, le poids des contributions positives est supérieur à celui des contributions négatives, ce qui se traduit par :  $P\{x \geq 0\} > P\{x \leq 0\}$ . Si  $\overline{x^3}$  est négatif c'est le contraire. Comme  $x$  est de moyenne nulle,  $\overline{x^3} \geq 0$  indique en réalité qu'il y a plus de valeurs élevées positives que négatives, et l'on rejoint ici la notion de rafale. On se ramène aux composantes de la vitesse du vent,  $u$  et  $w$  en étudiant les variables centrées  $u'$  et  $w'$ .

On utilise souvent le moment d'ordre 3 normalisé appelé coefficient d'aplatissement, que nous noterons  $Sk$  de par son nom anglais (Skewness), qui est défini par :  $Sk_x = \overline{x^3} / \sigma_x^3$ , où  $\sigma_x$  est l'écart-type de  $x$ . Pour une distribution gaussienne symétrique,  $Sk$  est nul, ainsi que tous les moments d'ordres impairs. Cette propriété est par ailleurs vraie pour toute distribution symétrique. Pour une distribution extrême de Gumbel, qui caractérise bien la distribution d'intensité du vent (norme) dans un couvert végétal (Shaw *et al.*, 1979 ; Aylor *et al.*, 1993)  $Sk = 1.15$ . Noter que pour l'intensité du vent (toujours positive),  $Sk$  ne peut être négatif.

Dans le Tableau II.9, sont reportés un certain nombre de valeurs de  $Sk_w$  et  $Sk_u$  issues de mesures et modèles dans des conditions variées. Les valeurs de  $Sk$  très élevées en valeur absolue dénotent d'une distribution avec des rafales (Aylor *et al.*, 1993). Globalement dans le couvert,  $Sk_u \geq 0$  et  $Sk_w \leq 0$ , ce qui dénote de la présence de périodes d'éjections ( $u' \leq 0, w' \geq 0$ ) et de balayages ( $u' \geq 0, w' \leq 0$ ) mais ne permettent pas de différencier les unes des autres. La Figure II.23 montre des différents profils de  $Sk_u$  et  $Sk_w$  mesurés dans les couverts végétaux.

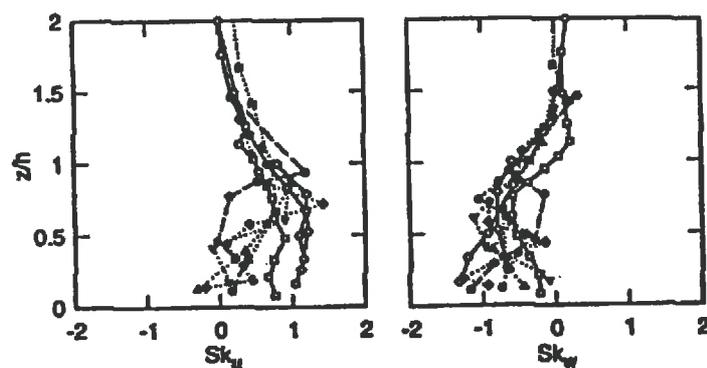


Figure II.23. Profils types de coefficients d'asymétrie  $Sk_u$  et  $Sk_w$ . Repris de Raupach *et al.* (1996).

Dans le couvert, c'est le transport turbulent d'ECT qui est le générateur de "Skewness", et les mesures de Leclerc *et al.* (1991) tendent à montrer que  $Sk_{u,w}$  augmente avec le LAI. Ils montrent par ailleurs que la stratification thermique, exprimée à travers le paramètre  $h/L$ , ne possède un impact sur  $Sk_w$  qu'en condition stable, et dans le couvert uniquement. En effet,  $Sk_w$  décroît quand la stabilité croît. En d'autres termes, la stabilité au-dessus du couvert détruit le "Skewness" dans le couvert (Leclerc *et al.*, 1991).

Dans la CLS, les valeurs de  $Sk_u$  et  $Sk_w$  sont proche de 0, comme pour une distribution

gaussienne (Tableau II.9). En revanche, plus haut dans la couche planétaire, la présence de grosses structures convectives, de jour, crée des alternances de périodes courtes où  $w'$  est positif et élevé, et de longues périodes où  $w'$  est négatif et de faible intensité.  $Sk_w$  est donc positif, comme l'ont mesuré Luhar et Britter (1989).

Tableau II.9. Coefficients d'asymétrie  $Sk_u$  et  $Sk_w$  et coefficients d'aplatissement  $Ku_u$  et  $Ku_w$ , mesurés dans les différents écoulements, ainsi que ceux des distributions gaussienne et de Gumbel (voir par exemple Aylor *et al.*, 1993).

$Sk_u$	$Sk_w$	$Ku_u$	$Ku_w$	$z/h$	Type d'écoulement	Auteurs
<u>Dans le couvert</u>						
1.6 : 3.0 <sup>a</sup>	-	6 : 16 <sup>a</sup>	-	≤ 0.05	Couvert de F. Arundinacea	Aylor <i>et al.</i> , 1993
0.8 : 2.0 <sup>a</sup>	-	3 : 12 <sup>a</sup>	-	≥ 0.20	Couvert de F. Arundinacea	Aylor <i>et al.</i> , 1993
0.5 : 1.0	-0.8 : 0.0	3 : 4	4 : 8	≤ 1	Couvert artificiel soufflerie	Raupach <i>et al.</i> , 1986
0.2 : 1.2	-1.0 : -0.5	-	-	0.3 - 1.0	Couvert de forêt (Aspen et Erable)	Leclerc <i>et al.</i> , 1991
0.0 : 0.8	-0.5 : 0.0	-	-	≤ 1	Modèle LES	Shen et Leclerc, 1997
0.0 : 1.0	-1.2 : 0.0	-	-	≤ 1	Mesures diff. couverts	Brunet et Collineau, 1994 Raupach <i>et al.</i> , 1996 <sup>b</sup>
<u>Au-dessus du couvert</u>						
-1.0 : 0.0	0.0 : 0.8	~ 2.5	~ 3.5	≥ 1	Soufflerie	Raupach <i>et al.</i> , 1986
~ 0	~ 0	-	-	≥ 2	Mesures diff. couverts	Raupach <i>et al.</i> , 1996 <sup>b</sup>
0.0 : 1.0	-0.7 : 0.0	-	-	1 ≤ - ≤ 2	Mesures diff. couverts	Raupach <i>et al.</i> , 1996 <sup>b</sup> Brunet et Collineau, 1994
<u>Distributions types</u>						
0	-	3	-	-	Distribution gaussienne	Aylor <i>et al.</i> , 1993
1.15	-	5.37	-	-	Distribution extrême de Gumbel	Aylor <i>et al.</i> , 1993

<sup>a</sup> Il s'agit de la norme du vecteur vitesse. <sup>b</sup> Compilation de données de nombreux auteurs.

Le moment d'ordre 4 est noté  $\overline{x^4}$ , et il caractérise l'aplatissement symétrique d'une distribution. Plus une distribution est resserrée autour de sa moyenne, avec de longues queues de distribution, et plus ce moment est élevé. Comme pour  $Sk$ , on définit le moment d'ordre 4 normalisé par :  $Ku_x = \overline{x^4} / \sigma_x^4$ . Il est appelé coefficient d'aplatissement, et est noté  $Ku_x$  par référence au nom anglais (Kurtosis). Pour une distribution gaussienne centrée, il vaut 3. Pour une distribution gaussienne centrée, on démontre que les moments pairs d'ordre  $2n$  (notés  $m_{2n}$ ) sont égaux à  $(\sigma_u^2)^n$ .

Peu de données sont disponibles sur les valeurs de  $Ku_u$  et  $Ku_w$  dans la CLS et dans les couverts. Les données reportées dans le Tableau II.9 semblent toutefois indiquer que  $Ku_u$  et  $Ku_w$  dans la CLS sont proches des valeurs gaussiennes. En revanche, dans le couvert elles excèdent largement les valeurs gaussiennes, et même les valeurs des distributions extrêmes de Gumbel. Cela se traduit par des distributions qui en représentations semi-log suivent à peu près une distribution de Gumbel autour de leur valeur moyenne puis qui l'excèdent clairement aux valeurs extrêmes (Shaw *et al.*, 1979 ; Aylor *et al.*, 1993). Les profils de  $Ku_u$  et  $Ku_w$  dans le couvert démontrent qu'il y a une augmentation de l'intermittence du signal avec la profondeur dans le couvert.

Par ailleurs, une étude récente de Heinz *et al.* (1996) ont montré que si la théorie de la diffusivité est valable (i.e. termes de transport d'ECT négligeables), l'échelle de temps

caractéristique des tourbillons porteurs d'énergie est proportionnelle à  $K_{uw}$ . De nouvelles recherches dans cette voie seraient intéressantes.

### II.2.6 Effet d'un changement de rugosité

Un changement de végétation est une situation particulièrement intéressante pour le dépôt sec d'ammoniac à proximité des sources. D'une part parce que c'est une situation qui existe déjà dans la "topographie" des sources agricoles d' $\text{NH}_3$  - i.e. un bâtiment d'élevage entouré d'un bois, ou bien un épandage de lisier sur sol nu à proximité de champs cultivés développés (maïs) -. D'autre part, il est fait de plus en plus souvent mention de l'utilisation de zones de végétation tampon pour les émissions d' $\text{NH}_3$  atmosphériques tout comme il existe des études portant sur les zones d'absorption de nitrates.

Le principe d'une zone tampon pour  $\text{NH}_3$  consiste à entourer les bâtiments d'élevages d'une zone boisée servant de filtre "naturel" à l'air pollué extrait du bâtiment. Ces zones boisées en régions d'agriculture intensive sont bordées de cultures et elles constituent donc bien un changement de rugosité. On ne connaît pas aujourd'hui quelle pourrait être l'efficacité de telles zones, et l'utilisation de modèles prenant en compte la dispersion dans la végétation et le changement de rugosité serait utile.

Par ailleurs, l'estimation des dépôts d' $\text{NH}_3$  à l'échelle d'une région nécessite de prendre en compte les "effets de bords" créés par la présence d'une mosaïque de cultures, prairies, bois, etc., imbriqués les uns dans les autres. A partir de la proportion de bois et forêt présents sur un territoire, et la distribution des dimensions de ces bois, on peut évaluer la surface totale de forêt potentiellement exposée aux effets de bords. En utilisant cette méthode et des statistiques nationales, Draaijers *et al.* (1994) trouvent que plus de 50% de la surface boisée des Pays-Bas est exposée à des effets de bords potentiels. A partir de ces estimations et des données d'un réseau de mesure de dépôts d' $\text{NH}_3$ , les mêmes auteurs montrent que les dépôts secs de polluants pourraient être sous estimés d'environ 10% à l'échelle des Pays-Bas, ce qui montre l'importance de cette situation de changement de rugosité.

Les effets d'un changement de rugosité sont multiples sur les échanges de gaz entre végétation et atmosphère. Il y a tout d'abord un effet de pénétration du vent, parfois appelé advection (Draaijers *et al.*, 1994), qui va diminuer la résistance de transfert dans la couche quasi-laminaire des feuilles,  $r_b$ , qui est proportionnelle à la racine carrée de la vitesse du vent (Monteith et Unsworth, 1990 ; voir §II.3.1). Ceci aura pour effet d'augmenter les dépôts de particules sub-microniennes qui ne sont pas limitées par la résistance stomatique, et en particulier les brouillards et gouttelettes d'eau, ainsi que les aérosols (Weathers *et al.*, 1992). D'un autre côté, la présence d'une forte turbulence va favoriser la ressuspension des particules (Wu *et al.*, 1992), mais cela aura sans doute pour effet "d'étaler" la zone de dépôts mais pas de diminuer ceux-ci. Par ailleurs l'eau déposée lors de périodes humides pourrait aussi plus rapidement s'évaporer en période sèche.

Concernant les gaz, pour lesquels la résistance stomatique est un facteur limitant du dépôt (Fowler *et al.*, 1989), d'autres effets indirects viennent s'ajouter à la turbulence. Le rayonnement plus intense, et les températures plus élevées (Ranney *et al.*, 1978) pourraient réduire la résistance stomatique et ainsi accroître les échanges foliaires (dépôts secs). Toutefois, l'évapotranspiration stimulée par la faible résistance stomatique (Miller, 1980), la surconsommation d'eau engendrée par la présence d'une végétation de sous-bois souvent plus dense aux bords des forêts, et l'arrivée d'air sec directement dans le couvert, pourrait en retour engendrer un stress hydrique limitant l'ouverture stomatique et donc les échanges foliaires dans ces situations.

L'humectation de la surface des feuilles est un facteur important de dépôt pour les gaz solubles comme  $\text{NH}_3$  et  $\text{SO}_2$  (van Hove *et al.*, 1989). Plusieurs arguments contradictoires peuvent être avancés sur l'humectation des feuilles aux bords des forêts. L'interception accrue des brouillards et gouttelettes accroît la présence d'eau libre sur la végétation. Mais l'évaporation est plus intense du fait du rayonnement accru et de l'advection d'air. Par ailleurs, les dépôts d'aérosols sont plus importants, ce qui pourrait favoriser la présence de films d'eau microscopiques créés par la déliquescence des sels d'aérosols très hygroscopiques (Burkhardt et Eiden, 1994 ; voir §II.3.4).

### II.3 Echanges foliaires et dépôts surfaciques de l'ammoniac dans un couvert végétal

Nous avons discuté dans la partie précédente des processus d'échange de scalaire dans la CLS et dans le couvert végétal, et mis en évidence les caractères essentiels. En particulier, nous avons remarqué que dans le couvert végétal, la répartition des sources<sup>2</sup> était prépondérante dans l'expression des flux turbulents ; une source située au sol contribuera faiblement au flux, alors qu'une source située près du sommet du couvert contribuera plus fortement (voir par exemple Nemitz *et al.*, 1998). Il apparaît évident que la répartition des sources et puits d'ammoniac dans la végétation, et la compréhension de leur variabilité en fonction des facteurs micrométéorologiques (température, rayonnement, humidité), et du fonctionnement de la plante (résistance stomatique, point de compensation), est essentiel à l'étude des dépôts secs d'ammoniac.

Plusieurs études montrent que l'ammoniac atmosphérique ( $\text{NH}_3$ ) peut-être absorbé ou émis par la végétation (Sutton *et al.*, 1994). Ainsi les dépôts secs sont en réalité la résultante d'un flux émis par la végétation et d'un flux de l'atmosphère vers la végétation (Flécharde and Fowler, 1998). Trois niveaux d'analyse peuvent être distingués dans l'étude des dépôts secs,

(i) le niveau du couvert végétal, où l'on s'intéresse aux échanges entre l'atmosphère et le couvert pris dans son ensemble, i.e. approche "grande feuille", qui a l'avantage d'être

<sup>2</sup> Dans tous le texte, le terme source désigne une source ou un puit, qui est une source d'intensité négative.

directement reliée aux mesures de flux et de concentration au-dessus d'un couvert, en conditions réelles (Sutton *et al.*, 1993);

(ii) le niveau de la plante que l'on peut étudier en conditions contrôlées, où l'on cherche à relier les processus de dépôt, et d'émission foliaire aux conditions micrométéorologiques et physiologiques (Husted et Schjørring, 1995);

et (iii) le niveau de la feuille ou de l'organe qui permet d'accéder à un niveau de compréhension et de modélisation plus fin, mais aussi plus difficile à valider expérimentalement (Husted *et al.*, 1997).

Nous allons commencer par étudier les processus mis en jeu à l'échelle de la feuille, et remonter ensuite jusqu'au couvert végétal. Pour bien situer la discussion à venir, la Figure II.24 montre les différentes voies connues de l'absorption et du dépôt d' $\text{NH}_3$  dans un couvert végétal, et indique les processus mis en jeu.

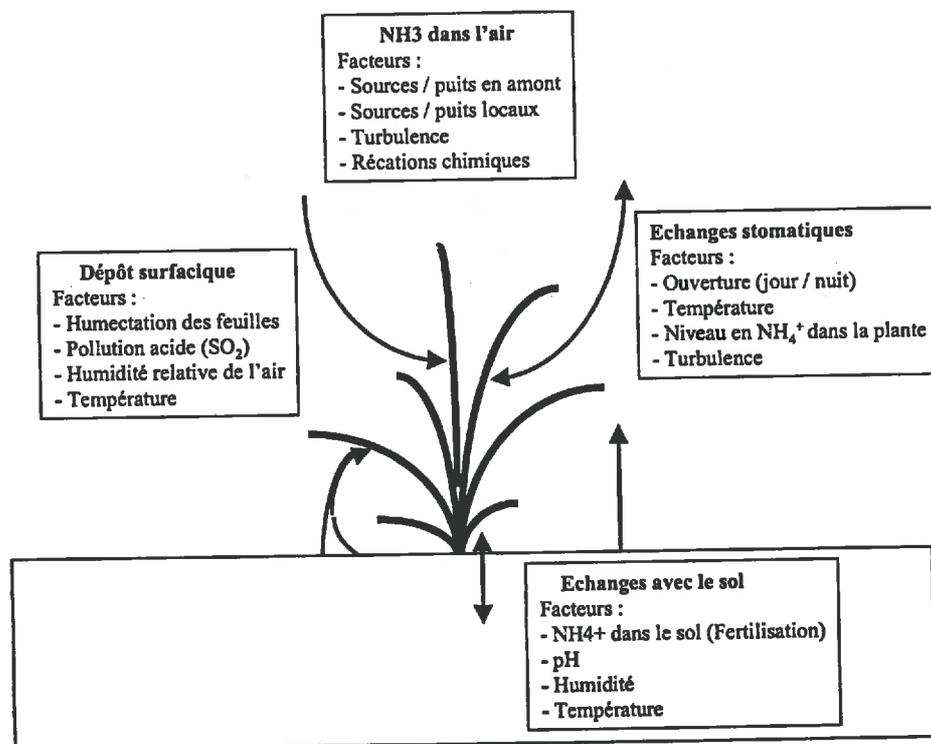


Figure II.24. Schématisation des voies d'échanges d'ammoniac à l'échelle de la plante.

Les paramètres sur lesquels nous allons discuter sont essentiellement les résistances au transfert d'un gaz. Elles sont définies par analogie avec le courant électrique, en identifiant la concentration à un potentiel, et le flux à un courant. On a, en supposant la diffusivité constante, l'analogie (Monteith et Unsworth, 1990):

$$F = K \frac{C_2 - C_1}{x_2 - x_1} = \frac{C_2 - C_1}{R_{1,2}} \quad (II.46)$$

où  $F$  est un flux ( $\text{kg m}^{-2} \text{s}^{-1}$ ),  $K$  est une diffusivité ( $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ ),  $x_{1,2}$  est une distance (m),  $C_{1,2}$  est

une concentration ( $\text{g m}^{-3}$ ), et  $R_{1,2}$ , est une résistance ( $\text{s m}^{-1}$ ). La résistance pour un gaz est donc proportionnelle à une distance sur une diffusivité. Selon que l'on s'intéresse à la plante ou au couvert entier, on distingue deux résistances, des résistances concernant le flux par unité de surface au sol, qui sont notées en majuscule  $R$  ( $\text{s m}^{-1}$ ), et des résistances rapportées à une unité de surface de feuille, notées en minuscules  $r$  ( $\text{s m}^{-1}$ ). Nous allons nous intéresser principalement aux résistances stomatiques pour l'ammoniac ( $r_{s,NH_3}$ ,  $R_{s,NH_3}$ ) et pour la vapeur d'eau ( $r_s$ ,  $R_s$ ). Les conductances associées sont définies par  $g_s = 1/r_s$  et  $V_c = 1/R_s$  ( $\text{m s}^{-1}$ ).

Nous discuterons également le rôle des résistances de couche limite de feuille,  $r_b$ , et de couvert,  $R_b$ , qu'il ne faut pas confondre car elles font appel à des processus différents. L'ammoniac doit diffuser à travers la couche limite qui s'est développée sur la feuille avant d'atteindre la surface de la feuille. Nous allons commencer par étudier cette partie du transfert.

### II.3.1 Diffusion à travers la couche limite pseudo-laminaire

Avant d'atteindre la surface de la feuille, le gaz doit diffuser à travers la couche limite qui se forme sur la feuille. La résistance de cette couche limite, notée  $r_b$ , dépend de la turbulence, mais aussi de la diffusivité moléculaire du scalaire considéré, puisqu'à proximité de la surface de la feuille, dans la sous-couche visqueuse, la diffusivité turbulente tend vers zéro. La résistance de couche limite est généralement d'un facteur 2, et de jour d'un facteur 5, plus petite que la résistance stomatique (Meyers, 1991), ce qui explique qu'elle ait moins été étudiée que  $r_s$  pour des gaz tels la vapeur d'eau ou le  $\text{CO}_2$  qui transitent essentiellement par les stomates (Leuning, 1983 ; Parkhurst, 1994 ; Monteith et Unsworth, 1990).

Dans le cas de l'ammoniac, pour lequel les "dépôts" sur les surfaces sont importants (Fléhard *et al.*, 1999), cette résistance peut s'avérer déterminante dans le contrôle des échanges, particulièrement si le couvert est humide, et que les résistances de surface sont très faibles : Meyers et Baldocchi (1988) montrent que les flux de  $\text{HNO}_3$  sur une forêt sont variables d'un facteur 2.5, et que cette variation est liée à l'incertitude sur  $r_b$ .

Les premières tentatives pour estimer la résistance liée au transfert de gaz dans cette couche limite se sont basées sur des analogies avec des formes géométriques simples, comme des plaques planes pour des feuilles (Monteith, 1973), et des cylindres pour les épinettes et branches (Landsberg et Thom, 1971). Cette approche a le mérite d'apporter une base théorique au problème complexe de l'échange au niveau de l'organe, mais reste éloignée de la réalité, où la rugosité de la feuille, et sa mobilité vont en général abaisser la résistance au transfert (Grace et Wilson, 1976 ; Grace, 1977 ; Figure II.25). Des méthodes permettent de tenir compte de la présence d'autres feuilles qui modifient les paramètres d'échange, et de se rapprocher du cas réel.

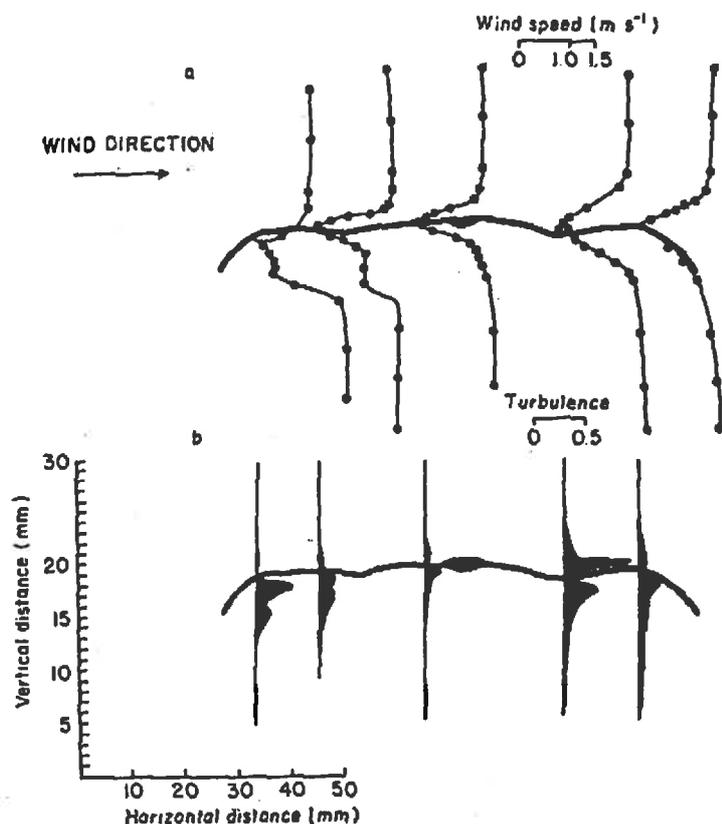


Figure II.25. Visualisation d'un écoulement d'air autour d'une feuille de peuplier fixe en soufflerie. Coupe transversale. L'écoulement externe est laminaire. D'après Grace et Wilson (1976).

Nous allons reprendre les différentes estimations de la littérature, dans diverses conditions, et discuter ensuite leur viabilité dans les cas réels.

### II.3.1.1 Cas d'une feuille idéale – relations de similitudes

La plupart des études visant à étudier la résistance de couche limite se sont basées, par ordre quasiment chronologique, sur des mesures de flux (i) de quantité de mouvement, i.e. frottement total d'un rameau ou d'une feuille mesuré à l'aide d'un bras de restitution de force (Landsberg et Thom, 1971 ; Monteith, 1973), de flux (ii) de chaleur sensible à partir de feuilles factices chauffées (Landsberg et Powell, 1973), de flux (iii) de vapeur d'eau à partir de feuille humectée (concentration de surface constante), (Grace et Wilson, 1976), et (iv) de divers polluants, en utilisant des chambres foliaires permettant l'estimation des flux en conditions "réalistes" (van Hove *et al.*, 1990).

Les équations de transfert sont exprimés avec des nombres adimensionnés qui indiquent l'importance de la diffusion turbulente vis-à-vis du transfert moléculaire (Monteith et Unsworth, 1990) :

$$Re = \frac{Ud}{\nu} \quad (II.47)$$

$$Nu = \frac{H}{\rho C_p (T_s - T_a)} \frac{d}{D_T} \quad (II.48)$$

$$Sh = \frac{E}{(c_{va} - c_{vs}) D_v} \frac{d}{D_v} \quad (II.49)$$

$$Pr = \frac{\nu}{D_T} \quad (II.50)$$

$$Sc = \frac{\nu}{D_v} \quad (II.51)$$

Où  $Re$  est le nombre de Reynolds,  $Nu$  le nombre de Nusselt,  $Sh$  le nombre de Sherwood,  $Pr$  le nombre de Prandtl, et  $Sc$  le nombre de Schmidt,  $U$  et  $d$  sont respectivement des échelles caractéristiques de vitesse et de longueur,  $\nu$  est la viscosité cinématique de l'air ( $1.55 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$  à  $20^\circ\text{C}$ ),  $H$  est le flux de chaleur sensible,  $T_a$  et  $T_s$  sont respectivement les température de l'air et de la surface,  $D_T$  est la "diffusivité thermique" de l'air ( $D_T = \kappa_T / \rho C_p$ , où  $\kappa_T$  est la conductivité thermique,  $D_T = 2.22 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$  à  $20^\circ\text{C}$ ),  $E$  est le flux de vapeur d'eau,  $c_{va}$  et  $c_{vs}$  sont respectivement les concentration (molaires ou volumiques) en vapeur d'eau dans l'air et à la surface de la feuille, et  $D_v$  est la diffusivité moléculaire de la vapeur d'eau dans l'air ( $2.49 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$  à  $20^\circ\text{C}$ ). Le nombre de Prandtl dépend peu de la température, et est de l'ordre de 0.71 pour l'air. En introduisant les résistances de couche limite  $r_{b,c}$  (transfert de chaleur) et  $r_{b,i}$  (composé  $i$ ), et en notant  $D_i$  la diffusivité du composé  $i$ , les Eqns. II.48-49 s'écrivent alors :

$$Nu = \frac{d}{r_{b,c} D_T} \quad (II.52)$$

$$Sh = \frac{d}{r_{b,i} D_i} \quad (II.53)$$

Pour une plaque plane, deux cas ont été intensivement étudiés, le cas d'un écoulement externe laminaire et le cas turbulent (Murphy *et al.*, 1977).

### II.3.1.1.1 Convection forcée laminaire

Dans le cas laminaire, la relation empirique établie dans le cas de plaque plane chauffée, en convection forcée, à concentration de surface constante ou à un flux constant, est de la forme (Murphy *et al.*, 1977 ; Monteith et Unsworth, 1990) :

$$Nu = C_T Re^{1/2} Pr^{1/3} \quad (II.54)$$

$$Sh = C_g Re^{1/2} Sc^{1/3} \quad (II.55)$$

où  $C_T$  et  $C_g$  sont des constantes, qui dépendent de nombreuses conditions, notamment du type de conditions de surface, i.e. flux constant ou concentration constante (peu d'effet), de l'inclinaison de la plaque plane par rapport à l'écoulement moyen (Chen *et al.*, 1988), de la géométrie de la feuille (Murphy *et al.*, 1977), et de la présence d'autres feuilles. Exprimons ces Eqns. II.54-II.55, en terme de résistances  $r_{b,i}$  du composé  $i$  qui peut être la chaleur, ou un

### II.3. Echanges foliaires et dépôts surfaciques de l'ammoniac dans un couvert végétal

gaz :

$$r_{b,i} = \frac{D_i^{-2/3} \nu^{1/6}}{C_i} \left(\frac{d}{U}\right)^{1/2} \quad (II.56)$$

On note donc que dans le cas d'un écoulement laminaire,  $r_b$  est proportionnel à  $U^{1/2}$ . Pour le transfert de vapeur d'eau qui est la référence (avec le  $CO_2$ ) pour les échanges de masse à l'échelle de la feuille, la relation s'écrit (à 20°C,  $C_T = 0.66$ , unités SI) :

$$r_{b,v} = 280 \left(\frac{d}{U}\right)^{1/2} \quad (II.57)$$

D'autres auteurs proposent des valeurs de la constante (280) différente (168 ; van Hove *et al.*, 1990). D'après l'Eqn. II.56, la résistance pour un autre scalaire  $r_{b,i}$  dépend du coefficient de diffusivité du gaz considéré  $D_i$ . Connaissant  $r_{b,v}$ , la diffusivité du scalaire  $i$  se retrouve par :  $r_{b,i}/r_{b,v} = (D_v/D_i)^{2/3}$ . L'exposant 2/3 rend compte des différences entre diffusion de la quantité de mouvement et du scalaire considéré :  $\delta_n/\delta_i = S_{ci}^{1/3}$  (Monteith et Unsworth, 1990). Cet exposant change si celui de  $Pr$  change dans Eqn. II.54. Le tableau II.10 montre pour différents gaz-traces, les estimations de  $r_{b,i}$ . Voir également l'annexe A1 en ce qui concerne les diffusivités.

Tableau II.10. Rapport de la résistance de couche limite de feuille  $r_{b,i}$  pour différents gaz-traces sur celle pour la vapeur d'eau  $r_{b,v}$ , à partir des relations obtenues en écoulement laminaire ou turbulent sur plaque plane, en convection forcée. Les rapports restent approximativement constants pour des températures et pressions variables. Voir texte ci-dessus.

Gaz-trace	Masse molaire <sup>1</sup> g mol <sup>-1</sup>	Diffusivité moléculaire à 20°C <sup>2</sup> × 10 <sup>-5</sup>	$r_{b,i}/r_{b,v}$ Convection forcée laminaire ou turbulent	$r_{b,i}/r_{b,v}$ Convection libre laminaire ou turbulent
H <sub>2</sub> O	18	2.49 (2.42 <sup>3</sup> )	1.00	1.00
CO <sub>2</sub>	44	1.51	1.40	1.46
NH <sub>3</sub>	17	2.29 (2.18 <sup>3</sup> )	1.06	1.06
SO <sub>2</sub>	64	1.22	1.61	1.71
HNO <sub>3</sub>	63	1.18	1.65	1.75
NO <sub>2</sub>	46	1.84	1.22	1.25
O <sub>3</sub>	48	1.58	1.35	1.41
Chaleur	-	1.55	1.08	1.09
V	-	1.55	-	-

<sup>1</sup> Noter que la diffusivité moléculaire n'est pas inversement proportionnelle à la masse molaire, car la taille des molécules joue entre autres un rôle dans la diffusivité. <sup>2</sup> A partir de Monteith et Unsworth (1990). <sup>3</sup> d'après Schjørring (1997).

#### II.3.1.1.2 Convection libre

Si la température de la feuille est élevée, que la vitesse du vent est faible, ce qui est souvent le cas dans un couvert végétal, où comme nous l'avons vu les périodes où l'air est calme occupent une fraction importante du temps, un régime de *convection libre* ou *mixte* peut s'établir autour de la feuille. De nuit, le refroidissement radiatif des feuilles pourrait entraîner un régime de convection libre et donc diminuer la résistance au transfert.

Le nombre adimensionné qui caractérise le régime de convection libre est le nombre de

Grashof  $Gr$  qui exprime le rapport entre terme d'Archimède et terme d'inertie (Coantic, 1976). Nous avons retenu la définition complète du nombre de Grashof, qui prend explicitement en compte la variation de densité de l'air due à la présence d'un gradient de vapeur d'eau (Finnigan et Raupach, 1987). En effet, sa contribution peut être importante, dans le cas que nous étudions, à proximité directe d'une plante qui transpire. Une expression simplifiée du nombre de Grashof est (Monteith et Unsworth, 1990) :

$$Gr = g \frac{d^3}{\nu^2} \left| \frac{\rho_s - \rho_a}{\rho_a} \right| = g \frac{d^3}{\nu^2} \left| \frac{T_s - T_a}{T_a} + 0.378 (q_s - q_a) \right| \quad (II.58)$$

où  $Gr$  est le nombre de Grashof,  $g$  est l'accélération de la pesanteur terrestre,  $d$  est la dimension caractéristique de la feuille,  $T$  est la température de l'air,  $\rho$  est la densité de l'air,  $q$  est la concentration molaire de vapeur d'eau dans l'air, et les indices  $a$  et  $s$  correspondent respectivement à l'extérieur de la couche limite et la surface de la feuille. La transition entre convection forcée et libre se situe pour des nombres de Grashof situés entre 400 et 2000 en régime laminaire (Monteith et Unsworth, 1990). En régime de convection libre, les relations entre groupes adimensionnés sont du type (Monteith et Unsworth, 1990) :

$$Nu = B Gr^m Pr^m \quad (II.59)$$

$$Sh = B Gr^m Sc^m \quad (II.60)$$

où le couple de constante ( $B, m$ ) est approximativement de ( $0.5, 1/4$ ) en régime laminaire, et ( $0.1, 1/3$ ) en régime turbulent pour un grand nombre de géométrie d'objet (Monteith et Unsworth, 1990). En remplaçant dans l'Eqn. II.60 les expressions de  $Sc, Gr$  et  $Sh$ , il vient (à comparer à l'Eqn. II.56) :

$$r_{b,i} = \frac{D_i^{m-1} \nu^m (\rho_a g)^{-m}}{B} \times d^{1-3m} (\Delta\rho / \rho_a)^{-m} \quad (II.61)$$

Où  $\Delta\rho / \rho$  est la différence de densité de l'air normalisée entre la surface et l'air libre. Noter qu'ici, en régime laminaire, le rapport  $r_{b,i} / r_{b,v}$  devient  $r_{b,i} / r_{b,v} = (D_v / D_i)^{3/4}$ . L'exposant vaut  $2/3$  en régime turbulent (Tableau II.10). Pour l'ammoniac, le facteur de correction est faible (6%).

### II.3.1.1.3 Convection forcée turbulente

Lorsque l'écoulement externe (en soufflerie) est turbulent, en convection forcée sur plaque plane, les relations de similitude de l'Eqn. II.56 sont modifiées car les échanges sont plus importants. Les formulations diffèrent, selon que l'on considère que la couche limite turbulente s'étend sur toute la surface de la feuille ou sur une partie seulement. En calculant les expressions de  $r_{b,i}$  à partir des formules proposées par Murphy *et al.* (1977) on a :

$$r_{b,i} = \frac{D_i^{-2/3} \nu^{0.4666} \left( \frac{d}{U} \right)^{0.8}}{C_i} \quad (II.62)$$

où l'Eqn. II.62 correspond au cas totalement turbulent, et  $C_i$  est une constante de l'ordre de

0.036 (Murphy *et al.*, 1977). On note ici d'une part que la résistance décroît plus vite avec  $U$  que dans le cas laminaire, et d'autre part, que la relation de proportionnalité entre composés différents, est identique à celle en régime laminaire (exposant  $-2/3$ ). Ce dernier point montre qu'à proximité de la feuille le transport moléculaire reste important.

Le nombre de Reynolds critique ( $Re_c$ ) marque le passage d'un régime laminaire à turbulent dans la couche limite de la feuille. Les valeurs mesurées diffèrent beaucoup, du fait de la turbulence dans l'écoulement, mais aussi des conditions de surface de la feuille comme sa rugosité, ou sa forme (van Hove *et al.*, 1990).  $Re_c$  est bien plus petit pour une feuille que pour une plaque plane, ainsi, pour une feuille de dimension caractéristique 0.1 m, en régime laminaire, la vitesse critique  $U_{crit}$  de l'écoulement externe sur feuille est de l'ordre de 0.1 à 0.6 m s<sup>-1</sup> (Tableau II.11). Certains auteurs proposent des formulations plus complexes qui tiennent compte du fait que la couche limite de la feuille est partiellement laminaire et turbulente (Murphy *et al.*, 1977).

Tableau II.11. Nombres de Reynolds critiques  $Re_c$  mesurés sur différentes feuilles ou modèles de feuille.

Conditions	Elément	$Re_c$	$U_{crit}$ <sup>1</sup> m s <sup>-1</sup>	Auteurs
Soufflerie, laminaire	Feuille de peuplier	$1 - 8 \times 10^3$	0.15 - 0.6	Grace et Wilson (1976)
Soufflerie, laminaire	Plaque plane	$1 - 10 \times 10^5$	15	Grace (1981) . cité dans van Hove <i>et al.</i> (1990)
Chambre, laminaire <sup>1</sup>	Feuille de haricot	$2 \times 10^3$	0.4	Van Hove <i>et al.</i> (1990)
Champ Maïs	Couvert entier	$\frac{1}{16} \sqrt{Gr}$	$W_{crit} =$	Jacobs <i>et al.</i> (1994) conditions de nuit <sup>2</sup>

<sup>1</sup> en prenant  $d = 0.1$  m, et  $V = 1.5 \times 10^{-5}$  m<sup>2</sup> s<sup>-1</sup>. <sup>2</sup> avec  $w$  comme échelle de vitesse, et  $h$  comme échelle de longueur.

La question de savoir si la couche limite est turbulente ou laminaire est essentielle, car les échanges peuvent en être fortement modifiés. Ainsi la plupart des mesures sur feuille réelle, montrent que les échanges sont plus importants que ceux prédits par les relations données ci-dessus: 2.5 fois (Grace et Wilson, 1976), 1.8 fois (van Hove *et al.*, 1990).

### II.3.1.2 Cas d'une feuille au sein d'un couvert

Lorsque les feuilles sont au sein d'un couvert, l'interaction entre feuilles modifie les relations de similitudes (Eqn. II.62). L'introduction du facteur d'interférence  $p_i(u,d)$  permet de rendre compte de cette modification des échanges (Landsberg et Powell, 1973) :

$$r_{b,i}^* = p_i(U,d) r_{b,i} \quad (II.63)$$

Landsberg et Powell (1973) ont étudié en détail l'effet d'interférence sur une réplique de jeune Pommier, et trouvent que  $p_v$ , pour la vapeur d'eau, est de l'ordre de 1.3-1.8, et qu'il augmente avec la vitesse du vent et avec la densité de surface foliaire. La relation qu'ils obtiennent pour des feuilles sujettes à l'interférence est :

$$r_{b,v} = 195 \left( \frac{d}{U} \right)^{1/2} \quad (II.64)$$

Les mesures de Schuepp (1972a,b) en convection libre semblent indiquer qu'un groupe de feuilles peut avoir une résistance de couche limite bien plus faible que leurs contreparties

individuelles par effet "d'entraînement". L'effet ne peut toutefois être formalisé sous forme d'un facteur étant donné le manque de données en conditions réelles. Les mesures de Kumar et Barthakur (1971) sur des vraies feuilles en souffleries font partie des données les réalistes. Ils trouvent des résistances de couche limite 4 fois plus faibles que celles de Schuepp (1972a,b), mais leur méthode de mesure semble moins sûre.

### II.3.1.3 Cas réel

Plusieurs auteurs rapportent des mesures de  $r_b$  sur de vraies feuilles, en conditions proches de la réalité. En général, ils obtiennent des valeurs de couche limite plus faibles que celles prédites par la théorie : de l'ordre de 1.5 à 2.5 fois plus faible (van Hove *et al.* 1990). Les explications les plus probables sont que la couche limite est turbulente à des nombres de Reynolds critiques plus faibles que ceux mesurés en conditions contrôlées (Grace et Wilson, 1976). Une discussion qui rejoint et complète les arguments de Grace et Wilson (1976) est proposée par Finnigan et Raupach (1987). Ils montrent en effet que le mouvement des feuilles est favorisé par les tourbillons de tailles identiques à celles-ci, et qu'il entraîne une augmentation des échanges (Finnigan et Longstaff, 1982). Ils soulignent ensuite que les processus de transfert spectral favorise l'apparition de tourbillons de la dimension des feuilles, dont l'effet est maximum sur  $r_b$ . Cet effet expliquerait les mesures de Schuepp (1972a,b) donnant un  $r_b$  deux fois plus petit pour des feuilles flottantes que pour des feuilles rigides.

L'action des tourbillons de grande taille sur  $r_b$  est différente, puisqu'elle laisse le temps à la couche limite de feuille de s'ajuster à un nouveau régime d'écoulement (Finnigan et Raupach, 1987). Toutefois, puisque la relation entre  $r_b$  et  $u$  n'est pas linéaire, l'utilisation de la vitesse moyenne du vent dans les expressions de  $r_b$  (Eqns. II.61, II.64) n'est pas correcte. Finnigan et Raupach (1987) proposent pour tenir compte de cela, de pondérer ces expressions par un facteur  $(1 + \frac{1}{2} \sigma_u / \bar{u})$ , où  $\bar{u}$  est la vitesse moyenne du vent.

Lorsque les conditions sont très instables, ou très stables, la convection libre pourrait entraîner un  $r_b$  plus faible que celui prédit par le modèle de convection forcée. On voit sur la Figure II.26, que le régime de convection libre laminaire pourrait stabiliser  $r_b$  entre 200 et 400 s m<sup>-1</sup>, pour de très faibles vitesses du vent. Par ailleurs, la fraction de temps pendant laquelle la vitesse du vent est inférieure à la moyenne  $\bar{u}$  (Figure II.26) montre que la convection pourrait être mixte dans la partie inférieure du couvert où de longues périodes de calme sont entrecoupées de rafales intenses : pour  $z/h = 0.1$ , plus de 95% du temps l'écoulement est en convection mixte (Figure II.26). Pour les tourbillons les plus gros, la couche limite de feuille suit cette dynamique, et un régime de convection libre pourrait avoir le temps de s'établir (Finnigan et Raupach, 1987). Il est donc probable que  $r_b$ , à la base d'un couvert développé, soit surestimé par les expressions de convection forcée utilisant  $\bar{u}$  (Eqns. II.61 et II.64).

Toutefois, pour les couverts denses, qui sont aussi ceux où l'intermittence est la plus

intense (Aylor *et al.*, 1993), l'écart de température entre feuilles et air est moins faible en bas du couvert qu'au sommet, et donc la convection serait moins intense. De nuit, la convection libre limite également  $r_b$  en conditions très stables, et à notre connaissance aucunes mesures de  $r_b$  *in situ* n'existent de nuit (Finnigan et Raupach, 1987). Toutefois, on sait que le régime de convection libre s'installe pendant les périodes de forte stabilité, de nuit, (Jacobs *et al.*, 1994), et il est également susceptible d'apparaître par forte instabilité, pendant les périodes de calme, comme le suggère la Figure II.26, et les arguments de Finnigan et Raupach (1987).

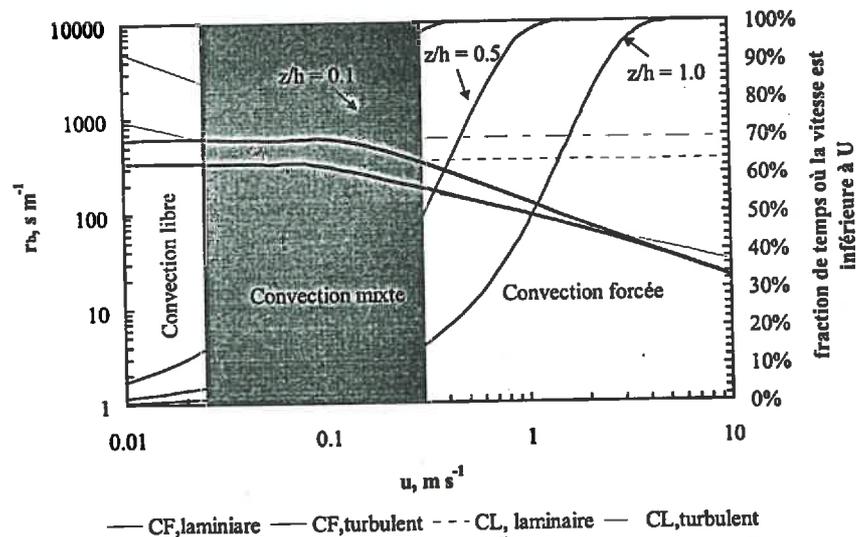


Figure II.26. Résistance de couche limite de la feuille en fonction de la vitesse du vent  $u$  (courbes en gras), et fraction du temps  $f_r$  pendant lequel la vitesse du vent est inférieure à  $\bar{u}$  pour trois hauteurs (courbes indiquées par des flèches).  $f_r$  est calculé en supposant une turbulence gaussienne,  $\sigma_u / u_* = 2.4$  au-dessus du couvert, et une décroissance exponentielle de  $\sigma_u / u_*$  dans le couvert (Aylor *et al.*, 1993). La dimension caractéristique de feuille est  $d = 0.1$  m. En régime de convection libre, l'écart de température entre couvert et air est supposé de  $1^\circ\text{C}$ , et la température de l'air de  $20^\circ\text{C}$ .

D'autres processus pourraient être à l'origine des différences entre mesure et théorie. La présence de "poils" sur la surface des feuilles peut entraîner une augmentation de la résistance de couche limite de l'ordre de  $l / D_i$ , où  $l$  est la hauteur des poils, et  $D_i$  est la diffusivité (Jones, 1992). Au contraire, en conditions humides, la présence de poils, pourrait entraîner une diminution de l'épaisseur de la couche limite pour  $\text{NH}_3$  qui est très soluble dans l'eau, mais aussi, le dépôt de rosée sur ces poils pourrait accroître la surface apparente de la feuille.

On peut donc tirer les conclusions suivantes : en conditions réelles, (i)  $r_b$  est certainement inférieur à la valeur généralement admise (Eqn. II.61, II.64) du fait d'un  $Re_c$  plus faible (Grace et Wilson, 1976 ; van Hove, 1990), du mouvement des feuilles et de la présence de gros tourbillons (Finnigan et Raupach, 1987), et (ii) pour de très faible vitesse de l'air, le développement d'un régime de convection libre devrait limiter  $r_b$  de nuit comme de jour (Figure II.26; Tableau II.12).

Tableau II.12. Récapitulatif des expressions de la résistance de couche limite de feuille, pour différents régimes, obtenus à partir des relations adimensionnées (voir texte). Les valeurs typiques correspondent à  $\Delta t = 1^\circ\text{C}$ ,  $T_a = 20^\circ\text{C}$ ,  $HR = 70\%$ ,  $U = 0.3 \text{ m s}^{-1}$  et  $d = 0.03 \text{ m}$ .

Conditions	$r_{s,l} (20^\circ\text{C})$ $\text{s m}^{-1}$	$R_{b,NH_3} (20^\circ\text{C})$ $\text{s m}^{-1}$	Valeur typique <sup>1</sup> $r_{b,NH_3}, \text{s m}^{-1}$	Valeur typique $g_{b,NH_3}, \text{mm}^{-2}\text{s}^{-1}$
CF, Laminaire	$0.239 D_i^{-2/3} \left(\frac{d}{U}\right)^{1/2}$	$297 \left(\frac{d}{U}\right)^{1/2}$	100	10
CF, turbulent	$0.158 D_i^{-2/3} \left(\frac{d^{0.8}}{U^{0.8}}\right)$	$196 \left(\frac{d^{0.2}}{U^{0.8}}\right)$	70	15
CL laminaire	$0.067 D_i^{-3/4} [\Delta\rho / d \rho_a]^{1/4}$	$203 [\Delta\rho / d \rho_a]^{1/4}$	200 - 400	2 - 5
CL, turbulent	$0.108 D_i^{-2/3} [\Delta\rho / \rho_a]^{-1/3}$	$134 [\Delta\rho / \rho_a]^{-1/3}$	500 - 900	1 - 2

<sup>1</sup> pour obtenir une valeur approchée rapportée à  $1 \text{ m}^2$  de sol, diviser par le LAI.

### II.3.2 Échange d'ammoniac par voie stomatique

Comme pour le  $\text{CO}_2$ , la vapeur d'eau, et tout polluant gazeux, plusieurs travaux montrent sans ambiguïté que la plante absorbe et émet de l'ammoniac par voie stomatique (Sutton *et al.*, 1995a ; Schjørring *et al.*, 1993a,b). L'échange résulte essentiellement de la diffusion du gaz entre l'extérieur de la feuille et la chambre sous-stomatique, et de l'équilibre physico-chimique à l'interface liquide-gaz dans celle-ci (Taylor *et al.*, 1988 ; Monteith et Unsworth, 1990). Le fonctionnement des stomates en réponse à des facteurs de stress et à la lumière ne sera pas discuté en détail ici, et on peut se référer à Jarvis (1976) et Baldocchi *et al.* (1987). En revanche, les caractères spécifiquement liés à l'ammoniac, et en particulier à sa réactivité chimique vis à vis de la feuille, présentent un intérêt dans cette étude. C'est essentiellement aux transferts en phase gazeuse que nous intéresserons, l'interaction avec la phase aqueuse étant discutée plus en détail dans la partie suivante (*cf.* §II.3.3).

La résistance stomatique foliaire varie entre espèces, du fait de la morphologie différente des stomates, et du nombre de stomates par unité de surface foliaire (Monteith et Unsworth, 1990). En général, les feuilles possèdent entre 100 et 200 stomates par  $\text{mm}^2$ . Placées sur la face inférieure, ou sur les deux faces des feuilles, leur longueur varie entre 10 et 30  $\mu\text{m}$ , et leur largeur varie entre 5 et 10  $\mu\text{m}$  au maximum de leur ouverture (Meidner et Mansfield, 1968). La surface occupée par les stomates sur la feuille est relativement constante entre espèce, et de l'ordre de 1% (Monteith et Unsworth, 1990). Sur la base d'une unité de surface de feuille, la résistance stomatique peut être définie par la relation suivante :

$$F = \frac{1}{r_s}(C_o - C_i) \quad (II.65)$$

où  $C_o$  et  $C_i$  sont respectivement les concentrations à la surface de la feuille et dans les stomates,  $F$  est le flux, et  $r_s$  est la résistance stomatique. On utilise souvent la notion de conductance stomatique  $g_s$  qui est l'inverse de la résistance stomatique. Pour une espèce donnée, la résistance stomatique dépend de l'ouverture des stomates, qui augmente avec le rayonnement solaire, mais qui est limité par divers stress, tel que le stress hydrique, la

température, l'humidité de l'air. Il a été démontré que l'absorption de polluants en forte quantité (par exemple O<sub>3</sub>) a également un effet sur le fonctionnement des stomates (Darrall, 1989).

#### II.3.2.1 Résistance stomatique pour l'ammoniac

La résistance stomatique est souvent estimée à partir de la résistance stomatique pour la vapeur d'eau, simplement pour des raisons météorologiques, car d'une part il existe des méthodes de mesure de la transpiration foliaire à différentes échelles (chambres, poromètres, méthodes micrométéorologiques), et d'autre part que la "concentration interne" de la vapeur d'eau, peut être estimée à partir d'une mesure de la température de surface qui donne la pression de vapeur d'eau saturante dans la feuille (Monteith et Unsworth, 1990).

D'autres gaz dont la concentration interne est nulle, et dont les flux sont aisément mesurables, tels que l'ozone (O<sub>3</sub>) sont couramment utilisés pour estimer la résistance stomatique de référence. Il faut toutefois s'assurer dans ce cas que le gaz ne se dépose pas sur les surfaces externes des feuilles, ce qui fait encore l'objet de spéculations pour l'ozone (Grantz *et al.*, 1997).

Le transfert de gaz de la surface jusqu'à l'intérieur de la feuille s'effectue par diffusion moléculaire. Cela signifie que la résistance stomatique est inversement proportionnelle à la diffusivité moléculaire du gaz :

$$r_{sNH_3} = \frac{D_{H_2O}}{D_{NH_3}} r_{sH_2O} \quad (II.66)$$

Comme la diffusivité moléculaire des gaz varie de façon quasi-identique en fonction de la température, cette relation (Eqn. II.66) est équivalente à  $r_{sNH_3} = 0.92 r_{sH_2O}$ . Mais la résistance stomatique dépend également de la distance "moyenne" que parcourent les molécules de gaz entre l'entrée dans la chambre sous-stomatique et la zone où elles sont diluées dans la solution apoplastique, film liquide entourant les cellules (Taylor *et al.*, 1988).

Cette distance dépend essentiellement (i) de la solubilité du gaz dans la solution apoplastique, que l'on peut assimiler à de l'eau en première approximation, et (ii) de l'affinité chimique dans la phase aqueuse (Taylor *et al.*, 1988). La Figure II.27 montre pour trois gaz de solubilité très différente, l'absorption relative en fonction de la distance (Taylor *et al.*, 1988). Comme la solubilité d'NH<sub>3</sub> est plus de 10 fois plus grande que celle de SO<sub>2</sub>, l'ammoniac devrait, d'après la Figure II.27, se déposer rapidement sur les stomates, et dans la cavité sous-stomatique, mais très peu au-delà.

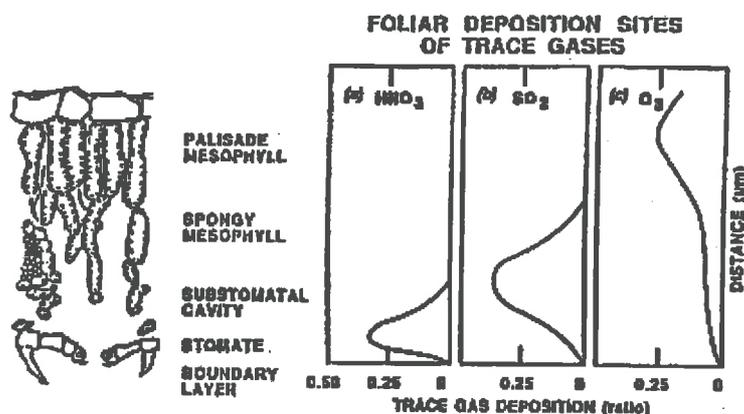


Figure II.27. (a) Représentation schématique d'une coupe transversale de feuille autour d'un stomate, et des différents organes internes ayant un rôle dans les échanges gazeux entre la plante et l'atmosphère, et (b) proportion du gaz absorbé en fonction de la distance à l'entrée, pour trois polluants gazeux de solubilité dans l'eau différente : HNO<sub>3</sub>, ∞; SO<sub>2</sub>, 3559; O<sub>3</sub>, 21.9 μmol cm<sup>-3</sup>. L'ammoniac ayant une solubilité de 52789 μmol cm<sup>-3</sup> se situerait donc entre le SO<sub>2</sub> et l'HNO<sub>3</sub>. D'après Taylor *et al.* (1988).

Ainsi, la résistance stomatique pour NH<sub>3</sub> ( $r_{sNH_3}$ ) dépend de la distance moyenne de diffusion  $\Delta x_{NH_3}$ , ce qui se traduit par la modification de l'Eqn. II.66 en (Schjørring, 1997) :

$$r_{sNH_3} = \frac{D_{H_2O} \Delta x_{NH_3}}{D_{NH_3} \Delta x_{H_2O}} r_{sH_2O} \quad (II.67)$$

Toutefois, la détermination de  $\Delta x_{NH_3}$  et  $\Delta x_{H_2O}$  ne peut être qu'indirecte. Elle est basée sur la détermination simultanée des flux de H<sub>2</sub>O et d'NH<sub>3</sub>, proportionnels à la conductance, pour différentes concentrations en NH<sub>3</sub> et H<sub>2</sub>O, et est donc difficile. La mesure des conductances stomatiques pour ces deux composés, sur du pois (van Hove *et al.* 1990) et sur du colza (Husted et Schjørring, 1996) semblent indiquer que  $\Delta x_{NH_3}$  et  $\Delta x_{H_2O}$  sont du même ordre de grandeur, pour différentes humidités relatives et déficits de pression de vapeur entre la feuille et l'air (Figure II.28a).

Ce résultat peut être généralisé pour des plantes ayant un point de compensation faible, d'après les résultats de Husted et Schjørring (1996) pour un  $C_p$  inférieur à 1.5 μg NH<sub>3</sub> m<sup>-3</sup>. Mais Schjørring (1997) fait remarquer que cela n'est valable que pour des plantes dont le point de compensation est faible : pour un  $C_s$  de 4.5 μg NH<sub>3</sub> m<sup>-3</sup>, la conductance stomatique pour NH<sub>3</sub> est en effet 5 fois supérieure à celle pour la vapeur d'eau. Schjørring (1997) soutient que ceci est dû à un raccourcissement du chemin diffusif dans la cavité sous-stomatique, lié à l'accroissement de la concentration en NH<sub>4</sub><sup>+</sup> dans l'apoplasme. Mais cela pourrait également indiquer une variabilité spatiale interne du point de compensation, liée soit au pH, soit à la concentration en NH<sub>4</sub><sup>+</sup> de l'apoplasme.

D'autres mesures (Husted *et al.*, 1996) semblent indiquer que  $\Delta x_{NH_3}$  diminuerait en période de sénescence (Figure II.28b), mais la perméabilité accrue de la cuticule et des cellules de l'épiderme pourraient être à l'origine de la diminution de la résistance stomatique

observée pendant cette période. Cette dernière hypothèse est renforcée, par les observations de Nemitz (CP) qui montre que les modèles de point de compensation ne fonctionnent pas sur des feuilles sénescentes détachées, indiquant donc que l'émission d' $\text{NH}_3$  ne dépend pas de la concentration externe.

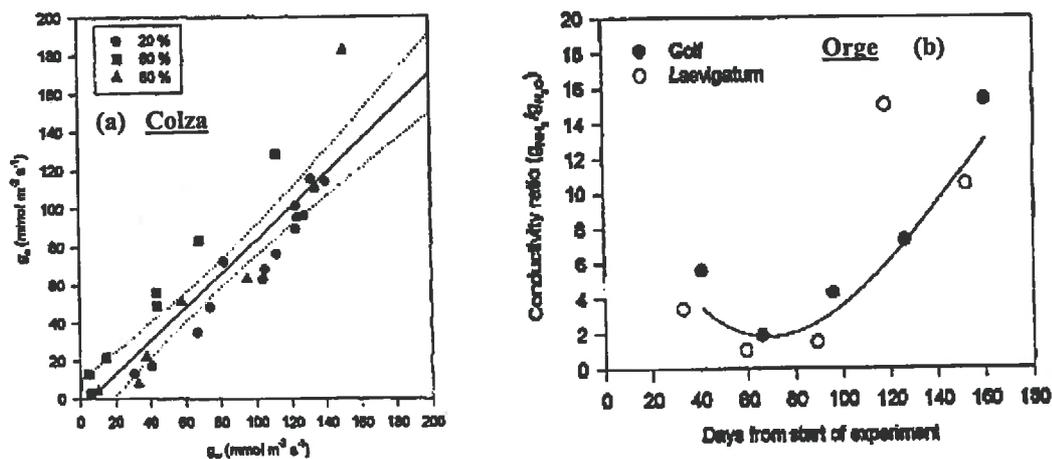


Figure II.28. (a) Conductance stomatique pour l'ammoniac  $g_{NH_3}$  en fonction de la conductance stomatique pour la vapeur d'eau  $g_{H_2O}$  pour du colza à faible statut azoté, et (b) rapport  $g_{NH_3} / g_{H_2O}$  en fonction du stade de développement sur deux variétés d'orge. Dans le (a), l' $\text{NH}_3$  est absorbé par la plante, alors que dans le (b), il est émis et absorbé suivant la période. Une conductance stomatique plus forte pour  $\text{NH}_3$  indique un flux plus important. Noter que dans le (a) la conductance est exprimée en unité de flux, et doit donc être divisée par la concentration pour obtenir la conductance en  $\text{m s}^{-1}$ . Repris de Schjørring (1997).

Les variations de  $r_{sNH_3}$  en fonction de l'humidité relative, ou du déficit de pression de vapeur (DPV) de l'air, ne sont pas aujourd'hui clairement déterminées. C'est aussi le cas pour  $r_{sH_2O}$ , mais pour  $\text{NH}_3$ , d'autres processus interviennent. L'humidité agit sur le dépôt d' $\text{NH}_3$  sur les surfaces externes de la feuille, et il est donc difficile de dissocier les deux phénomènes de dépôt surfacique et d'absorption (van Hove *et al.*, 1990). Les résultats de ces derniers auteurs semblent indiquer qu'il n'y a pas d'effet du DPV sur  $r_{sNH_3}$ , tout comme semble le montrer la Figure II.28a. Mais van Hove *et al.* (1990) montrent qu'il y a une influence importante du DPV sur le flux de  $\text{SO}_2$ , qu'ils attribuent au développement d'un film liquide dans la cavité sous stomatique. Mais alors, cela devrait également induire une augmentation du dépôt d' $\text{NH}_3$ , qui n'est pas observée par van Hove *et al.* (1990).

Par ailleurs, Wyers et Erisman (1998), ont obtenu des estimations de la résistance totale du couvert  $R_c$  (l'équivalent de  $r_s + r_b$  ici) sur forêt de conifère, en condition de dépôt, de jour et sans dépôt d'eau visible sur les feuilles, donc avec un faible potentiel de dépôt surfacique. Leurs résultats montrent que  $R_{cNH_3}$  est bien plus faible que  $R_{cH_2O}$  de jour. Ils expliquent ce phénomène par la déliquescence d'aérosols dont les sites de dépôt sont situés près des stomates, sous l'effet de la forte humidité liée à la transpiration des feuilles de jour, créant ainsi une zone humide autour des stomates. Ces explications sont toutefois spéculatives, car

leurs mesures ne permettent pas de discerner l'adsorption surfacique de l'absorption, et leur formulation de  $R_c$  ne prend pas en compte le point de compensation stomatique, ce qui pourrait entraîner une sous-estimation de la résistance de couvert, en période chaude lorsque  $C_s$  est élevé (Sutton *et al.*, 1995a), et donc une sous-estimation de  $R_{cNH_3}$ .

Etant donné la faible fraction molaire d'ammoniac dans l'air, typiquement 0.1 à 100 nmol NH<sub>3</sub> mol<sup>-1</sup>, l'effet de diffusiophorèse (Leuning, 1983) pour l'ammoniac, est négligeable. La diffusiophorèse est le processus de diffusion d'un composé sous l'action des collisions moléculaires avec d'autres composés ayant un flux non nul. Ici, la question qui se pose est la suivante : le flux de vapeur d'eau lié à la transpiration entraîne-t-il un flux de diffusiophorèse de l'ammoniac important? En adaptant les travaux de Leuning (1983) au cas de l'ammoniac, les corrections apportées à  $r_{sNH_3}$  seraient au maximum de 10% ; un fort flux de vapeur d'eau aurait tendance à accroître l'absorption d'NH<sub>3</sub>, car la masse molaire de l'eau est inférieure à celle de l'air, donc les molécules sortant des stomates ont en moyenne moins de poids que celles entrant.

### II.3.2.2 Réponse des stomates aux facteurs environnementaux

Les stomates représentent pour la plante la principale voie d'échange du carbone et de l'azote avec l'atmosphère. Les autres voies étant les cuticules, participant notamment à la respiration nocturne, et les nodosités racinaires des légumineuses qui réalisent la fixation symbiotique de l'azote (Söderlund et Svensson, 1976). Le carbone, élément essentiel de la plante, est absorbé au niveau des tissus mésophyllaires où la pression de CO<sub>2</sub> est maintenue à un niveau faible par une constante dégradation du carbone par photosynthèse (Figure II.27). La vapeur d'eau, quant à elle, diffuse de l'intérieur vers l'extérieur de la plante (sauf en situation de dépôt de rosée), et participe, par la quantité d'énergie latente qu'elle transporte à refroidir la surface de la feuille, puisque l'évaporation d'une mole d'eau consomme 44 kJ (Monteith et Unsworth, 1990).

La dynamique de l'ouverture stomatique est adaptée de façon à optimiser la photosynthèse sous certaines contraintes. C'est pourquoi elle dépend quasi linéairement *rayonnement photosynthétiquement actif* (PAR), qui est la source énergétique du processus. La plupart des modèles de conductance (ou résistance) stomatique  $g_s$ , expriment celle-ci comme une fonction du PAR qui est linéaire autour de 0, et qui tend asymptotiquement vers un maximum  $g_{smax}$  ( $r_{smin}$  si l'on parle de résistance) (Jarvis, 1976; Tableau II.13). L'intensité de rayonnement à partir duquel  $g_s$  atteint le maximum dépend de la concentration atmosphérique en CO<sub>2</sub>, puisque plus celle-ci augmente, plus le flux est important pour une même ouverture stomatique, et plus vite il atteint le flux optimum de carbone nécessaire à la photosynthèse (Baldochi, 1993).

Tableau II.13. Exemple de résistances stomatiques minimales  $r_{smin}$  pour différents couverts. Données reportées dans <sup>1</sup>Baldocchi *et al.* (1987), <sup>2</sup>Saugier et Katerji (1991), <sup>3</sup>Denmead (1977), <sup>4</sup>Uchijima (1976), et <sup>5</sup>Allen et Lemon (1977).

Végétation	$R_{smin}$ s m <sup>-1</sup>	LAI m <sup>2</sup> m <sup>-2</sup>
Sapin	232 <sup>1</sup>	-
Chêne	145 <sup>1</sup> - 200 <sup>2</sup>	4.2
Soja	65 <sup>1</sup>	-
Forêt équatoriale	250 <sup>3</sup>	-
Blé	73 <sup>3</sup>	6 - 7 <sup>*</sup>
Maïs	242 <sup>1</sup> - 180 <sup>4</sup>	5 - 6 <sup>*</sup>
Luzerne	59 <sup>2</sup>	4.7
Tournesol	120 <sup>2</sup>	1.8
Cocotier	120 <sup>2</sup>	4.5
Noisetier	132 <sup>2</sup>	5.6

\* Valeur typique pour la culture

Plusieurs contraintes ou stress, limitent l'ouverture stomatique de jour. Le stress hydrique est le mieux connu : le manque d'eau entraîne une fermeture stomatique pour limiter la perte d'eau autour des racines qui pourrait être fatale à la plante. Ce stress apparaît lorsque le potentiel hydrique de la feuille  $\Psi_f$  (Mpa) descend au-dessous d'un seuil  $\Psi_0$ , et évolue ensuite de façon quasi linéaire avec le potentiel (Baldocchi *et al.*, 1987). Le stress hydrique provoqué par le manque d'eau est courant pendant les périodes chaudes dans les zones sèches. Un stress hydrique faible se caractérise par une légère fermeture des stomates autour de midi (Olioso *et al.*, 1995). D'autres stress existent ; le stress dû à des températures trop élevées, ou trop basses, et le stress dû à un déficit de pression de vapeur de la feuille.

D'autres facteurs exercent un stress sur la plante pouvant conduire à une fermeture stomatique, notamment le dépôt de polluants tels que l'Ozone (O<sub>3</sub>) et le dioxyde de soufre (SO<sub>2</sub>), (Darrall, 1989). Mais l'effet de ces polluants est moins bien connu, et ils sont par ailleurs souvent différents à court et long terme du fait d'une adaptation possible des plantes.

Les modèles de conductance stomatique  $g_s$  sont souvent basés sur l'approche de Jarvis (1976), qui considère que  $g_s$  est le produit de fonctions indépendantes, chacune liée à un paramètre environnemental,  $PAR$ ,  $T_f$  et  $VPD_f$  :

$$g_s = g(PAR) g(T_f) g(VPD_f) \quad (II.68)$$

où  $T_f$  est la température de feuille, et  $VPD_f$  est le déficit de pression de vapeur à la surface de la feuille.

### II.3.3 Le point de compensation stomatique pour l'ammoniac

La notion de point de compensation a été introduite par Farquhar *et al.* (1983). Il peut être défini de plusieurs manières, suivant le niveau auquel on se place. A l'échelle du couvert, c'est la concentration atmosphérique pour laquelle on observe un flux nul, lorsque l'humidité relative est faible, c'est à dire lorsque les dépôts surfaciques peuvent être négligés (Sutton *et al.*, 1995b; Fléchar, 1998). Au niveau de la feuille, la même définition peut être donnée, mais

$C_s$  correspond alors à la concentration d' $\text{NH}_3$  en phase gazeuse dans la chambre sous-stomatique (Schjørring, 1997).

### II.3.3.1 Équilibre thermodynamique et chimique

Le point de compensation stomatique pour l'ammoniac  $C_{s\text{NH}_3}$  est la concentration en ammoniac gazeux dans la cavité stomatique, en équilibre avec la concentration en  $\text{NH}_3$  dans la solution apoplastique  $[\text{NH}_3]_{\text{aq}}$  (Fig. II.29). Cette dernière résulte elle-même de l'équilibre acido-basique entre  $\text{NH}_4^+$  (acide) et  $\text{NH}_3$  (base conjuguée) dans l'apoplasme.

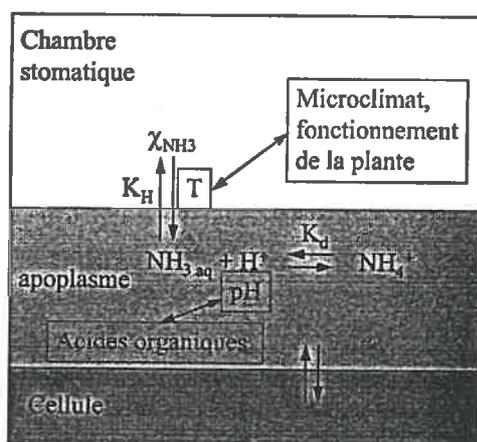


Figure II.29. Schématisation de l'équilibre thermodynamique chimique dans la cavité sous stomatique. En haut la phase gazeuse, au milieu l'apoplasme (solution intercellulaire), et en bas les cellules (cytoplasme). En gras sont représentés les équilibres thermodynamiques et chimiques (voir texte), et en clair, les facteurs environnementaux influants sur chacun des équilibres.

L'équilibre entre  $\text{NH}_{3\text{aq}}$  et  $\text{NH}_{3\text{g}}$  résulte de l'agitation thermique des molécules, et le rapport des fractions molaires dans les phases aqueuses et gazeuses dépend donc essentiellement de la température. L'équilibre est caractérisé par la constante de Henry  $K_H$ , ou bien, ce qui est équivalent, la solubilité de  $\text{NH}_3$ , dont il existe plusieurs définitions. L'équilibre chimique est caractérisé par la constante d'acidité, ou constante de dissociation  $K_d$ , qui dépend également de la température. Les équilibres thermodynamiques et chimiques sont résumés dans la relation d'équilibre :

$$C_{s\text{NH}_3} = K_d \times K_H \frac{[\text{NH}_4^+]}{[\text{H}^+]} \quad (\text{II.69})$$

où  $C_{s\text{NH}_3}$  est en  $\text{mol l}^{-1}$  (d'air), et  $K_d$  est en  $\text{mol l}^{-1}$  et  $K_H$  est sans unités. Les crochets indiquent une concentration en  $\text{mol l}^{-1}$  (de solution), et  $[\text{NH}_4^+]$  est la concentration en ions ammonium dans la solution apoplastique. Les valeurs des constantes à  $25^\circ\text{C}$  sont (voir par exemple Fléchar, 1998) :

$$K_d^{25^\circ\text{C}} = 10^{-9.25} [\text{mol l}^{-1}] \quad (\text{II.70})$$

$$K_H^{25^\circ\text{C}} = 10^{-3.14} \quad (\text{II.71})$$

Noter qu'ici la constante de Henry est sans unité. Une autre définition classique de la constante

de Henry est :  $p_{NH_3} = [NH_{3aq}] / H_n$ , où  $p_{NH_3}$  (atm) est la pression d' $NH_3$ ,  $[NH_{3aq}]$  ( $mol\ l^{-1}$ ) est la concentration en ammoniac dans la phase aqueuse, et  $H_n$  ( $mol\ l^{-1}\ atm^{-1}$ ) est la constante de Henry. L'équivalent de l'Eqn. II.71 pour  $H$  est  $H^{25^\circ C} = 10^{-1.76}\ mol\ l^{-1}\ atm^{-1}$ .

Les constantes d'équilibre  $K_d$  et  $K_H$  sont des fonctions de la température (Schjørring, 1997) :

$$C_{sNH_3} = K_d^{25^\circ C} \times K_H^{25^\circ C} \exp\left(\frac{\Delta H_{dis}^0 + \Delta H_{vap}^0}{R} \left(\frac{1}{298.15} - \frac{1}{T}\right)\right) \frac{[NH_4^+]}{[H^+]} \quad (II.72)$$

$$\Delta H_{dis}^0 = 52.21\ kJ\ mol^{-1} \quad (II.73)$$

$$\Delta H_{vap}^0 = 34.18\ kJ\ mol^{-1} \quad (II.74)$$

où  $R = 8.3114\ J\ mol^{-1}\ K^{-1}$ ,  $T$  est en K, et  $\Delta H_{dis}^0$  et  $\Delta H_{vap}^0$  sont respectivement les enthalpies libres de dissociation de l'équilibre  $NH_3/NH_4^+$  et de vaporisation d' $NH_3$ . Etant donné les valeurs élevées des  $\Delta H_{dis}^0$  et  $\Delta H_{vap}^0$ ,  $C_s$  dépend très fortement de la température : globalement, une variation de  $5^\circ C$  multiplie  $C_s$  par 2.

L'avantage d'exprimer  $C_{sNH_3}$  sous cette forme, est de faire apparaître le rapport  $[NH_4^+] / [H^+]$ , appelé  $\Gamma$ , qui est indépendant de la température, et qui caractérise donc le *potentiel* d'une plante pour émettre ou absorber de l'ammoniac.  $\Gamma$  est déterminé par la concentration en  $NH_4^+$  dans l'apoplasme, et le pH de ce dernier. Il reflète donc plus le rôle de la physiologie de la plante dans les échanges d' $NH_3$  que le microclimat. Les deux paramètres  $[NH_4^+]$  et pH, varient fortement entre espèces, et en fonction des apports azotés de la plante comme l'indique le Tableau II.14 (Sutton *et al.*, 1994 ; Schjørring, 1997).

Tableau II.14. Point de compensation stomatique mesuré sur des feuilles, des plantes individuelles, ou des couverts végétaux par différentes techniques pour différents types de couvert. Lorsqu'il est disponible, le pH et la concentration en  $\text{NH}_4^+$  de l'apoplasme est également donné.  $\Gamma$  est le rapport  $[\text{NH}_4^+] / [\text{H}^+]$ .

Type d'écosystème	Statut azoté	Méthode d'estimation	$C_s$ (25°C) $\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$	$[\text{NH}_4^+]$ mM	pH	$\Gamma$	Auteurs
<b>Mesures au champ</b>							
Prairie intensive coupée	160 kg N ha <sup>-1</sup> a <sup>-1</sup>	μmétéo	40	13 <sup>1</sup>	e	12600	Sutton <i>et al.</i> (1998)
Prairie intensive haute	160 kg N ha <sup>-1</sup> a <sup>-1</sup>	μmétéo	4	3.5 <sup>1</sup>	e	3500	
<i>Hordeum vulg.</i> L. (golf)	limité	μmétéo	3.0 - 6.4 (20°C)	0.8 - 1.7 <sup>1</sup>	e	790	Husted <i>et al.</i> (1996)
<i>Hordeum vulg.</i> L. (laev.)	limité	μmétéo	0.8 - 5.3 (20°C)	0.2 - 1.4 <sup>1</sup>	e	210	Husted <i>et al.</i> (1996)
<i>Deschampsia flexuosa</i> L.	limité en milieu pollué	μmétéo	3.0 (24°C)	0.5 <sup>1</sup>	e	490	Schjørring <i>et al.</i> (1998)
<i>Triticum aestivum</i> L.	-	μmétéo	4 - 6 (5 - 20°C)	3.4 - 5.0 <sup>1</sup>	e	3400	Yamulki <i>et al.</i> (1996)
<i>Triticum aestivum</i> L.	Très pollué	μmétéo	20-25 (?)	5.3 - 6.6 <sup>1</sup>	e	5300	Harper <i>et al.</i> (1987)
Sapin	-	Chambres	0.4 (T° ?)	0.1 <sup>1</sup>	e	100	Kesselmeir <i>et al.</i> (1993)
<i>Calluna vulgaris</i> L.	pollué (0.74% N dans MS aé.)	μmétéo	60. (20°C)	16 <sup>1</sup>	e	16000	Schjørring <i>et al.</i> (1998)
<i>Calluna vulgaris</i> L.	Faible	μmétéo	0.05 (2°C)	0.1 <sup>1</sup>	e	110	Sutton <i>et al.</i> (1992)
<i>Eriophorum vaginatum</i> L.	Faible	μmétéo	0.1 (13°C)	0.1 <sup>1</sup>	e	60	Sutton <i>et al.</i> (1992)
PV, ZM, AE, EP	Moyen	μmétéo	2 - 6 (25 - 32°C)	0.2 - 0.6 <sup>1</sup>	e	210	Farquhar <i>et al.</i> (1980)
<b>Mesures en laboratoire</b>							
<i>Arrhenatherum elatius</i> L.	élevé	Chambres	0.03 (20°C)	0.28	5.8	20	Hanstein <i>et al.</i> (1999)
<i>Bromus erectus</i> L.	élevé	Chambres	0.23 (20°C)	0.22	6.2	360	Hanstein <i>et al.</i> (1999)
<i>Hordeum vulgare</i> L.	-	?	-	-	7.3	-	Pearson <i>et al.</i> (1998)
<i>Hordeum vulgare</i> L.	2.5 (0.5) mM $\text{NO}_3^-$ ( $\text{NH}_4^+$ )	Extraction	1.7 (24°C)	0.05	6.6	200	Mattsson <i>et al.</i> (1998)
<i>Hordeum vulgare</i> L.	2.5 mM $\text{NH}_4^+$	Extraction	27 (24°C)	1.0	6.5	3200	Mattsson <i>et al.</i> (1998)
<i>Hordeum vulgare</i> L.	10 mM $\text{NH}_4^+$	Extraction	40 (24°C)	2.2	6.3	5800	Mattsson <i>et al.</i> (1998)
<i>Brassica Napus</i> L.	élevé	Extraction	4.2 - 6.0 (25°C)	1.0 - 1.1	5.8	630	Husted et Schjørring (1995)
<i>Brassica Napus</i> L.	faible	Chambres	0.4 (25°C)	0.5	5.3	325	Schjørring (1997)
<i>Brassica Napus</i> L.	moyen	Chambres	1.7 (25°C)	0.5	5.5	370	Schjørring (1997)
<i>Brassica Napus</i> L.	élevé	Chambres	4.1 (25°C)	1.0	5.5	502	Schjørring (1997)
<i>Brassica Napus</i> L.	élevé	Chambres	15 (31°C)	-	-	502	Schjørring (1997)

<sup>1</sup> estimation de  $[\text{NH}_4^+]$  et  $\Gamma$  obtenue à partir de  $C_s$  en supposant que le pH est de 6.

### II.3.3.2 Réponse du point de compensation aux apports azotés

Les mesures en laboratoire et au champ, indiquent que les émissions d'ammoniac par la plante dépendent des apports azotés de celle-ci (Schjørring *et al.*, 1993a; Mattsson et Schjørring, 1996). La forme ammoniacale semble engendrer un point de compensation plus élevé que les apports sous forme nitrate (Mattsson et Schjørring, 1996). Cette différence se retrouve sur les flux d'ammonium dans xylème, et dans la feuille. En revanche, le pH de l'apoplasme semble être plus faible pour des apports d'azote sous forme  $\text{NH}_4^+$  que  $\text{NO}_3^-$  (Hoffmann *et al.*, 1992; Pearson *et al.*, 1998), ce qui agit en sens inverse sur le point de compensation.

La relation quantitative entre apports azotés et point de compensation stomatique n'est toutefois pas claire à ce jour. Schjørring *et al.* (1993b) montrent que la quantité de  $\text{NH}_4^+$  dans la plante croît avec la quantité d'azote apportée dans des feuilles de blé. Au contraire, Mattsson *et al.* (1998) trouvent une relation inverse entre apport et concentration en  $\text{NH}_4^+$  total et dans le flux de xylème, sur du houblon. Par ailleurs, Olsen *et al.* (1995) obtiennent une corrélation positive entre concentration en ammonium total et apport d'azote sous forme  $\text{NO}_3^-$  ou  $\text{NH}_4^+$ , mais cette corrélation ne se retrouve pas dans les émissions d' $\text{NH}_3$  par les feuilles.

L'incohérence apparente de ces résultats pourrait être due aux variations du pH de l'apoplasme avec les apports azotés (Eqn. II.72).

En effet, théoriquement, l'apport de nitrate devrait entraîner l'augmentation du pH de la plante par la perte d'un ion  $H^+$  au cours du processus de réduction du nitrate en nitrite et du nitrite en ammonium, qui est la forme assimilable de l'azote (Farquhar *et al.*, 1983). Toutefois, ces considérations théoriques ne renseignent aucunement sur le comportement du pH de l'apoplasme. Des résultats expérimentaux apportent des indications intéressantes :

L'extrusion par les racines d'ions  $H^+$  et  $OH^-$  dans la solution nutritive est un moyen indirect d'estimer le changement de pH engendré par l'apport de nutriments. Yin et Raven (1997) ont ainsi mesuré respectivement sur des plantes en  $C_3$  (*Triticum aestivum* L.) et  $C_4$  (*Zea mays* L.), une extrusion de 2.03 et 1.49  $H^+$  par N assimilé sous forme  $NH_4^+$ , 0.66 et 0.60  $H^+$  par N de  $NH_4NO_3$ , et une consommation de 1.12 et 0.54  $H^+$  par N de  $NO_3^-$ . Ce résultat infirme les estimations théoriques de Farquhar *et al.* (1983), et montre d'autre part que les plantes en  $C_3$  et en  $C_4$  réagissent différemment vis-à-vis de la régulation du pH. D'autres auteurs ont obtenu des résultats semblables (Loss *et al.*, 1993; Thibaud et Grignon, 1981).

Même si la plante extrude des protons lors d'un apport d'ammonium, Raven (1985) a montré qu'il est un facteur d'acidification de la solution intercellulaire. En utilisant une méthode consistant à laisser baigner des feuilles détachées dans une solution dont on mesure ensuite le pH, Pearson *et al.* (1998) trouvent que le pH de l'apoplasme de feuilles d'orge augmente de pH 6.8 à pH 7.3, après l'addition de 6 mM d' $NO_3^-$  sous forme  $KNO_3$  dans le milieu nutritif. Des mesures par fluorescence, sur des feuilles de tournesol, ont également montré que le pH de l'apoplasme est plus grand pour des plantes nourries au nitrate, que celles recevant de l'ammonium. Plus généralement, Hoffmann *et al.*, 1992 ont mesuré sur tournesol que le pH de l'apoplasme augmente dans le sens  $(NH_4)_2SO_4 \leq NH_4NO_3 \leq KNO_3$ . Une étude réalisée à l'ITTE d'Edimbourg sur du maïs en serre montre également un accroissement du pH avec la quantité de  $NH_4NO_3$  apportée (Loubet *et al.*, 1999 ; Annexes B). Ainsi, même si le bilan au niveau de la plante indique une acidification globale, liée à l'absorption racinaire de  $NO_3^-$  et une alcalinisation par absorption de  $NH_4^+$ , il semble que dans la solution apoplastique, c'est le contraire se produise.

#### II.3.3.3 Lien entre $C_3$ et le métabolisme azoté de la plante

Le cycle photosynthétique et photorespiratoire sont des processus qu'il est important de considérer dans l'étude de la dynamique des échanges d' $NH_3$  entre la plante et l'atmosphère. Yin *et al.* (1996) ont montré expérimentalement, que l'assimilation ou métabolisation de l'ammoniac atmosphérique absorbé se faisait dans les feuilles elles-mêmes, et que le processus à l'origine de cette assimilation était la photosynthèse et la photorespiration. Ces processus libèrent en effet des molécules "accepteurs d'azote", essentielles pour la synthèse des matériaux organiques de la plante (Farquhar *et al.*, 1983)

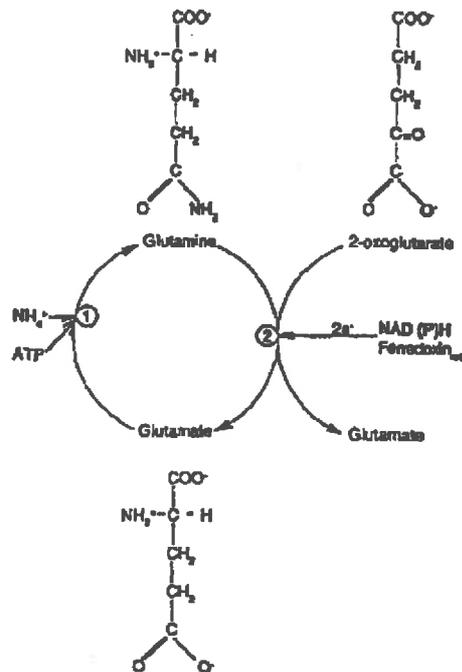


Figure II.30. Cycles de glutamate synthase (GOGAT) et glutamine synthétase (GS). D'après Schjørring (1991).

$\text{NH}_x$  est un intermédiaire essentiel dans ces cycles (Fig. II.30) ;  $\text{NH}_4^+$  est produit en grandes quantités dans le cycle photorespiratoire, à des taux environ 100 fois plus importants que les flux d' $\text{NH}_3$  observés entre la plante et l'atmosphère. L' $\text{NH}_x$  est libéré dans les mitochondries, et est rapidement assimilé dans le chloroplaste sous forme de glutamate, sous l'action de la glutamine synthétase (GS) et la glutamate synthase (GOGAT), à des taux de l'ordre de 0.23 mole d' $\text{NH}_3$  par mole de  $\text{CO}_2$  fixé (à 25°C) (Schjørring, 1991 ; Farquhar *et al.*, 1983 ; Fig. II.30). Ce rapport est 5 fois plus important que le rapport N : C fixé dans une plante contenant 2% d'azote (par poids de matière sèche) (Farquhar *et al.*, 1983). Le taux de production de  $\text{NH}_4^+$  par la photorespiration est donc de loin la plus importante source de  $\text{NH}_x$  dans les feuilles. Il est également plus de 10 fois supérieur au taux de production par la réduction du nitrate dans le cycle nitrate / nitrite réductase (Wallsgrave *et al.*, 1983).

L'ammonium ainsi produit, est utilisé dans les mitochondries pour la synthèse de la Glutamine à partir du Glutamate, sous l'action catalytique de la Glutamine Synthase (GS) (Fig. II.30). Cette assimilation s'effectue dans le cytoplasme ou le chloroplaste, mais très probablement dans le chloroplaste pour les plantes en  $\text{C}_3$  (Farquhar *et al.*, 1983). Le cycle est ensuite bouclé dans le chloroplaste par la synthèse du Glutamate à partir de la Glutamine sous l'action de l'enzyme GOGAT.

Les deux enzymes GS et GOGAT jouent donc un rôle prépondérant dans le contrôle des échanges d' $\text{NH}_3$ , à travers le contrôle de l'assimilation de  $\text{NH}_x$  dans les feuilles. De nombreuses études utilisant la méthionine sulfonine (MSO), qui est un inhibiteur de GS, ont montré sans ambiguïté le rôle de cette enzyme dans l'assimilation de  $\text{NH}_x$  (Olsen *et al.*, 1995;

Mattsson et Schjørring, 1996; Pearson *et al.*, 1998).

Le déclin de l'activité de GS et GOGAT est sans doute à l'origine de l'augmentation de la concentration en  $\text{NH}_x$  dans les feuilles sénescentes (Schjørring *et al.*, 1993b; Woodall *et al.*, 1996; Pearson *et al.*, 1998), qui s'accompagne d'émissions de  $\text{NH}_3$  par les feuilles, comme l'ont constaté de nombreux auteurs (Farquhar *et al.*, 1979; Schjørring *et al.*, 1993a; Pearson *et al.*, 1998).

#### II.3.3.4 Evolution saisonnière du point de compensation

Plusieurs études font état de la variabilité des émissions d' $\text{NH}_3$  au cours du développement d'une culture arable (Hooker *et al.*, 1980; Morgan *et al.*, 1989; Francis *et al.*, 1997; Schjørring, 1997). Cette variabilité serait liée à la mobilisation de l'azote des parties végétatives vers les parties reproductives et les racines lors de la floraison (Schjørring *et al.*, 1993a, 1993b). L'azote est généralement transporté sous forme d'amides qui sont de "bon" transporteurs, c'est à dire de faible coût énergétique, étant donné leur faible fraction C/N (Schjørring, 1997). L'ammonium est libéré lors de la dégradation des protéines en amides, et lors de la transformation de ces amides en aminoacides dans les parties reproductives. Cette libération est très certainement à l'origine des fortes émissions observées lors des périodes de floraison (Schjørring *et al.*, 1997 ; et Fig. II.31).

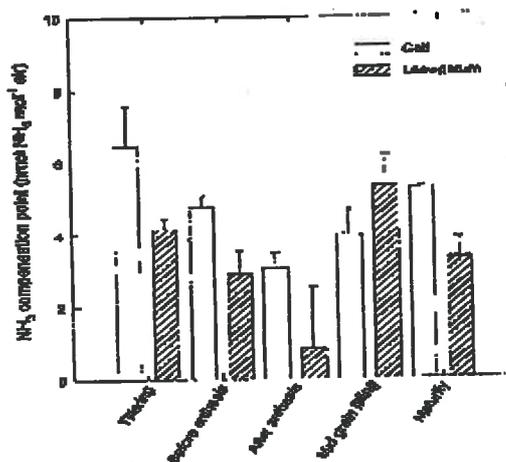


Figure II.31. Evolution saisonnière du point de compensation stomatique pour l'ammoniac  $C_{sNH_3}$ . D'après (Husted *et al.*, 1996).

Les émissions les plus fortes sont souvent observées aux alentours de la floraison ou de la sénescence (Schjørring *et al.*, 1993a; Morgan *et al.*, 1989), bien que parfois, les émissions soient plus fortes pendant la période de croissance foliaire de plantes fortement fertilisées (Husted *et al.*, 1996 ; Fig. II.31).

D'autres raisons peuvent aussi expliquer la variation saisonnière de  $C_s$ . Notamment, la vitesse de croissance de la plante, mais aussi la disponibilité de l'azote dans le sol, et la forme de cet azote ( $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NH}_4^+$ ), peuvent, comme nous venons de le voir, entraîner des différences

de concentration en  $\text{NH}_4^+$  et / ou de pH et donc de  $C_s$ . N'oublions pas également la variation saisonnière de température de surface, qui entraîne de très fortes variations de point de compensation : par exemple, une amplitude annuelle des maxima journaliers de  $20^\circ\text{C}$ , caractéristique d'un climat semi-tempéré (Paris), engendre des variations de  $C_s$  d'un facteur 16. Les cycles annuels de dépôts et d'émissions semblent montrer une telle dépendance (Yamulki *et al.*, 1996 ; ). A cela, il faut également ajouter la variation du LAI qui, sans engendrer des modifications directes de  $C_s$ , modifie l'amplitude des flux.

#### II.3.4 Dépôt d'ammoniac sur la surface des feuilles

Comme nous l'avons déjà plusieurs fois évoqué,  $\text{NH}_3$  est très soluble dans l'eau, et est l'un des seuls composé alcalin dans l'atmosphère (Seinfeld et Pandis, 1998). Il est donc très réactif, et se dépose sur les surfaces des feuilles, par adsorption sur les cires, ou dissolution dans les films d'eau libre présents sur la feuille. Les travaux de van Hove *et al.* (1987) suggèrent toutefois que l'absorption de l'ammoniac à travers la cuticule est très lente, et correspond à des résistances d'environ  $5000 \text{ s m}^{-1}$ . Il ne s'agit donc pas d'absorption, mais de stockage temporaire de l'ammoniac qui peut être libéré lors de l'évaporation du film d'eau, comme l'indiquent les pics d'émission d' $\text{NH}_3$  parfois observés lors de l'évaporation de la rosée matinale (Flécharde *et al.*, 1999).

La présence d'eau libre sur la surface des feuilles est un facteur essentiel du dépôt surfacique d' $\text{NH}_3$ , comme l'indiquent les mesures de dépôt après une pluie, ou lors de nuits avec rosée (Flécharde *et al.*, 1999). Toutefois, plusieurs études sur des écosystèmes semi-naturels et des forêts semblent indiquer que les dépôts surfaciques d' $\text{NH}_3$  existent également en conditions sèches, c'est à dire lorsqu'il n'y a pas de film d'eau apparent sur les feuilles (Duyzer *et al.*, 1992 ; Sutton *et al.*, 1992 ; Wyers et Erisman, 1998). Les résultats de van Hove *et al.* (1988, 1989) montrent quant à eux, que l'adsorption d' $\text{NH}_3$  augmente avec l'humidité relative. Le flux d'adsorption sur la cuticule ( $F_w$ ) peut être exprimé en fonction d'une résistance, que l'on appelle résistance cuticulaire ( $R_w$ ). Si le flux stomatique est nul, on a  $F_w = -C_c / R_w$ , où  $C_c$  est la concentration dans l'air environnant la feuille. La Figure II.32 montre l'évolution de  $R_w$  en fonction de l'humidité relative de l'air, en le comparant à d'autres types de supports.

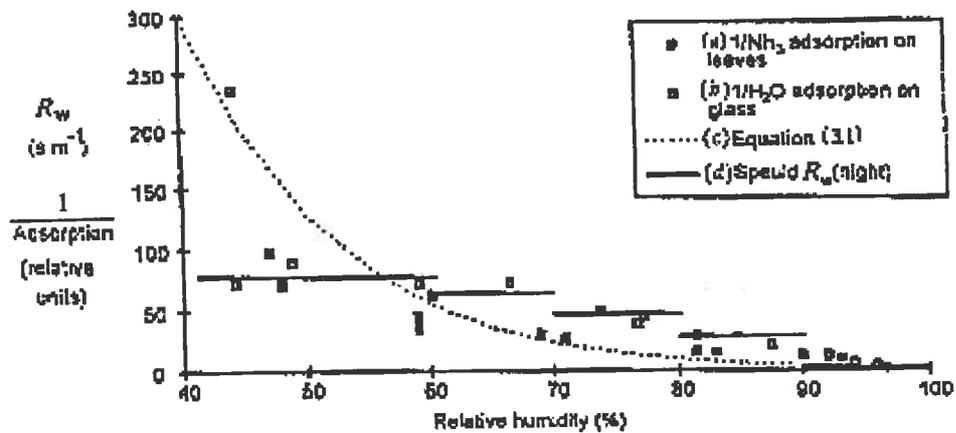


Figure II.32. Résistance cuticulaire en fonction de l'humidité relative de l'air (RH), et  $1/F_w$  pour plusieurs types de surfaces. D'après Sutton *et al.* (1995a).

Ainsi l'eau, vecteur des dépôts surfaciques, peut être présente sous forme de gouttelettes d'eau microscopiques, même lorsque les feuilles paraissent sèches. Des considérations théoriques sur les champs de concentration en vapeur d'eau autour des stomates montrent que l'humidité relative à la surface d'une aiguille de pin est toujours supérieure à 90% alors que l'humidité de l'air en dehors de la couche de surface de la feuille est de 50% (voir par exemple Meidner et Mansfield, 1968 ; Fig. II.33). Les travaux de Burkhardt et Eiden (1994) indiquent que la combinaison de cette humidité de surface élevée avec la présence de dépôts d'aérosols entraîne la formation de films liquides très fins à la surface des feuilles par déliquescence des sels minéraux. Les sels minéraux ont en effet généralement un seuil de déliquescence situé en dessous de 90% d'humidité.

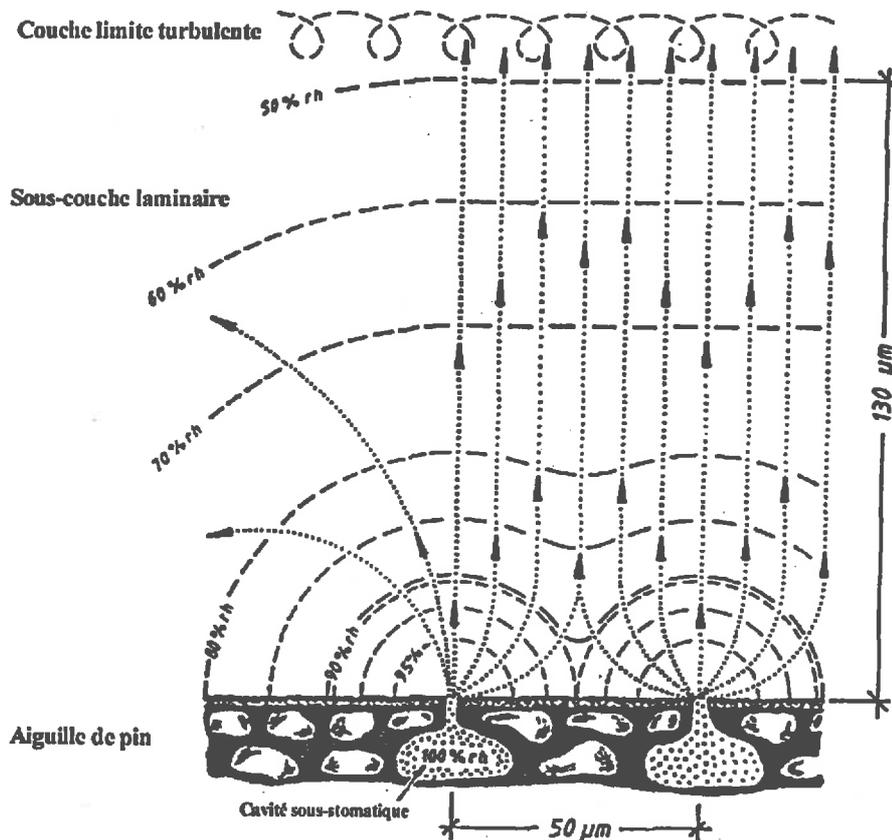


Figure II.33. Représentation schématique du champ d'humidité à la surface d'une aiguille de pin (repris de Burkhardt et Eiden, 1994 ; d'une référence plus ancienne ; Meidner et Mansfield, 1968) . Distance entre stomates, 50 µm, épaisseur de couche limite, 130 µm, humidité relative de l'air 50%.

La masse d'eau ainsi adsorbée par la déliquescence des sels représenterait environ  $\frac{3}{4}$  de la masse d'aérosols présents, ce qui correspond à des films très fins, de l'ordre du nanomètre (Burkhardt et Eiden, 1994). Burkhardt et Eiden (1994) ont clairement montré que des aiguilles de pin "polluées", c'est à dire détachées d'un arbre en région polluée, soumises à une concentration de  $75 \text{ mg NH}_3 \text{ m}^{-3}$  absorbent  $\text{NH}_3$  alors que des aiguilles préalablement lavées ne l'absorbent pas. Par ailleurs, Burkhardt *et al.* (1999) ont récemment mis en évidence la condensation de vapeur d'eau sur la surface des feuilles lors des périodes de transpiration. Le fait que seul le côté de la feuille comportant des stomates présente les signes d'un dépôt indique que l'origine de cette eau est stomatique (Burkhardt *et al.*, 1999). S'il est avéré que la présence de sels à la surface de la feuille accroît la condensation (Burkhardt *et al.*, 1999), l'existence de "films" liquides pour des humidités relatives de l'air aussi faible que 20% suggère qu'il existe d'autres processus ou sites de condensation, tels que la cuticule. Il existe en effet plusieurs études qui indiquent que l'adsorption cuticulaire augmente de façon exponentielle avec l'humidité relative (voir Burkhardt *et al.*, 1999, pour une liste des citations).

Le dépôt d' $\text{NH}_3$  dans les films d'eau à la surface des feuilles saturerait rapidement vu les

faibles quantités d'eau mises en jeux. Toutefois, l'interaction de  $\text{NH}_3$  avec d'autres composés acides présents dans l'atmosphère, pourrait stimuler le dépôt surfacique d' $\text{NH}_3$  (Sutton *et al.*, 1993). Ainsi, le terme de "co-déposition" est souvent utilisé pour désigner les dépôts couplés d' $\text{NH}_3$  et  $\text{SO}_2$  (Sutton *et al.*, 1993 ; Sutton *et al.*, 1995b). Une possibilité pour expliquer ce processus est que la feuille serve de substrat fixe pour la formation de sulfate d'ammonium. Les aérosols déjà présents à la surface de la feuille peuvent également servir de noyau de condensation et favoriser la condensation de ces sels d'ammonium dans l'atmosphère très humide qui règne à proximité des stomates. En plus de stimuler leurs dépôts respectifs, la co-déposition aurait donc tendance à favoriser la présence de films d'eau par le processus décrit ci-dessus.

L'interaction avec d'autres composés acides présents en quantité dans l'atmosphère, tels que  $\text{HNO}_3$  et  $\text{HCl}$  existe également. Toutefois, parce que les sels d'ammonium associés,  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  et  $\text{NH}_4\text{Cl}$ , ont une pression de vapeur saturante élevée, comparée à  $\text{NH}_4\text{SO}_4$  (Seinfeld et Pandis, 1998), la condensation est moins importante.

La présence de sels acides à la surface des plantes, où du dépôt de gaz acides entraîne donc, en terme de schéma de résistance une diminution de  $R_w$  pour  $\text{NH}_3$ . La présence de gaz acide n'est toutefois pas toujours d'accroître le dépôt d' $\text{NH}_3$ , et dépend de l'existence d'un point de compensation. En effet, une large concentration atmosphérique de  $\text{SO}_2$  entraîne la baisse de la concentration atmosphérique d' $\text{NH}_3$ , qui peut tomber en dessous du point de compensation du couvert et engendrer ainsi des émissions si la plante possède un point de compensation élevé (Sutton *et al.*, 1995b - Figure 5).

Flécharde (1998) et Flécharde *et al.* (1999) ont développé un modèle d'échange de l'ammoniac à la surface des feuilles, basé sur l'existence d'un point de compensation cuticulaire, et incluant les réactions chimiques avec de nombreux composés ( $\text{CO}_2$ ,  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{SO}_2$ ,  $\text{HCl}$ , entre autres). Leur modèle permet de reproduire fidèlement les variations journalières et nocturnes des flux d' $\text{NH}_3$  entre plante et atmosphère. Il montre également que sur couverts humides, comme la lande Ecossaise, le dépôt est très largement dominé par l'adsorption surfacique d' $\text{NH}_3$ , qui est ensuite entraîné par la pluie vers le sol. Cela serait beaucoup moins vrai pour des climats plus secs. Mais sous de tels climats, la modélisation de l'adsorption surfacique serait compliquée par l'existence de réactions chimiques hétérogènes.

Le Tableau II.15 donne différentes formulations de  $R_w$ , et de la résistance cuticulaire minimale  $R_{wmin}$ . Ces formulations sont empiriques, et demanderaient à être adaptées pour chaque type de couvert étudié.

Tableau II.15. Résistance à l'adsorption pour différents types de couverts, et à différentes échelles.  $R_d$  est la résistance cuticulaire du modèle dynamique de Fléchar *et al.* (1999),  $I$  est l'activité ionique, HR est l'humidité relative, et VPD est le déficit de pression de vapeur d'eau.

Type de couvert	Méthode d'estimation	$R_{wmin}$	$R_w$	Auteurs
Lande Ecosseuse	Flux / Conc.	20	$20 + 100 (1 - \exp^{-2 \text{vpd}})$	Fléchar (1998)
Lande Ecosseuse	Flux / Conc.		$Rd = \exp^{(100 I)}$	Fléchar (1998)
Prairie intensive	Flux / Conc.	30	$30 \exp^{(100 - HR)/7}$	Sutton <i>et al.</i> , 1998

$$\text{vpd} = p_{\text{v surf}} - p_{\text{v air}} \geq 0.$$

Clairement, la complexité des processus menant à l'apparition de films d'eau à la surface des feuilles, ainsi que les nombreuses interactions avec les composés acides présents à la surface des feuilles entachent la paramétrisation de la résistance "cuticulaire" d'une grande incertitude. Plus de travaux sont nécessaires pour progresser dans la compréhension de ces phénomènes, notamment sur la réponse de  $R_w$  à l'humidité relative, et de l'existence de flux bidirectionnels à la surface des feuilles (Fléchar *et al.*, 1999).

#### II.4 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons successivement étudié les processus conduisant au dépôt sec d'ammoniac : (1) la dispersion dans la couche limite de surface (CLS), (2) le transfert à l'interface couvert-atmosphère, et (3) le processus d'échange foliaire d'ammoniac.

(1) La dispersion dans la CLS peut être considérée comme un processus d'advection et de diffusion turbulente qui est déterminé par les écart-types de la vitesse du vent  $\sigma_u$ ,  $\sigma_v$  et  $\sigma_w$  et les échelles de temps intégrales lagrangienne  $T_{Lw}$  et  $T_{Lu}$ . Dans la CLS  $\sigma_w / u_*$  est à peu près constant, tandis que  $T_{Lw}$  est proportionnel à  $(z - d) / u_*$ .

Globalement,  $\sigma_w / u_*$  est un paramètre constant de la CLS, et n'évolue que très peu avec la stratification thermique. Ce n'est pas le cas de  $T_{Lw}$ ,  $T_{Lu}$ ,  $\sigma_u$  et  $\sigma_v$  qui augmentent en atmosphère instable traduisant ainsi l'apparition de cellules convectives. Dans le cas stable, ils diminuent avec l'intensité et la taille des structures turbulentes. Des perturbations extérieures à la CLS, telles que celles engendrées par la convection libre ou la topographie modifient  $\sigma_u / u_*$  et  $\sigma_v / u_*$  mais peu  $\sigma_w / u_*$ .

Il existe de nombreuses paramétrisations de  $T_{Lw}$  et  $\sigma_w / u_*$  dans la littérature mais certains critères permettent de s'assurer de leur cohérence avec la théorie des similitudes de Monin et Obukhov d'une part, et la théorie d'isotropie locale de Kolmogorov d'autre part.

Enfin nous avons vu que la dispersion dans la CLS dépendait fortement de la position de la source, et des caractéristiques de la surfaces,  $z_0$  et  $d$ , qui agissent sur  $u_*$ .

(2) Concernant le transfert dans le couvert, nous avons vu qu'il est dominé par l'intermittence de l'écoulement. Elle est caractérisée par l'alternance de périodes calmes et de rafales, qui ne permettent plus d'utiliser une théorie de diffusion turbulente puisque les gradients moyens qui

sont déterminés par les périodes de calme sont en quelque sorte indépendants des flux qui sont eux liés aux rafales. A l'extrême, des flux à contre-gradient peuvent apparaître.

Cette intermittence se retrouve dans les valeurs de  $T_{Lw}$  et  $T_{Lu}$ , qui sont constants dans le couvert et la sous couche de rugosité. Elle s'observe aussi sur les moments d'ordre supérieurs de  $u$  et  $w$ , i.e. coefficients d'asymétrie (Skewness) et d'aplatissement (Kurtosis) qui, dans le couvert et la sous couche de rugosité, s'éloignent fortement des valeurs "normales" (dans la CLS).

La vitesse moyenne du vent ( $\bar{u}$ ), ainsi que  $\sigma_u$  et  $\sigma_w$ , décroissent dans le couvert de façon exponentielle. Pour  $\bar{u}$  le coefficient d'extinction varie de 3 à 5, et il est de l'ordre de 2.5 pour  $\sigma_u$  et  $\sigma_w$ . Ces coefficients d'extinction qui sont reliés à l'absorption de quantité de mouvement par le couvert dépendent du LAI.

(3) Concernant les échanges foliaires d' $\text{NH}_3$ , nous avons vu qu'ils sont limités par trois résistances : la résistance de couche limite de feuille  $r_b$ , la résistance stomatique  $r_s$ , et la résistance cuticulaire  $r_w$ . Chacune d'elle joue un rôle important pour l'échange d' $\text{NH}_3$ , contrairement à certains gaz ( $\text{CO}_2$  et  $\text{H}_2\text{O}$ ) dont l'échange est principalement limité par la résistance stomatique. Cela est dû à l'existence d'un dépôt "cuticulaire" important du fait de la forte solubilité de l'ammoniac, et de la présence de films d'eau à la surface des feuilles. L'intensité et le sens des échanges sont également influencés par le point de compensation stomatique pour l'ammoniac ( $C_s$ ), qui est la concentration en  $\text{NH}_3$  dans la cellule sous-stomatique.

Classiquement,  $r_b$  est exprimé en fonction de  $\bar{u}(z)$  dans le couvert. Cette paramétrisation est basée sur des travaux en soufflerie et ne prend pas en compte de nombreux facteurs. Des corrections tenant compte de  $\sigma_u / \bar{u}$  et de la convection libre dans le couvert permettent d'obtenir des expressions plus réalistes de  $r_b$  en conditions réelles.

La résistance stomatique pour l'ammoniac  $r_{s\text{NH}_3}$  semble être identique à celle pour la vapeur d'eau dans la plupart des cas. Toutefois, lorsque  $C_s$  est élevé,  $r_{s\text{NH}_3}$  peut être plus faible que  $r_{s\text{H}_2\text{O}}$ . Cette différence pourrait s'expliquer par la variation de la distance moyenne de diffusion dans la cavité sous-stomatique ( $\Delta_{x\text{NH}_3}$ ) lorsque le point de compensation augmente.

La résistance cuticulaire ( $r_w$ ) dépend en premier lieu de la présence d'eau à la surface de la feuille. C'est pourquoi elle est le plus souvent paramétrée en fonction de l'humidité relative de l'air  $HR$ . Lorsque  $HR$  augmente,  $r_w$  diminue de façon exponentielle. Mais parfois  $r_w$  est faible lorsque  $HR$  l'est aussi. La formation de films liquides microscopiques à la surface des feuilles par déliquescence des sels d'aérosols présents pourrait apporter une explication plausible à ces observations.

Enfin, nous avons vu que le point de compensation  $C_s$  variait fortement en fonction de la plante et de la température. Un accroissement de la température de la feuille de  $5^\circ\text{C}$  double  $C_s$ .

Le pH et la concentration en ions  $\text{NH}_4^+$  de l'apoplasme sont les deux autres facteurs influents des variations de  $C_s$ . Ces deux facteurs sont liés au métabolisme de la plante, et leur variation saisonnière ainsi que leur réponse à la nutrition azotée n'est pas encore bien comprise aujourd'hui.

L'ensemble de ces paramètres d'échange varient au sein du couvert, en fonction des caractéristiques du vent, et du microclimat. Nous n'avons pas abordé ici le microclimat dans le couvert qui sera pris en compte de façon simple dans le Chapitre III. Noter toutefois, que la plupart des remarques faites sur le transfert d' $\text{NH}_3$  s'appliquent au transfert de chaleur sensible et latente. La différence essentielle réside dans la répartition des sources de chaleur qui trouve son origine dans la distribution du rayonnement.

(°) Nous avons passé en revue dans ce chapitre les différents processus conduisant au dépôt sec de l'ammoniac à proximité des sources. Nous allons maintenant aborder dans le Chapitre III le problème de la modélisation de ces processus, en utilisant les connaissances exposées ici.

## II.5 Bibliographie

- Allen L.H., Lemon E.R., Carbon dioxide and turbulence in a Costa rican Tropical Rain Forest. *In vegetation and the atmosphere vol. 2*, J.L. Monteith Ed., Academic Press, 439 pp.
- Anand M.S., Pope S.B., 1983: Diffusion behind a line source in grid turbulence. In *Turbulent shear flows 4*, L.J.S. Bradbury, F. Durst, B.E., Launder F.W., Schmidt and J.H. Whitelaw Eds., Springer, pp. 46-52.
- Asman W.A.H., 1998: Factors influencing local dry deposition of gases with special reference to ammonia. *Atmos. Environ.*, **32**(3): 415-421.
- Aylor D. E., Wang Y., Miller D.R., 1993: Intermittent wind close to the ground within a grass canopy. *Boundary-Layer Meteorol.*, **66**: 427-448.
- Ayotte K.W., Finnigan J.J., Raupach M.R., 1999: A second-order closure for neutrally stratified vegetative canopy flows. *Boundary-Layer Meteorol.*, **90**: 189-216.
- Baerentsen J.H., Berkowicz R., 1984: Monte Carlo simulation of plume dispersion in the convective boundary layer. *Atmos. Environ.*, **18**: 701-712.
- Baldocchi D., 1993: An analytical solution for coupled leaf photosynthesis and stomatal conductance models. *Tree Physiology*, **14**: 1069-1079.
- Baldocchi D.D., 1997: Flux footprint within and over forest canopies. *Boundary-Layer Meteorol.*, **85**: 273-292.
- Baldocchi D.D., Hicks B.B., Camara P., 1987: A canopy stomatal resistance model for gaseous deposition to vegetated surfaces. *Atmos. Environ.*, **21**(1): 91-101.
- Baldocchi D.D., Meyers T.P., 1988: Turbulence structure of a deciduous forest. *Boundary-Layer Meteorol.*, **43**: 345-365.
- Bosveld F.C., 1997: Derivation of fluxes from profiles over a moderately homogeneous forest. *Boundary-Layer Meteorol.*, **84**: 289-327.
- Brost R.A., Wyngaard J.C., Lenschow D.H., 1982: Marine stratocumulus layers. Part II: turbulence budgets. *J. Agric. Sci.*, **38**: 818-836.
- Brunet Y., Collineau S., 1994: Wavelet analysis of diurnal and nocturnal turbulence above a maize crop. In *Wavelets in Geophysics*, Fofoula-Georgiou and P. Kumar Eds., Academic Press, New York, pp. 129-

150.

- Brunet Y., Finnigan J.J., Raupach M.R., 1994: A wind tunnel study of air flow in waving wheat: single-point velocity statistics. *Boundary-Layer Meteorol.*, **70**:95-132.
- Brutsaert W., 1975: The roughness length for water vapor, sensible heat, and other scalars. *J. Agric. Sci.*, **32**: 2028-2031.
- Burkhardt J., Eiden R., 1994: Thin water films on coniferous needles (With an Appendix "A new device for the study of water vapour condensation and gaseous deposition to plant surfaces and particle samples" by J. Burkhardt and J. Gerchau). *Atmos. Environ.*, **28**(12): 2001-2017.
- Burkhardt J., Kaiser H., Goldbach H., Kappen L., 1999: Measurements of electrical leaf surface conductance reveal recondensation of transpired water vapour on leaf surfaces. *Plant, Cell and Environ.*, **22**: 189-196.
- Caughey S.J., Palmer S.G., 1979: Some aspects of turbulence structure through the depth of the convective boundary layer. *Quart. J. Roy. Met. Soc.*, **105**: 811-827.
- Cellier P., Brunet Y., 1992: Flux-Gradient relationships above tall plant canopies. *Agricultural and Forest Meteorology*, **58** : 93-117.
- Chen J.-M. Ibbetson A., Mifflord J.R. 1988: Boundary-layer resistances of artificial leaves in turbulent air II: leaves inclined to the mean flow. *Boundary-Layer Meteorol.* **45**: 371-390.
- Coantic M., 1976: La turbulence dans la couche de surface atmosphérique. In *la turbulence en mécanique des fluides*, Favre A., Kovaszny L.S.G, Dumas R., Gaviglio J., Coantic M., gauthier-villars, Bordas, Paris, pp 411.
- Collineau S., 1993: Etude Expérimentale des mouvements cohérents turbulents au voisinage des couvert végétaux. Thèse de doctorat, 286pp.
- Collineau S., Brunet Y., 1993: Detection of turbulent coherent motions in a forest canopy, Part I: Wavelet analysis. *Boundary-Layer Meteorol.*, **65**: 357-379.
- Corrsin S., 1974 : Limitations of gradient transport models in random walk turbulence. *Adv. Geophys.*, **18A**: 25-60.
- Csanady G.T., 1980: Turbulent diffusion in the environment. *Geophysics and Astrophysics Monographs*, D. Reidel Publishing Co., Dordrecht, The Netherland, 248pp.
- Darrall N.M., 1989: The effect of air pollutants on physiological processes in plants. *Plant, Cell and Environ.*, **12**: 1-30.
- Davis P.A., 1983: Markov chain simulations of vertical dispersion from elevated sources into the neutral planetary boundary layer. *Boundary-Layer Meteorol.*, **26**: 355-376.
- Denmead O.T., 1977: Temperate Cereals. In *vegetation and the atmosphere vol. 2*, J.L. Monteith Ed., Academic Press, 439 pp.
- Denmead O.T., Bradley E.F., 1985: Flux-gradient relationships in a forest canopy. *The Forest-Atmosphere Interaction* (B.A. Hutchison and B.B. Hicks, Eds.). D. Reidel publishing Co. Dordrecht, The Netherlands, 421-442.
- Denmead O.T., Harper L.A., Sharpe R.R., 1999: Identifying source and sinks of scalars in a corn canopy with inverse Lagrangian dispersion analysis. I. Heat. *Agricultural and Forest Meteorol.*, Under press.
- Draaijers G.P.J., van Ek R., Bleuten W., 1994 : Atmospheric demposition in complex forest landscapes. *Boundary-Layer Meteorol.*, **69**: 343-366.
- Du S., 1997: Universality of the lagrangian velocity structure function constant ( $C_0$ ) across different kinds of turbulence. *Boundary-Layer Meteorol.*, **83**: 207-219.
- Du S., Wilson J.D, Yee E., 1994a : Probability density functions for velocity in the convective boundary layer, and implied trajectory models. *Atmos. Env.*, **28**: 1211-1217.

- Du S., Wilson J.D., Yee E., 1994b: On the moments approximation method for constructing a lagrangian stochastic model. *Boundary-Layer Meteorol.*, **70**: 273-292.
- Durbin P.A., 1984: Comments on papers by Wilson *et al.*, (1981) and Legg and Raupach (1982). *Boundary-Layer Meteorol.*, **29**: 409-411.
- Durbin P.A., Hunt J.C., 1980: Dispersion from elevated sources in turbulent boundary layers. *J. de Mécanique*, **19**: 679-695.
- Duyzer J.H., Verhagen H.L.M., Westrate J.H., Bosveld F.C., 1992: Measurement of the dry deposition flux of NH<sub>3</sub> on to coniferous forest. *Environ. Pollut.*, **75**: 3-13.
- Dyer A.J., 1974: A review of flux-profile relationships. *Boundary-Layer Meteorol.*, **7**: 363-372.
- Dyer A.J., Hicks B.B., 1970: Flux-profile relationship in the constant flux layer. *Quart. J. Roy. Meteorol. Soc.*, **96**: 715-721.
- Emmanuel K., 1994: Atmospheric convection. *Oxford University Press*, Oxford.
- 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.
- Farquhar G.D., Wetselaar R., Weir B., 1983: Gaseous nitrogen loss from plants. In *loss Gaseous nitrogen from plant-soil systems*. Ed Freney J.R., Simpson J.R., M. Nijhoff, W. Junk publishers.
- Farquhar G.D., Wetselaar R., Firth P.M., 1979: Ammonia volatilization from senescing leaves of maize. *Science (Wash. D.C.)*, **203**: 1257-1258.
- Finnigan J.J., Brunet Y., 1995: Turbulent airflows in forest on flat and hilly terrain. In Coutts M.P., Grace J. (Eds.), *Wind and Trees*. *Cambridge University Press*, London.
- Finnigan J.J., Longstaff, R.A., 1982: A wind tunnel model study of forced convective heat transfer from a cylindrical grain storage bin. *Journal of Wind Engineering and Industrial Aerodynamics*, **10**: 191-211.
- Finnigan J.J., Raupach M.R., 1987: Transfer processes in plant canopies in relation to stomatal characteristics. In *Stomatal Function*, Eds. E. Zeiger, G.D. Farquhar, I.R., Cowan, Stanford University Press, Stanford :385-429.
- Flécharde C.R. and Fowler D., 1998: Atmospheric ammonia at a moorland site. II: Long-term surface-atmosphere micrometeorological flux measurements. *Quart. J. R. Met. Soc.*, **124**: 759-791.
- Flécharde C.R., 1998: Turbulent exchange of ammonia above vegetation. Thèse, Nottingham University.
- Flécharde C.R., Fowler D., Sutton M.A. and Cape J.N., 1999: A dynamic chemical model of bi-directional ammonia exchange between semi-natural vegetation and the atmosphere. *Quart. J. R. Met. Soc.*, **125**, 2611-2641.
- Flesch T. K., Wilson J.D., 1992 : A two dimensional trajectory-simulation model for non-gaussian, inhomogeneous turbulence within plant canopy. *Boundary-Layer Meteorol.*, **61**: 359-374.
- Flesch T. K., Wilson J.D., 1995: Backward-Time Lagrangian Stochastic Dispersion Models and Their Application to Estimate Gaseous Emissions. *J. of Applied Meteorol.*, **34**: 1320-133.
- Fowler D., Cape J.N., Unsworth M.H., 1989: Deposition of atmospheric pollutants on forests. *Phil. Trans. Roy. Soc. London*, B **324**: 247-265.
- Francis D.D., Schepers S.J., Sims A.L. , 1997: Ammonia exchange from corn foliage during reproductive growth. *Agroclimatology J.*, **89**:941-946.
- Garratt J.R., 1977: Aerodynamic roughness and mean monthly surface stress over Australia. *Div. Atmos. Phys. Tech. Pap.*, **29**, CSIRO, Australia.
- Garratt J.R., 1990: The Internal boundary Layer - A review. *Boundary-Layer Meteorol.*, **50**: 171-203.
- Garratt J.R., 1992: The Atmospheric boundary Layer. *Cambridge university Press*, 316 pp.

## II.5. Bibliographie

---

- Gopalakrishnan S.G., Sharan M., 1997: A lagrangian particle model for marginally heavy gas dispersion. *Atmos. Env.*, **31(20)**: 3369-3382.
- Grace J., 1977: Plant response to wind. Academic Press London. 204 pp.
- Grace J., 1981: Some effects of wind on plants. In *Plants and Atmospheric Environment*, Eds. J. Grace E.D. Ford, "P.G. Jarvis, pp31-56. Blackwell Scientific, Oxford.
- Grace J., Wilson J., 1976: The boundary layer of a *Populus* leaf. *J. Experimental Botany*, **22(97)**: 231-241.
- Grantz D.A., Zhang X.J., Massman W.J., Delany A., Pederson J.R., 1997: Ozone deposition to a cotton (*Gossypium hirsutum* L.) field: stomatal and surface wetness effects during the California Ozone Deposition Experiment. *Agricultural and Forest Meteorol.*, **85**: 19-31.
- Gryning S.-E., 1999: Some aspects of atmospheric dispersion in the stratified atmospheric boundary layer over homogeneous terrain. *Boundary-Layer Meteorol.*, **90**: 479-494.
- Gryning S.E., Holstlag A.A.M., Irwin J.S., Sivertsne B., 1987: Applied dispersion modelling based on meteorological parameters. *Atmos. Env.*, **21(1)**: 79-89.
- Hanna S.R., 1981: Turbulent energy and lagrangian time scales in the planetary boundary layer. In *reprints of the Symposium on turbulence, diffusion and air pollution*, Atlanta, March 1981, Am. Meteorol. Soc., Boston.
- Hanna S.R., 1982: Applications in air pollution modelling. Pp. 275-310 in *Atmospheric Turbulence and Air Pollution Modelling*. Ed. F.T.M. Nieuwstadt and H. Van Dop. D Reidel publishing Company, Dordrecht Holland.
- Hanstein S., Mattsson M., Jaeger H.-J., Schjørring J.K., 1999: Uptake and utilization of atmospheric ammonia in three native Poaceae species : leaf conductance, composition of apoplastic solution and interactions with root nitrogen supply. *New. Phytol.*, **141**: sous presse.
- Harper L.A., Denmead O.T., Sharpe R.R., 1999: Identifying source and sinks of scalars in a corn canopy with inverse Lagrangian dispersion analysis. I. Heat. *Agricultural and Forest Meteorol.*, under press.
- Harper L.A., Sharpe R.R., Langdale G.W., Giddens J.E., 1987: Nitrogen cycling in a wheat crop: Soil, plant, and aerial nitrogen transport. *Agronomy Journal*, **79**: 965-973.
- Haugen D.A., 1978: Effects of sampling rates and averaging periods on meteorological measurements. In *Proc. Fourth Symposium on Meteorological Observation and Instrumentation*, April 1978, Denver, CO, American Meteorological Society, Boston, MA, 15-18.
- Heinz S., Schaller E., 1996: On the influence of non-gaussianity on turbulent transport. *Boundary-Layer Meteorol.*, **81**: 147-166.
- Hibbert M.F., Sawford B.L., 1994: A saline laboratory model of the planetary convective boundary layer. *Boundary-Layer Meteorol.*, **69**: 229-250.
- Hinze J.O., 1959: Turbulence, an introduction to its mechanism and theory. *McGraw-Hill, Series in mechanical engineering*.
- Hoffmann B., Plaenker R., Mengel K., 1992: Measurements of pH in the apoplast of sunflower leaves by means of fluorescence. *Physiol. Plantarum*, **84**: 146-153.
- Högström U., Bergström H., Smedman A., Halldin S., Lindroth A., 1989: Turbulent exchange above a pine forest. I: Fluxes and gradients. *Boundary-Layer Meteorol.*, **49**: 197-217.
- Holstag A.A.M., Nieuwstadt F.T.M., 1986: Scaling the atmospheric boundary layer. *Boundary-Layer Meteorol.*, **36**: 201-209.
- Hooker M.L., Sander D.H., Peterson G.A., Daigger L.A., 1980: Gaseous N losses from winter wheat. *Agronomy J.*, **72**: 789-792.
- Husted S., Mattsson M., Schjørring J.K., 1996: Ammonia compensation points in two cultivars of *Hordeum vulgare* L. During vegetative and generative growth. *Plant, Cell and Environ.*, **19**: 1299-1306.

- Husted S., Schjørring J. K., 1995: Apoplastic pH and Ammonium Concentration in leaves of *Brassica napus* L. *Plant Physiol.*, 109: 1453-1460.
- Husted S., Schjørring J.K., 1996: Ammonia flux between oilseed rape plants and the atmosphere in response to changes in leaf temperature, light intensity and relative air humidity. Interactions with stomatal conductance and apoplastic  $\text{NH}_4^+$  and  $\text{H}^+$  concentrations. *Plant physiol.*, 112: 67-74.
- Husted S., Schjørring J.K., Nielson K.H., Nemitz E., Sutton M., 1997: Determination of stomatal compensation points for ammonia in oilseed rape plants (*Brassica Napus* L.) under field conditions. *Atmos. Environ.*, (sous presse).
- Itier B., Brunet Y., McAneney K.J., Lagouarde J.P., 1994: Downwind evolution of scalar fluxes and surface resistance under conditions of local advection. Part I: a reappraisal of boundary conditions. *Agricultural and Forest Meteorol.*, 71: 211-225.
- Jacobs A.F.G., van Boxel J.H., El-Kilani R.M., 1994: Night-time free convection characteristics within a plant canopy. *Boundary-Layer Meteorol.*, 71: 375-391.
- Jarvis P.G., 1976: The interpretation of the variation in leaf water potential and stomatal conductance found in canopies in the field. *Phil. Trans. R. Soc. Lond. B.*, 273: 593-610.
- Jarvis P.G., James G.B., Landsberg J.J., 1976: Coniferous forest. in *Vegetation and the atmosphere*, Vol 2, Monteith J.L., Ed, Academic, London, pp 171-240.
- Jones H.G., 1992: Partitioning stomatal and non-stomatal limitations to photosynthesis. *Plant Cell and Environment*, 8:95-104.
- Kader B.A., 1977: Hydraulic resistance of surfaces covered by two-dimensional roughness at high Reynolds numbers. *Teor Osn Khim Teknol*, 11: 393-404.
- Kaimal J.C., Finnigan J.J., 1994: Atmospheric Boundary Layer Flows, Their structure and measurement. Oxford University Press.
- Kesselmeir J., Merk L., Bliefnircht M., Helas G., 1993: Trace gas exchange between terrestrial plants and the atmosphere: carbon sulphide and ammonia under the rule of compensation point. In *General assessment of biogenic emissions and deposition of nitrogen compounds, sulphur compounds and oxidants in Europe* (J. Slanina, G. Angeletti, S. Beilke, Eds.), pp. 71-80. EC Air Pollution Research Report 47.E. Guyot SA, Bruxelles.
- Koloseus H.J., Davidian J., 1966: Free surface instability correlations, and roughness-concentration effects on flow over hydrodynamically-rough surfaces. *USGS Water Supply*, Paper 1592 C.
- Kovaszny L.S.G., 1976: Revue des théories de la turbulence. In *la turbulence en mécanique des fluides*, Favre A., Kovaszny L.S.G, Dumas R., Gaviglio J., Coantic M., Gauthier-Villars, Bordas, Paris, pp. 411.
- Kristensen L., Casanova M., Courtney M.S., Troen I., 1990: In search of gust definition. *Boundary-Layer Meteorol.*, 55: 91-107.
- Kumar A., Barthakur N., 1971: Convective heat transfer measurements of plants in a wind tunnel. *Boundary-Layer Meteorol.*, 2: 218-227.
- Landsberg J.J., Powell D.B.B., 1973: Surface exchange characteristics of leaves subject to mutual interference. *Agricultural Meteorology*, 12: 169-184.
- Landsberg J.J., Thom A.S., 1971: Aerodynamic properties of a plant of complex structure. *Quart. J. R. Met. Soc.*, 97: 565-570.
- Leclerc M.Y., Beisner K.C., Shaw R.H., den Hartog G., Neumann H.H., 1991: The influence of buoyancy on third-order turbulent velocity statistics within a deciduous forest. *Boundary-Layer Meteorol.*, 55: 109-123.
- Leclerc M.Y., Thurtell G.W., 1990: Footprint prediction of scalar fluxes using a Markovian analysis. *Boundary-Layer Meteorol.*, 52: 247-258.
- Lee X., 1998: On micrometeorological observation of surface-air exchange over tall vegetation. *Agricultural and*

- Forest Meteorology*, 91: 39-49.
- Legg B.J., Raupach M.R., 1982: Markov-Chain simulation of particle dispersion in inhomogeneous flows: The mean drift induced by a gradient in eulerian velocity variance. *Boundary-Layer Meteorol.*, 24: 3-13.
- Lehmann B.E., Lehmann M., Neftel A., Gut A., Tarakanov S.V., 1998: Radon-220 Calibration of near-surface turbulent gas transport. *Geophys. Res. Letters.*, sous presse.
- Lenschow D.H., Wyngaard J.C., Pennell W.T., 1980: Mean-field and second moment budgets in a Baroclinic convective boundary layer. *J. Atmos. Sci.*, 37: 1313-1326.
- Leuning R., 1983: Transport of gases into leaves. *Plant, Cell and Environ.*, 6: 181-184.
- Leuning R., Denmead O.T., Miyata A., Kim J., 1999: Source / sink distributions of heat, water vapour, carbon dioxide and methane in a rice canopy estimated using a rice canopy estimated using Lagrangian dispersion analysis. *Agricultural and Forest Meteorology*, (sous presse).
- Ley A.J., 1982: A random walk simulation of two-dimensional diffusion in the neutral surface layer. *Atmos. Environ.*, 16: 2799-2808.
- Ley A.J., Thomson D.J., 1983: A random walk model of dispersion in the diabatic surface layer. *Quart. J. R. Met. Soc.*, 109: 847-880.
- Loss S.P., Robson A.D., Ritchie G.S.P., 1993: H<sup>+</sup> / OH<sup>-</sup> excretion and nutrient uptake in upper and lower parts of lupin (*Lupinus angustifolius* L.) root systems. *Ann. Bot.*, 72: 315-320.
- Loubet B., Hill P.W., Milford C., Sutton M., Tang Y.S., Cellier P., 1999: Apoplastic, bulk ammonium and pH in leaves of *Lolium Perenne* L. and *Zea Mays* L. Effects of management practices and fertilisation. *En préparation*, voir annexe B.
- Luhar A.K., Britter R.E., 1989: A random walk model for dispersion in inhomogeneous turbulence in a convective boundary layer., *Atmos. Env.*, 23(9): 1911-1924.
- Lumley J.L., 1962: The mathematical nature of relating Lagrangian and Eulerian statistical functions in turbulence. In *Mecanique de la Turbulence*, Colloq. Intern. CNRS, Marseille, CNRS, 470p.
- Lumley J.L., Panofsky H.A., 1964: The structure of Atmospheric Turbulence. *Wiley-Interscience*, New York, 239 pp.
- Massman W.J., Weil J.C., 1999: An analytical one-dimensional second-order closure model of turbulence statistics and the lagrangian time scale within and above plant canopies of arbitrary structure. *Boundary-Layer Meteorol.*, 91: 81-107.
- Mattsson M., Husted S., Schjørring J.K., 1998: Influence of nitrogen nutrition on ammonia emission from plant leaves. *Nutrients Cycling Agro-ecosystems.*, (sous presse).
- Mattsson M., Schjørring J.K., 1996: Ammonia emission from young barley plants: influence of N source, light/dark interaction and inhibition of glutamine synthase. *J. Exp. Bot.*, 47(297): 477-484.
- McNaughton K.G., Laubach J., 1998: Unsteadiness as a cause of non-equality of eddy diffusivities for heat and vapour at the base of an advective inversion. *Boundary-Layer Meteorol.*, 88: 479-504.
- Meidner H., Mansfield T.A., 1968: *Physiology of Stomata*. McGraw-Hill, New York.
- Merry M., Panofsky H.A., 1974: Statistics of vertical motion over land and water. *Quart. J. Roy. Met. Soc.*, 102: 255-260.
- Meyers T.P., 1991: On the use of models to identify critical atmosphere-canopy exchange processes. In *Precipitation scavenging and atmosphere surface exchange processes*, Volume 2. Eds. S.E. Schwartz and W.G.N. Slinn, pp1035-1051.
- Meyers T.P., Baldocchi D.D., 1988: A comparison of models for estimating dry deposition fluxes of SO<sub>2</sub>, and O<sub>3</sub>. *Tellus*, 40B: 270-284.
- Meyers T.P., Baldocchi D.D., 1991: The budget of turbulent kinetic energy and Reynolds stress within and above

- a deciduous forest. *Agricultural and Forest Meteorol.*, 53: 207-222.
- Miller D.R., 1980: The two-dimensional energy budget of a forest edge with field measurements at a forest-parking lot interface. *Agric. Meteorol.*, 22:53-78.
- Moeng C.-H., 1984: A large eddy simulation model for study of planetary boundary-layer turbulence. *Journal of Atmospheric Science*, 41 : 2052-2062.
- Moeng C.-H., Wyngaard J.C., 1989: Evaluation of turbulent transport and dissipation closures in second-order modelling. *J. Agric. Sci.*, 46:2311-2330.
- Monteith J.L., 1973: Principles of environmental physics. Arnold, London.
- Monteith J.L., Unsworth M.H., 1990: Principles of Environmental Physics. 2nd edn., E Arnold ed., 291 pp.
- Monti P., Leuzzi G., 1993: A closure to derive a three-dimensional well-mixed trajectory-model for non-Gaussian, inhomogeneous turbulence. *Boundary-Layer Meteorol.*, 80: 311-331.
- Morgan J.A., Parton W.J., 1989: Characteristics of Ammonia Volatilization from Spring Wheat. *Crop Sci.*, 29:726-731.
- Murphy C.E., Knoerr K., 1977: Simultaneous determinations of the sensible and latent heat transfer coefficients for tree leaves. *Boundary-Layer Meteorol.* 11: 223-241.
- Nemitz E., Sutton M.A., Gut A., San José R., Husted S., Schjørring J.K., 1998: The analysis of the turbulent structure and the sources and sinks of ammonia within an oilseed rape canopy. *Agricultural and Forest Meteorol.*, sous presse.
- Nieuwstadt F.T.M., 1984: The turbulent structure of the stable nocturnal boundary layer. *J. Atm. Sci.*, 41: 2202-2216.
- Oikawa S., Yan M., 1995: Turbulence characteristics and organized motion in a suburban sublayer. *Boundary-Layer meteorol.*, 74: 289-312.
- Olioso A., Bethenod O., Carlson T., Taconet O., Brisson N., 1995: Comparaison des paramétrisations de la photosynthèse dans trois modèles TSVA. In Colloque international: Photosynthèse et Télédétection, Montpellier, France, 28-31 Août 1995.
- Oliver H.R., 1975: Wind speeds within the trunk space of a pine forest. *Quart. J. R. Met. Soc.*, 101: 167-168.
- Olsen C., Mattsson M., Schjørring J.K., 1995: Ammonia volatilization in relation to nitrogen nutrition of young *Brassica napus* plants growing with controlled nitrogen supply. *J. Plant Physiol.*, 147: 306-312.
- Panofsky H.A., Dutton J.A., 1984: Atmospheric Turbulence. *Wiley-Interscience*, New York, 397 pp.
- Panofsky H.A., Tennekes H., Lenschow D.H., Wyngaard J.C., 1977: The characteristics of turbulent velocity components in the surface layer under convective conditions. *Boundary-Layer Meteorol.*, 11: 355-361.
- Parkhurst D.F., 1994: Diffusion of CO<sub>2</sub> and other gases inside leaves. *New Phytol.*, 126: 449-479.
- Pasquill F., Smith F.B., 1983: Study of the dispersion of windborne material from industrial and other sources. In *Atmospheric diffusion*, Ed. R.S. Scorer, Ellis Horwood Series in Environmental Science.
- Pearson J., Clough E.C.M., Woodall J., Havill D.C., Zhang X.-H., 1998: Ammonia emissions to the atmosphere from leaves of wild plants and *Hordeum vulgare* treated with methionine sulphomine. *New Phytol.*, 138: 37-48.
- Perry A.E., Henbest S., Chong M.S., 1986: A theoretical and experimental study of wall turbulence. *J. Fluid. Mech.*, 165: 163-199.
- Press W.H., Teukolsky S.A., Vetterling W.T., Flannery B.P., 1994: Numerical recipes in C, Second Edition. *Cambridge University Press*, 965p.
- Ranney J.W., Bruner M.C., Levenson J.B., 1978: The importance of edges in the structure and dynamics of Forest Islands. In *Forest island dynamics in man-dominated landscapes*, R.L. Burgess and D.M. Sharpe

## II.5. Bibliographie

---

- Eds., Springer, New York, pp. 67-95.
- Raupach M.R., 1981: Conditional statistics of Reynolds and stress in rough-wall and smooth wall turbulent boundary layers. *J. Fluid Mech.*, **108**: 363-382.
- Raupach M.R., 1988: Canopy transport processes. In Flow and transport in the natural environment: advances and applications, W.L. Steffen and O.T. Denmead Eds., Springer, Berlin, pp. 95-129.
- Raupach M.R., 1989: Stand overstorey processes. *Phil. Trans. Roy. Soc. London, B*, **324**: 175-190.
- Raupach M.R., Antonia R.A., Rajagopalan S., 1991: Rough-wall turbulent boundary layers. *Appl. Mech. Revs.*, **44**(1): 1-24.
- Raupach M.R., Coppin P.A., Legg B.J., 1986: Experiments on scalar dispersion within a plant canopy, Part I: The turbulent structure. *Boundary-Layer Meteorol.*, **35**: 21-52.
- Raupach M.R., Finnigan J.J., Brunet Y., 1996: Coherent eddies and turbulence in vegetation canopies: the mixing-layer analogy. *Boundary-Layer Meteorol.*, **78**: 351-382.
- Raven J.A., 1985: pH regulation in plants. *Sci. Prog. Oxford*, **69**: 495-509.
- Reid J.D., 1979: Markov chain simulations of vertical dispersion in the neutral surface layer for surface and elevated releases. *Boundary-Layer Meteorol.*, **19**: 157-162.
- Reynolds A.M., 1998: A two dimensional lagrangien stochastic model for convective boundary layers with wind shear. *Boundary-Layer Meteorol.*, **86**: 345-352.
- Reynolds O., 1895: On the dynamical theory of incompressible viscous fluids and determination of criterion. *Phil. Trans. Roy. Soc.*, London A186, 123-64.
- Ryall D.B., Maryon R.H., Derwent R.G., Simmonds P.G., 1998: Modelling long range transport of CFCs to Mace Head, Ireland. *J. P. Meteorol. Soc.*, **124**: 417-446.
- Saugier B., Katerji N., 1991: Some plant factors controlling evapotranspiration. *Agricultural and Forest Meteorology*, **54**: 263-277.
- Sawford B.L., 1985: Lagrangian statistical simulation of concentration mean and fluctuation fields. *J. Climate and Applied Meteorol.*, **24**: 1152-1166.
- Sawford B.L., Guest F.M., 1987: Lagrangian stochastic analysis of flux gradient relationship in the convective boundary layer. *J. Atmos. Sci.*, **44**: 1152-1165.
- Schjørring J.K., 1991: Ammonia emission from foliage of growing plants. In Trace Gas Emissions by Plants, Academic Press inc.
- Schjørring J.K., 1997: Plant-Atmosphere Ammonia Exchange. Quantification, Physiology regulation and interaction with environmental factors. *D.Sc. Degree*, Royal Veterinary and Agricultural University, Copenhagen, Denmark: 55p.
- Schjørring J.K., Husted S., Mattsson M., 1998: Soil-Plant-Atmosphere ammonia exchange associated with *Caluna vulgaris* and *Deschampsia flexuosa*. *Atmos. Environ.*, sous presse.
- Schjørring J.K., Kyllingsbaek A., Mortensen J.V., Byskov-Nielsen S., 1993a: Field investigation of ammonia exchange between barley plants and the atmosphere. I. Concentration profiles and flux densities of ammonia. *Plant Cell and Environment*, **16**: 161-168.
- Schjørring J.K., Kyllingsbaek A., Mortensen J.V., Byskov-Nielsen S., 1993b: Field investigation of ammonia exchange between barley plants and the atmosphere. II. Nitrogen reallocation, free ammonium content and activities of ammonium-assimilating enzymes in different leaves. *Plant Cell and Environment*, **16**: 169-178.
- Schuepp P.H., 1972a: Studies of forced-convection heat transfer and mass transfer of fluttering realistic leaf models. *Boundary-Layer Meteorol.*, **2**: 263-274.
- Schuepp P.H., 1972b: Studies of forced-convection heat transfer and mass transfer of leaves and plant elements.

- Boundary-Layer Meteorol.*, 3: 454-467.
- Seinfeld J.H., Pandis S.N., 1998: Atmospheric Chemistry and Physics. From air pollution to climate change. Wiley-Interscience. pp 1326.
- Shaw R.H., Brunet Y., Finnigan J.J., Raupach M.R., 1995: A wind tunnel study of air flow in waving wheat: two-point velocity statistics. *Boundary-Layer Meteorol.*, 76: 349-376.
- Shaw R.H., Pereira A.R., 1982: hydrodynamic roughness in plant canopy: a numerical experiment. *Agric. Meteorol.*, 26: 51-65.
- Shaw R.H., Seginer I., 1985: The dissipation of turbulence in plant canopies. In *Reprints of the 7<sup>th</sup> symposium of American Meteorological Society on turbulence diffusion*, Boulder, CO, November 1985, pp. 200-203.
- Shaw R.H., Ward D.P., Aylor D.E., 1979: Frequency distribution of fast gusts of wind inside a corn canopy. *J. of Applied Meteorol.*, 18: 167-171.
- Shen S., Leclerc M.Y., 1997: Modelling the turbulence structure in the canopy layer. *Agricultural and Forest Meteorol.*, 87: 3-25.
- Söderlund R., Svensson B.H., 1976: The global nitrogen cycle. In *N, P, S: Global Cycles*, Eds Söderlund R., Svensson B.H., SCOPE Report 7. *Ecol. Bull.*, 22: 23-73.
- Soize C., 1993, Méthodes mathématiques en analyse du signal. Masson, pp.
- Sorbjan Z., 1990: Similarity scales and universal profiles of statistical moments in the convective boundary layer. *J. Appl. Meteorol.*, 29:762-775.
- Stull R.B., 1988: An introduction to boundary layer meteorology. Kluwer Academic publishers, Dordrecht, 666 pp.
- Sun J., Desjardin R., Marht R., MacPherson L., 1997: Transport of carbon dioxide, water vapour and ozone over Candle Lake. *Journal of Geophysical Research*, sous Presse.
- Sutton M.A., Asman W.A.H., Schjörriing J.K., 1994: Dry deposition of reduced nitrogen. *Tellus*, 46B: 255-273.
- Sutton M.A., Burkhardt J.K., Guerin D., Fowler D., 1995b: Measurement and modelling of ammonia exchange over arable croplands. In *Acid Rain Research: Do we have enough answers?*, Eds. Heij G.J., Erisman J.W., Elsevier Science BV. p71-80.
- Sutton M.A., Milford C., Dragosist 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(S1): 349-361.
- Sutton M.A., Montcrieff J.B., Fowler D., 1992: Deposition of atmospheric ammonia to moorlands. *Environ. Pollut.*, 75: 15-24.
- Sutton M.A., Pitcairn C.E.R., Fowler D., 1993: The exchange of ammonia between the atmosphere and plant communities. In *Advances in Ecological Research*, 24. Eds. Begon M., Fitter A.H., Academic Press, London.
- Sutton M.A., Schjörriing J.K., Wyers G.P., 1995a: Plant-atmosphere exchange of ammonia. *Phil. Trans. Roy. Soc. Lond. A*, 351: 261-278.
- Taylor G.E., Hanson Jr.P.J., D.D. Baldocchi, 1988: Pollutant deposition to individual leaves and plant canopies: sites of regulation and relationship to injury. In "Assessment of crop losses from Air. Pollutants.", Eds. N.W. Heck, O.C. Taylor and O.T. Tingey, Elsevier Applied Science (London).
- Taylor G.I., 1921: Diffusion by continuous movements. *Proc. Lond. Math. Soc.*, 2(20):196-212.
- Tennekes H., 1982: Similarity relations, scaling laws and spectral dynamics. In *Atmospheric Turbulence and Air Pollution Modelling*, Eds. Nieuwstadt F.T.M. and van Dop H., 37-68. D. Reidel Publ. Co., Dordrecht.

## II.5. Bibliographie

- Thibaud J.B., Grignon C., 1981: Mechanism of nitrate uptake in corn roots. *Plant Sci.*, **22**: 279-289.
- Thom A.S., 1975: Momentum mass and heat exchange of plant communities. *Vegetation and the Atmosphere* (J.L. Monteith, Ed.). Academic Press, London, 57-110.
- Thomson D.J., 1984: Random walk modelling of diffusion in inhomogeneous turbulence. *Quart. J. Roy. Meteorol. Soc.*, **110**: 1107-1120.
- Thomson D.J., 1987: Criteria for the selection of stochastic models of particle trajectories in turbulent flows. *J. Fluid Mech.*, **180**: 529-556.
- Tuzet A., Sanz C., Zurfluh O., Fouéré A., 1996: Les échanges convectifs au sein du couvert. In *Actes de l'Ecole Chercheurs INRA en Bioclimatologie*, Tome 1, Le Croisic, 3-7 Avril, 1995, 670pp.
- Uchijima Z., 1976: Maize and Rice. In *vegetation and the atmosphere vol. 2*, J.L. Monteith Ed., Academic Press, 439 pp.
- Van der Hoven I., 1957: Power spectrum of horizontal wind speed in the frequency range from 0.0007 to 900 cycles per hour. *J. Meteor.*, **14**: 160-164.
- Van Dop H., 1992: Buoyant plume rise in a lagrangian framework. *Atmos. Environ.*, **26A(7)**: 1335-1346.
- Van Dop H., Nieuwstadt F.T.M, Hunt J.C.R., 1985, Random walk models of particle displacements in inhomogeneous unsteady turbulent flows, *Phys. Fluid*, **28(6)**: 1639-1653.
- Van Hove L.W.A., Koops A.J., Adema E.H., Vredenberg W.J., 1988: The uptake of atmospheric ammonia by leaves. In: *Air Pollution and Ecosystems*, P. Mathy Ed., Reidel, Brussels / Dordrecht. pp734-738.
- Van Hove L.W.A., Koops A.J., Adema E.H., Vredenberg W.J., Pieters G.A., 1987: Analysis of the uptake of atmospheric ammonia by leaves of *Phaseolus vulgaris* L., *Atmos. Environ.*, **21**: 1759-1763.
- Van Hove L.W.A., Koops A.J., Adema E.H., Vredenberg W.J., Pieters G.A., 1989: A study of the adsorption of NH<sub>3</sub> and SO<sub>2</sub> on leaf surfaces. *Atmos. Environ.*, **23**: 1479-1486.
- Van Hove L.W.A., Vredenberg W.J., Adema E.H., 1990: The effect of wind velocity, air temperature and humidity on NH<sub>3</sub> and SO<sub>2</sub> transfer into bean leaves (*Phaseolus Vulgaris* L.). *Atmos. Env.*, **24(5)**: 1263-1270.
- Wallace J.M., Ecklemann H., Brodkey R.S., 1972: The wall region in turbulent flow. *J. Fluid Mech.*, **54**: 39-48.
- Wallsgrave R.M., Keys A.J., Lea P.J., Mifflin B.J., 1983: Photosynthesis, photorespiration and nitrogen metabolism. *Plant Cell and Environment* **6**: 301-309.
- Wang Q., Squires K.D., Wu X., 1995: Lagrangian statistics in turbulent channel flow. *Atmospheric Environment*, **29(18)**: 2417-2427.
- Weathers K.C., Lovett G.M., Likens G.E., 1992: The influence of a forest edge on cloud deposition. In *Precipitation scavenging and atmosphere surface exchange*, S.E. Schwartz and W.G.N. Slinn Eds., Hemisphere, Washington, pp. 1415-1424.
- Weil J.C., 1990: A diagnosis of the asymmetry in top-down and bottom-up diffusion using a lagrangian stochastic model. *Am. Meteorol. Soc.*, **47(4)**: 501-515.
- Wenzel A., Kalthoff N., Horlacher V., 1997: On the profiles of wind velocity in the roughness sublayer above a coniferous forest. *Boundary-Layer Meteorol.*, **84**: 219-230.
- Wilson J. D., Ward D.P., Thurtell G.W., Kidd G.E., 1982: Statistics of atmospheric turbulence within and above a corn canopy. *Boundary-Layer Meteorol.*, **24**: 485-519.
- Wilson J.D., Sawford B.L., 1996: Review of lagrangian stochastic models for trajectories in the turbulent atmosphere. *Boundary-Layer Meteorol.*, **78**: 191-210.
- Wilson J.D., Thurtell G.W., Kidd G.E., 1981: Numerical simulation of particle trajectories in inhomogeneous turbulence - II. Systems with variable turbulent velocity scale. *Boundary-Layer Meteorol*, **21**: 423-441.

- Woodall J., Boxall J.G., Forde B.G., Pearson J., 1996: Changing perspective in plant nitrogen metabolism: the central role of glutamine synthetase. *Science*, **79**: 1-26.
- Wooding R.A., Bradley E.F., Marshall J.K., 1973: Drag due to regular arrays of roughness elements of varying geometry. *Boundary-Layer Meteorol.*, **5**: 285-308.
- Wu Y.L., Davidson C.I., Dolske D.A., Sherwood S.I., 1992: Dry deposition of atmospheric contaminants to surrogate surfaces and vegetation. *Aerosol Science and Technol.*, **16**: 65-81.
- Wyers G.P., Erisman J.-W., 1998: Ammonia exchange over coniferous forest. *Atmos. Environ.*, **32**(3): 441-451.
- Wyngaard J.C., 1982: Boundary Layer Modelling. In *Atmospheric Turbulence and Air Pollution Modelling*. Ed. F.T.M. Nieuwstadt and H. Van Dop., pp. 69-105, D Reidel Publ. Co, Dordrecht.
- Wyngaard J.C., Coté O.R., Izumi Y., 1971: Local free convection, similarity, and the budget of shear stress and heat flux. *J. Atmos. Sci.*, **28**: 1171-1182.
- Wyngaard J.C., Coté O.R., Rao K.S., 1974: Modelling the atmospheric boundary layer. *Adv. Geophysics*, **18A**: 193-211.
- Yamulki S., Harrison R.M., Goulding K.W.T., 1996: Ammonia surface exchange above an agricultural field in Southeast England. *Atmos. Environ.*, **30**: 109-118.
- Yee E., Chan P., Kostenuik P.R., Chandler G.M., Bioltoft C.A., Bowers J.F., 1995: The vertical structure of concentration fluctuation statistics in plumes dispersing in the atmospheric surface layer. *Boundary-Layer Meteorol.*, **76**: 41-67.
- Yin Z.-H., Kaiser W.M., Heber U., Raven J.A., 1996: Acquisition and assimilation of gaseous ammonia as revealed by intercellular pH changes in leaves of higher plants. *Planta*, **200**: 380-387.
- Yin Z.-H., Raven J.A., 1997: A comparison of the impacts of various nitrogen sources on acid-base balance in  $C_3$  *Triticum aestivum* L. And  $C_4$  *Zea mays* L. *Plants. J. Experimental Botany*, **48**(307): 315-324.

## II.5. Bibliographie

---

### III. MODELISATION DU DEPOT SEC D'NH<sub>3</sub> A PROXIMITE DES SOURCES

#### Résumé

Le modèle de dépôt sec est basé sur le couplage d'un modèle de dispersion d'un scalaire passif en 2 dimensions, avec un modèle d'absorption foliaire de l'ammoniac. Le modèle de dispersion choisi est un modèle de dispersion lagrangien stochastique (LS). Un bref historique de ces modèles est donné en introduction du chapitre.

Le principe du modèle de dispersion LS que nous avons développé, est de décrire la trajectoire d'un grand nombre de particules fluides, ce qui permet de reconstruire la concentration moyenne de l'air. Chaque trajectoire est modélisée par une équation différentielle stochastique (EDS), qui décrit l'évolution du processus stochastique joint  $(x, u)$ , où  $x$  et  $u$  sont respectivement la position et la vitesse de la particule. L'équation de Fokker-Planck, qui exprime la conservation de la fonction densité de probabilité (fdp)  $p(x, u)$  associée à cette EDS, permet de faire le lien entre les variables lagrangiennes et eulériennes.

Ce modèle est exprimé en fonction des caractéristiques de la turbulence, par l'application de deux hypothèses : (i) l'hypothèse d'isotropie locale de Kolmogorov, et (ii) le critère d'entropie de Thomson (1987). Ce modèle, et les modèles LS en 2D en général, nécessitent une fermeture des EDS. Nous avons choisi le modèle présentant la fermeture la plus simple, qui est aussi celle qui donne les meilleurs résultats : le modèle gaussien de Thomson (1987).

La paramétrisation des caractéristiques de la turbulence est basée sur la bibliographie présentée au chapitre II. La vitesse moyenne du vent ( $\bar{u}$ ) dans le couvert suit une loi exponentielle, tout comme  $\sigma_u$ ,  $\sigma_w$  et  $\overline{u'w'}$ . Deux types de paramétrisations de  $\epsilon(z)$  ou de  $T_{L,w}(z)$  sont proposées : (i) l'une basée sur une valeur de  $T_{L,w}$  constante pour  $z \leq h$ , et sur une paramétrisation classique de  $\epsilon(z)$  dans la CLS, et (ii) l'autre déterminée en prenant en compte un terme de dissipation par frottement sur le couvert  $\epsilon_d$ .

Le modèle d'échange foliaire est basé sur l'analogie avec un schéma de résistances. Il prend en compte à la fois l'échange à travers les stomates, et le dépôt sur la surface externe des feuilles. Il fait intervenir trois résistances : une résistance de couche limite de feuille ( $r_b$ ), stomatique ( $r_s$ ) et cuticulaire ( $r_w$ ). Il prend également en considération le point de compensation  $C_s$ .

Une nouvelle paramétrisation de résistance  $r_b$  est proposée. Elle tient compte à la fois de l'intermittence de l'écoulement dans le couvert et de la convection libre. La résistance  $r_s$  est modélisée en fonction du rayonnement photosynthétiquement actif PAR, tandis la résistance cuticulaire est exprimée en fonction de l'humidité relative de l'air (HR). Le point de compensation  $C_s$  est exprimé en fonction de la température de la feuille, du pH et de la concentration en ion NH<sub>4</sub><sup>+</sup> dans l'apoplasme. Ces deux derniers paramètres sont déterminés à partir de données bibliographiques. Comme  $r_b$ ,  $r_s$ ,  $r_w$  et  $C_s$  dépendent du microclimat du couvert, une paramétrisation très simple de ce dernier est introduite : le PAR décroît exponentiellement dans le couvert, tandis que la température et l'humidité de l'air restent constantes.

Le couplage des modèles de dispersion et de dépôt repose sur la séparation des voies correspondant au dépôt et à l'émission d'NH<sub>3</sub> par le couvert. Cette démarche conduit à la définition d'une "résistance équivalente" de dépôt  $r_{dep}$  et une résistance d'émission  $r_{em}$ . Le domaine spatial est discrétisé par un maillage non homogène. Une concentration de fond en NH<sub>3</sub> est introduite. Le couplage revient alors à l'inversion d'un système linéaire. Les variables de sortie du modèle sont (i) le dépôt d'NH<sub>3</sub> sur le couvert en aval de la source, et (ii) la concentration et le flux vertical d'NH<sub>3</sub> en tout point du domaine.

### III.1 Introduction

Nous avons vu dans les chapitres précédents, que le dépôt sec d'ammoniac atmosphérique dépend de nombreux facteurs environnementaux, et d'autre part que les échanges d' $\text{NH}_3$  sont bidirectionnels. Si la concentration à l'extérieur de la feuille est supérieure au point de compensation stomatique  $C_s$ , la feuille émet de l'ammoniac, sinon elle en absorbe. De plus le point de compensation varie au sein d'un couvert (Husted et Schjørring, 1997), et la présence de feuilles sénescents amène parfois à des situations où une partie du couvert absorbe de l'ammoniac quand une autre en émet (Nemitz *et al.*, 1998). Ainsi les sources et les puits varient en intensité et en direction au sein du couvert.

Par ailleurs, la dispersion à courte distance dépend fortement de la structure de la végétation, et de sa distribution spatiale, comme par exemple un changement de taille de couverts (Irvine *et al.*, 1997), ou la présence d'obstacles (Leuzzi *et al.*, 1997). Une partie de la dispersion peut ainsi s'effectuer dans le couvert lui-même, si par exemple une source au niveau du sol se trouve en amont d'une forêt (de Jong *et al.*, 1997).

Il existe deux types de modèles de dépôt sec d'ammoniac à proximité des sources; (i) des modèles eulériens de dispersion dans lesquels la surface est traitée comme une source dont les caractéristiques sont déterminées par un modèle d'échange bidirectionnel (Asman, 1998), et (ii) des modèles lagrangiens qui décrivent le déplacement d'une colonne d'air au sein de laquelle existe des échanges verticaux, et à la surface (Hill, 1998; Singles *et al.*, 1998; Asman *et al.*, 1987). Aucun de ces modèles ne permet de prendre en compte la variabilité des sources et des puits au sein du couvert, ou la dispersion dans le couvert.

Il apparaît, au vu des chapitres précédents, que la prise en compte (i) de la variabilité des sources au sein du couvert, en fonction du microclimat et de la plante, et (ii) de la dispersion dans le couvert est un préalable au développement d'un modèle de dépôt sec d'ammoniac à proximité des sources. Notre approche vise donc à développer un modèle qui prenne en compte ces deux caractéristiques.

### III.2 Approche

Nous présentons ici l'approche générale adoptée dans la modélisation du dépôt sec d' $\text{NH}_3$  à proximité des sources, afin de situer le cadre dans lequel seront exposés les détails des différents éléments du modèle.

#### III.2.1 *Domaine spatial*

Le modèle que nous avons développé est stationnaire, à 2 dimensions d'espace, suivant la direction moyenne du vent  $x$  et la hauteur  $z$ . C'est à dire que nous supposons que toute source, tout puits, et toute condition micrométéorologique est indépendante de  $y$ , axe horizontal perpendiculaire à la direction moyenne du vent. Aucune dispersion latérale n'est donc prise en compte. Cette approche nous est apparue adaptée; (i) dans le cadre de la dispersion à courte

distance, (ii) pour aborder le problème pas à pas et en limiter la complexité, et (iii) afin de se placer dans une situation où des expérimentations pourront permettre la validation du modèle.

Il existe des méthodes pour ramener les résultats obtenus en deux dimensions à un champ de concentration en 3 dimensions, en utilisant par exemple des fonctions de dispersion latérale gaussiennes (Lin *et al.*, 1997; Huang, 1979). Cependant, ces corrections ne sont pas toujours légitimes dans un couvert végétal car les dispersions latérale, horizontale et verticale sont corrélées. De plus, la paramétrisation du coefficient de dispersion  $\sigma_y$ , est différente selon les auteurs (Huang, 1979), et mal définie dans le couvert végétal (Tableau II.7).

Certains auteurs utilisent des méthodes de "spatialisation" permettant de réaliser des estimations en 3 dimensions à partir de modèles en 2 dimensions (Sutton *et al.*, 1998). Le principe est de superposer le résultat de plusieurs simulations avec différentes directions moyennes du vent, en fonction de la probabilité d'occurrence de cette direction.

### III.2.2 Stationnarité

Avec les mêmes objectifs de simplicité et de validation du modèle, et avec des contraintes supplémentaires d'ordre numérique (voir fin du chapitre III), notre approche s'est basée sur une hypothèse de stationnarité. Cette notion mérite quelques précisions. Au sens mathématique, nous entendons "stationnarité en moyenne d'ordre deux", ce qui suppose que pour tout "processus aléatoire"  $x(t)$ , (i) ses moments jusqu'à l'ordre 2 sont indépendants du temps, i.e.  $E\{x(t)\} = m_x$  et  $E\{\|x(t)\|^2\} = var_x$ , et (ii) les fonctions de corrélation ou de covariance ne dépendent que de l'écart de temps entre deux événements, i.e.  $E\{x(t+s)y(t)\} = R_{xy}(s)$ . Ici  $E\{x\}$  est l'espérance de  $x$ ,  $\|x\|^2$  est la norme de  $x$ ,  $m_x$ ,  $var_x$  et  $R_{xy}$ , sont respectivement la moyenne, la variance de  $x(t)$ , et la covariance de  $x(t)$  avec  $y(t)$  (Soize, 1993). Noter qu'ici, l'espérance correspond à une moyenne d'ensemble.

Ces définitions autorisent des simplifications importantes dans la modélisation de la dispersion. Elles sont à la base de la modélisation de la turbulence (Kovaszny, 1976), et n'enlèvent rien à la prise en compte de l'intermittence, selon les termes du théorème ergodique (Soize, 1993). Ainsi, d'après ce dernier, cette hypothèse de stationnarité implique que le modèle soit appliqué à des périodes comprises entre 15 min et 1 heure (Figure II.5; voir par exemple Kaimal et Finnigan (§7), 1994).

Au sens strict, un modèle stationnaire ne permet pas de prendre en compte des phénomènes dynamiques qui varient au cours du temps. Toutefois, en tenant compte de la remarque précédente, il est évident que si ces phénomènes ont des "échelles de temps" supérieures au ¼ d'heure ou à l'heure, le modèle peut-être utilisé pour estimer leur variabilité à des échelles de temps supérieures.

La méthode consiste alors à utiliser le modèle "stationnaire" à répétition, avec des variables d'entrées qui changent à chaque répétition, reproduisant ainsi leur variation au cours

du temps. Le problème de l'utilisation de modèles stationnaires pour des processus dynamiques revient donc à déterminer si les échelles de temps des variables d'état ou de sortie du modèle sont compatibles avec les limites fixées par les variations des données d'entrée (15 min à 1 heure). Nous revenons dans les chapitres suivants sur ce problème qui n'est pas immédiat, du fait des temps de transfert très long au sein du couvert.

### III.2.3 Approche lagrangienne de la dispersion

En mécanique, deux repères sont couramment utilisés, le repère eulérien, fixe et lié à l'observateur, et le repère lagrangien qui suit le mouvement du fluide. Cette dernière définition donne une certaine latitude, et l'on distingue plusieurs "type" de modèles lagrangiens suivant l'élément fluide observé qui peut être : (i) une "colonne" d'air verticale de plusieurs mètres ou centaines de mètres de côté, qui se déplace en suivant la vitesse et la direction moyenne du vent (Hill, 1998; Singles *et al.*, 1998; Asman *et al.*, 1987), ou (ii) une "particule fluide", qui est un volume élémentaire et indissociable du fluide, et qui se déplace en fonction des fluctuations instantanées liées à la turbulence (Raupach, 1989). Ces deux approches, bien que toutes deux lagrangiennes, sont très différentes, la première faisant appel à des modèles de type diffusifs, la seconde étant une approche statistique, celle que nous utilisons.

### III.2.4 Principe de superposition

Notre approche est basée sur l'utilisation du principe de superposition (Thomson, 1987; Raupach, 1989) qui stipule que la concentration moyenne en un point  $x$  est la somme de la contribution de chaque source  $S(x_0, t_0)$ , pondérée de la "fonction de dispersion" ou "densité de probabilité de transition" de la particule fluide  $p(x, t/x_0, t_0)$ , telle que  $p(x, t/x_0, t_0) dx$  soit la probabilité qu'une particule passant au point  $(x_0, t_0)$  se trouve dans le volume élémentaire  $dx$  localisé en  $(x, t)$ . Avec l'hypothèse de stationnarité exprimée plus tôt, le principe de superposition permet de calculer la concentration moyenne  $\langle c(x) \rangle$  (Flesch et Wilson, 1995):

$$\langle c(x) \rangle = \int_{t > 0} S(x_0) p(x, t/x_0, 0) dx_0 dt \quad (III.1)$$

où les crochets désignent une moyenne d'ensemble. Ici le temps intervient dans la densité de probabilité de transition, uniquement à travers le temps de parcours car le champ turbulent est lui stationnaire (Flesch *et al.*, 1995). La Figure III.1 illustre le principe de superposition.

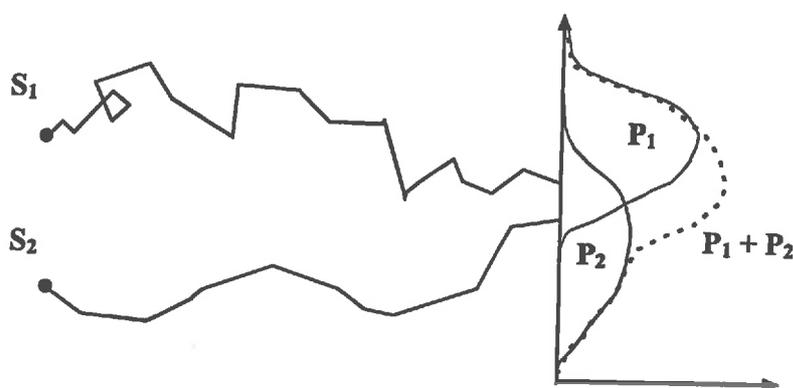


Figure III.1. Illustration du principe de superposition. Les particules passant sur les sources  $S_1$  et  $S_2$  sont "marquées", et déterminent une densité de probabilité de présence en aval,  $P_1$  et  $P_2$  respectivement. Le principe de superposition édicte que la densité de présence des deux sources prises ensemble est égale à la somme de  $P_1$  et  $P_2$ . En d'autres termes, les particules passant en  $S_1$  et celles passant en  $S_2$  n'interagissent pas entre elles. On voit par exemple que la dispersion de deux gaz réactifs l'un à l'autre ne vérifie pas ce principe.

Ce principe ne pose qu'une hypothèse, qui est que chaque particule fluide passant dans le volume élémentaire  $dx_0$  est "marquée" de façon proportionnelle à la densité de l'air. Généralement, comme dans la CLS la densité de l'air est constante, ceci n'a aucune incidence, sauf si l'on s'intéresse à la dispersion dans la couche limite planétaire, dans laquelle les gradients thermiques peuvent induire des erreurs de l'ordre de 10% (Stohl et Thomson, 1998). Nous négligerons cet effet. En utilisant le même principe, le flux vertical moyen  $\langle F_z(x) \rangle$  peut s'exprimer sous une forme similaire à l'Eqn. III.1 :

$$\langle F_z(x) \rangle = \int_{t>0} S(x_0) w p(x, w, t / x_0, 0) dx_0 dt dw \quad (III.2)$$

où  $F_z(x)$  est le flux vertical au point  $x$ , et  $w$  est la vitesse verticale du fluide,  $p(x, w, t / x_0, 0) dx$  est la probabilité qu'une particule fluide passant au point  $(x_0, 0)$ , se trouve dans le volume élémentaire  $dx$  en  $(x, t)$  avec la vitesse  $w$ .

### III.2.5 Modèle de dispersion et d'échange, couplage

L'équation (III.1) permet de calculer la concentration moyenne, à condition de déterminer d'une part la fonction de dispersion  $p(x, t / x_0, 0)$ , et d'autre part le terme source / puits dans le couvert  $S(x_0)$ , qui dépend lui-même de la concentration. La détermination de ces deux fonctions fait l'objet de deux sous-modèles distincts, (i) un modèle de dispersion de l'ammoniac qui permet de calculer  $p(x, t / x_0, 0)$ , et (ii) un modèle d'échange de l'ammoniac avec la végétation, qui détermine  $S(x_0, c(x_0))$ .

Par ailleurs, on voit apparaître dans l'Eqn. III.1, une relation implicite pour la concentration dans le couvert, où l'on a en tout point  $x$ , :  $c(x) = f\{c(x')_{x' \in \Omega}\}$ , où  $\Omega$  est le domaine spatial occupé par le couvert végétal. La résolution du problème nécessite donc l'emploi d'une méthode d'inversion. C'est l'objet du couplage entre les modèles de dispersion et d'échange. Les modèles de dispersion et d'échange d'NH<sub>3</sub>, ainsi que le couplage, sont décrits successivement et en détails dans la suite du chapitre.

### III.3 Historique

Il existe diverses "classes" de modèles permettant d'estimer la fonction de dispersion. Il y a les *modèles eulériens*, basés sur la résolution des équations de conservation du contaminant à partir de "fermetures" à des niveaux de détail plus ou moins élevés, d'autant plus universels, mais d'autant moins simples qu'ils sont plus élevés (Wyngaard, 1982). Le modèle d'ordre 1 correspond à l'équation classique de la dispersion (Garratt, 1992). Les *modèles lagrangiens stochastiques* constituent une autre classe de modèles de dispersions qui reposent sur la simulation, à partir d'une description de la turbulence, d'un très grand nombre de trajectoires de particules fluides (Wilson et Sawford, 1996). Les modèles lagrangiens stochastiques peuvent être qualifiés de "statistiques", par opposition aux modèles eulériens qui proposent une approche "phénoménologique" (Csanady, 1980).

Notre choix s'est porté sur le second type de modèle, les modèles lagrangiens stochastiques (LS), pour plusieurs raisons. (i) comme nous l'avons vu au chapitre II, dans le couvert végétal, et à l'interface avec l'atmosphère, les modèles de type diffusif sont mis en défaut, du fait de l'intermittence des échanges (Wyngaard, 1982; Denmead et Bradley, 1985) et de la proximité des sources et puits (Raupach, 1988). Ceci se traduit par une moins bonne description de la dispersion pour des temps inférieurs à l'échelle de temps lagrangienne. (ii) Les modèles LS sont relativement simples à mettre en application, autorisent une répartition spatiale complexe des sources et puits, et permettent d'introduire aisément des propriétés fines de la turbulence (van Dop *et al.*, 1985). (iii) enfin, ils présentent un potentiel scientifique intéressant, puisqu'ils peuvent être utilisés pour simuler des écoulements intermittents (Wilson et Sawford, 1996; Sawford, 1993), et qu'ils peuvent être appliqués avec des modifications "mineures" à la dispersion de particules pesantes (Aylor et Ferrandino, 1989).

Avant de détailler la construction du modèle de dispersion LS adapté au dépôt sec d' $\text{NH}_3$ , nous allons présenter brièvement le développement des modèles de dispersion lagrangiens stochastiques. Sans vouloir être exhaustif, nous allons montrer les étapes importantes dans le développement théorique de ces modèles, en introduisant à cette occasion les concepts utilisés, ainsi que les limites actuelles, à travers les travaux de différents auteurs. On pourra consulter Rodean (1996) et Wilson et Sawford (1996) pour une synthèse récente sur les modèles lagrangiens stochastiques.

#### **III.3.1 Origines : mouvement Brownien (Einstein) et Théorie de la diffusion par mouvement continu (Taylor)**

C'est très certainement Taylor (1921) qui a, pour la première fois, utilisé avec succès l'approche lagrangienne pour traiter le problème de la diffusion turbulente. Ses travaux étaient directement basés sur la théorie statistique du mouvement Brownien développée un peu plus tôt par Einstein (1905).

Le mouvement Brownien découvert par le botaniste R. Brown (1826) est le mouvement apparent d'un solide de faible dimension (qq.  $\mu\text{m}$ ) dans un fluide au repos, sous l'effet des chocs élastiques avec les molécules composant le fluide, par exemple un grain de pollen à la surface de l'eau (Wang et Uhlenbeck, 1945). En faisant l'hypothèse que la particule est suffisamment grande pour subir une force de frottement visqueux, mais qu'elle est assez petite pour être affectée par les collisions moléculaires, l'équation de Langevin, décrivant le mouvement, peut être déduite (Csanady, 1980, p 28) :

$$\frac{du}{dt} = -\beta u + A(t) \quad \text{Langevin} \quad (\text{III.3})$$

où  $u$  est le vecteur vitesse,  $\beta u$  est la force massique de frottement visqueux, opposée au mouvement,  $\beta$  étant un coefficient de dimension [ $\text{s}^{-1}$ ], et  $A(t)$  est l'accélération aléatoire liée aux collisions moléculaires.  $\beta^{-1}$  est le temps de relaxation visqueux. Ici la force de gravité  $g$  a été ignorée. Si la particule est sphérique (loi de Stokes),  $\beta = 6\pi r\mu / m$ , où  $r$  est le rayon de la particule et  $m$  sa masse, et  $\mu$  est la viscosité cinématique de l'air. A partir de l'équation (III.3), et de la loi de l'équipartition de l'énergie, Einstein (1905) déduisit le coefficient de diffusion Brownien  $D_B$  (Csanady, 1980) :

$$D_B = \frac{k_B T}{6 \pi r \mu} \quad (\text{III.4})$$

où  $k_B$  est la constante de Boltzman,  $T$  est la température en K, et  $D_B$  est le coefficient de diffusion Brownien [ $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ ], pour une particule sphérique. Cette formulation n'est valable que pour des temps supérieurs à  $\beta^{-1}$  soit environ  $10^{-9}$  s pour  $r = 1$  nm et  $10^{-2}$  s pour  $r = 200$   $\mu\text{m}$ . Si le mouvement brownien n'est pas l'objet de cette étude, il est intéressant de s'y pencher pour voir quelles sont les hypothèses fondatrices de cette théorie.

L'autre contribution majeure vient de Taylor (1921), avec sa théorie de la diffusion par mouvement continu. Le théorème de Taylor relie la variance de la position de la particule  $\overline{x^2}$ , à la fonction d'autocorrélation de la vitesse de la particule ( $u$ ),  $R_{uu}(\tau)$ , qui a été dérivée pour une turbulence homogène (voir par exemple Csanady, 1980) :

$$\frac{d\overline{x^2}}{dt} = 2 \overline{u^2} \int_0^t R_{uu}(\tau) d\tau \quad \text{Taylor} \quad (\text{III.5})$$

où  $\overline{u^2}$  est la variance de la vitesse de la particule. Ici  $\overline{\quad}$  dénote une moyenne sur l'ensemble des trajectoires de particules fluides, à l'instant  $t$ , quelle que soit leur position. Noter qu'ici  $u$  est une composante de la vitesse, et non le vecteur vitesse. Le développement théorique de Taylor a été prolongé et approfondi par Monin et Yaglom, (1971, 1975). Le formalisme développé par Taylor (1921) a également été utilisé pour obtenir des solutions de diffusion turbulente, en conditions *homogènes*, c'est à dire avec  $u$  constant, qui conduisent aux modèles gaussiens de dispersion (Schuepp *et al.*, 1990), mais il faudra beaucoup d'ingéniosité pour

trouver une approche analytique dans des conditions non homogènes (Raupach, 1988). En réalité, le développement des modèles lagrangiens dispersifs en conditions complexes sera lié à l'apparition de calculateurs suffisamment puissants.

### III.3.2 Premières applications des modèles LS à la turbulence

Les premières traces bibliographiques (à ma connaissance) d'applications numériques des modèles lagrangiens stochastiques appliqués au calcul de la dispersion dans l'atmosphère remontent à Thompson (1971). Daniels et Jones (1970) avaient déjà appliqué la méthode mais pour étudier les statistiques eulériennes de la CLS. Dans le cas d'un écoulement liquide, Bugharello et Jackson (1964) avaient également utilisé ce type de méthode. Plus largement, les débuts peuvent être attribués à Thompson (1971), Jonas et Barlett (1972), en conditions homogènes, Hall (1975) qui réalisa des comparaisons systématiques avec des données obtenues dans la CLS, puis Reid (1979) qui étudia la dispersion depuis des sources élevées et près du sol, et enfin Ley (1982) et Ley et Thomson (1983) qui intégra le cas stable. Ses premières applications de la théorie dans la CLS ont montré l'intérêt de cette approche, tout en mettant en avant le coût en temps de calcul qui a sans doute été un frein au développement de ces méthodes, mais qui n'en est plus un aujourd'hui.

Les premières tentatives de modélisation de la dispersion dans le couvert végétal, c'est à dire dans un écoulement fortement inhomogène, avec des modèles LS ont été réalisées par Wilson, Thurtell et Kidd (1981a, 1981b; voir aussi chapitre II). Ils ont proposé une méthode de normalisation permettant de simplifier le cas de la turbulence inhomogène. Puis Legg et Raupach (1982), ont proposé une approche similaire. Ces deux auteurs ont montré par des méthodes différentes la nécessité d'introduire des corrections à l'équation de Langevin (Eqns. III.1-III.3), lorsqu'il existe un gradient de  $\sigma_w(z)$ . L'utilisation de l'Eqn. III.3 conduit en effet à l'accumulation de particule fluides au niveau du sol, du fait de l'existence d'une vitesse de chute additionnelle de moyenne  $w = -\partial(T_L \sigma_w^2) / \partial z$ . Wilson *et al.* (1981b) ont introduit les premiers cette correction, puis Legg et Raupach (1982) ont apporté une démonstration plus "physique" mais peu rigoureuse. La justification physique de cette vitesse se retrouve en développant l'équation de conservation de la composante verticale de la quantité de mouvement :

$$\frac{d \overline{w_a}}{dt} = \frac{\partial \overline{w_a^2}}{\partial z} = -\frac{g}{\rho} - \frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial z} \quad (III.6)$$

où  $w_a$  est la vitesse eulérienne de l'air,  $g$  est l'accélération de la pesanteur,  $\rho$  est la densité de l'air, et  $p$  est la pression. L'équation (III.6) montre qu'une force dirigée vers le bas est associée à tout gradient de variance de vitesse du vent. Toutefois, si la justification physique est correcte, il faut attendre Thomson (1984) pour qu'un développement plus rigoureux n'apparaisse.

Les résultats de Wilson *et al.* (1981b) et Legg et Raupach (1982) ont été justifiés par la vérification d'une contrainte ; le gaz initialement réparti de façon homogène dans une couche "fermée" de l'atmosphère doit le rester (Legg et Raupach, 1982). Durbin (1984) va identifier clairement deux autres contraintes: (i) quand  $T_L \rightarrow 0$ , le "modèle de Langevin" doit se réduire à une équation de diffusion classique, et (ii) quand la turbulence est homogène, les variances de vitesse du vent eulériennes et lagrangiennes doivent être égales. Mais Durbin (1983a, 1983b, 1984) va aussi (ré?)introduire un formalisme plus rigoureux qui est celui des équations différentielles stochastiques de Itô, et des équations de Fokker-Planck (Annexes A3-A4).

### III.3.3 Normalisation des fondements théoriques : Thomson (1987)

Comme nous venons de le voir, plusieurs modèles LS ont été développés pour la turbulence inhomogène (Wilson *et al.*, 1981b; Legg et Raupach, 1982). En même temps, plusieurs critères ont été proposés pour estimer la validité de ces modèles. Les quatre critères récurrents sont : (i) la distribution des particules dans l'espace des phases est correcte (Thomson, 1984), (ii) la distribution des vitesses à des temps inférieurs à  $T_L$  est correcte (van Dop *et al.*, 1985), (iii) le modèle est compatible avec les équations de conservation de la masse (van Dop *et al.*, 1985), et (iv) le modèle se réduit à l'équation de diffusion lorsque l'échelle de temps tend vers 0 (Durbin, 1984).

Thomson (1987) montre que trois de ces critères sont équivalents ou peuvent être déduits du premier, qu'il nomme « well mixed criteria », et que nous appellerons « critère d'entropie », puisqu'il stipule que tout système (fermé) "désordonné" doit le rester. Thomson (1987) propose également une méthode généralisée pour développer tout modèle LS. Les hypothèses et critères clés de cette méthode sont résumés ci-après (Thomson, 1987; Wilson et Sawford, 1996) :

- (1) l'évolution de  $(x,u)$  est un processus de Markov (Soize, 1993),
- (2)  $x$  et  $u$  sont continus, et  $u = dx / dt$ ,
- (3) le modèle vérifie le « critère d'entropie »,
- (4) le modèle est cohérent avec la théorie de Kolmogorov.

Avec ces quatre hypothèses et conditions, Thomson (1987) définit un modèle unique en une dimension, mais qui ne l'est pas en deux ou trois dimensions. Ainsi, un nouveau problème fait jour qui concerne l'hypothèse de fermeture, qui sera discutée en détail plus loin. A partir du modèle de Thomson (1987), qui fait référence (Wilson et Sawford, 1996), plusieurs modèles peuvent être dérivés, qui dépendent des applications concernées (c'est à dire du type de turbulence), des hypothèses de fermeture évoquée ci-dessus, et des conditions aux limites imposées.

#### **III.3.4 Les modèles de dispersion dans la CLP**

Dans la Couche Limite Planétaire (CLP), la turbulence n'est "pas gaussienne" (Luhar et Britter, 1989). Cette caractéristique est essentielle dans le développement de modèle LS pour la CLP. La méthode développée par Thomson (1987) permet de prendre en compte virtuellement toute distribution de probabilité pour la vitesse eulérienne, dans un cadre théorique défini. Par ailleurs, Baerentzen et Berkowicz (1984) ont développé un peu plus tôt une méthode donnant des expressions analytiques de distributions "asymétriques", à partir de la somme de deux distributions gaussiennes (voir Annexe A5). Luhar et Britter (1989) font le lien entre ces deux travaux, et développent un modèle à une dimension, non-gaussien, de dispersion dans la CLP convective (de jour), basé sur l'approche de Thomson (1987). Toutefois, Reynolds (1998a), montre qu'un modèle gaussien, à deux dimensions, donne aussi de bons résultats, comparé à des simulations de LES ("Large Eddy Simulation").

D'autres modèles LS dans la CLP ont été développés. Des modèles qui tiennent compte de l'effet de flottabilité due à la différence de température entre le panache et l'air environnant : Weil (1994) propose un modèle hybride qui résulte du couplage du modèle de Thomson en une dimension, non-gaussien, avec un modèle "d'entraînement" qui décrit la vitesse ascensionnelle du panache. Anfossi *et al.* (1993) se base sur la même approche, mais propose un modèle simplifié d'entraînement. Van Dop (1992) propose quant à lui une approche entièrement lagrangienne du problème de la "flottabilité" du panache. Gopalakrishnan *et al.* (1997) ont adapté ce modèle pour étudier la dispersion d'un "gaz lourd", l'isocyanate de méthyle.

D'autres modèles prennent en compte deux échelles de fluctuation, l'une locale, liée à la turbulence, et l'autre liée au mouvement des masses d'air. Ryall *et al.* (1998) utilise un tel modèle, sans prendre en compte l'effet de mémoire à l'échelle locale, pour la dispersion de Chlorofluorocarbone (CFC). Stohl et Thomson (1999) montrent que lorsque la densité ne varie pas avec l'altitude (qui n'est autre que l'hypothèse de Boussinesq), la concentration de surface est sous estimée d'environ 10%. L'objet de cette étude est d'étudier le transport et le dépôt d' $\text{NH}_3$  à courte distance de la source, c'est à dire près de la surface et dans le couvert. Mais il est intéressant de noter qu'il serait possible de travailler sur des distances plus grandes en gardant la même approche lagrangienne.

#### **III.3.5 Les modèles de dispersion dans la couche limite stable**

Le modèle de Luhar et Rao (1994), qui décrit la dispersion en 3 dimensions, de nuit, en conditions stables, dans des terrains accidentés, montre bien tout l'intérêt des modèles LS, adaptables à différentes conditions, moyennant une description fidèle de la turbulence. Wong et Hage (1994), et Rao (1999) développent des modèles identiques. La caractéristique principale de ces modèles en conditions "super critiques" (le nombre de Richardson excède sa valeur critique), est de considérer la dispersion verticale comme une simple diffusion avec un

coefficient de diffusion  $K_z(z)$  selon le schéma proposé par Durbin (1983a; 1984). Donc le modèle utilise une équation différentielle stochastique sur la position uniquement (Rao, 1999; Durbin, 1984) :

$$dz = \{ \overline{w_a} + \partial K_z(z) / \partial z \} dt + \sqrt{2 K_z(z)} d\xi(t) \quad (III.7)$$

où  $z$  est la position de la particule fluide, et  $d\xi(t)$  est un incrément de Wiener, c'est à dire une variable aléatoire gaussienne, de moyenne 0 et de variance  $dt$  (donc d'écart-type  $\sqrt{dt}$ ) (Soize, 1993).

### III.3.6 Les modèles de dispersion dans le couvert végétal

Comme nous l'avons vu au chapitre II, dans le couvert végétal, l'écoulement est fortement inhomogène, mais également intermittent. Ces deux caractéristiques ont orienté les recherches sur les modèles LS dans le couvert. Wilson *et al.* (1981b), et Legg et Raupach (1982) ont montré que l'inhomogénéité de l'écoulement devait être prise en compte, sans quoi les particules s'accumulent à la surface. Mais Leclerc *et al.* (1988), montre que le modèle de Wilson *et al.* (1983) à une dimension, surestime toujours la concentration mesurée au centre d'une source annulaire dans un couvert de luzerne.

L'utilisation de modèles LS gaussiens à deux dimensions, qui sont supposés mieux rendre compte des échanges dans le couvert pose problème car ils ne sont pas uniques (Thomson, 1987). Ainsi Reynolds (1998b) montre que suivant les paramètres de fermeture utilisés, le modèle donne des résultats très différents, et que donc la fermeture des modèles LS en 2D n'est pas "triviale", c'est à dire qu'elle engendre des solutions très différentes. Wilson et Flesch (1997) et Reynolds (1998b), semblent indiquer que le modèle de Thomson (1987), le "plus simple" dans la classe des modèles LS en 2D est celui qui donne les meilleurs résultats. Par ailleurs, selon Reynolds (1998b), le modèle qui fonctionne le moins bien dans le couvert, est le même modèle qui donne des résultats satisfaisant dans la CLP (Reynolds, 1998a), ce qui montre à nouveau l'importance de ces termes de fermeture.

L'utilisation de modèles non-gaussiens pose également problème. Flesch et Wilson (1992) trouvent que leur modèle non-gaussien, à deux dimensions, n'apporte pas d'amélioration visible, voire donne de moins bons résultats, que le modèle de Thomson (1987) à deux dimensions. L'une des difficultés dans l'utilisation de fonctions de densité de probabilité (fdp) non-gaussiennes pour la vitesse du vent - ce qui est implicite dans le développement de modèles LS non-gaussien à partir de la procédure de Thomson (1987) - est précisément de donner une expression analytique de la fdp, en fonction des mesures des premiers moments uniquement (Annexe A5). Le problème est encore plus ouvert avec deux ou trois dimensions puisqu'il existe un plus grand nombre de "degrés de liberté".

En utilisant la méthode de Baerentsen et Berkowicz (1984) généralisée en deux dimensions, Flesch et Wilson (1992) n'arrivent pas à obtenir des résultats cohérents, et sont

obligés de forcer certains paramètres des fdp. Du *et al.* (1994a; 1994b) développent une méthode permettant de reconstruire une fdp à une dimension à partir des moments connus, mais cette méthode, donne des résultats très comparables au modèle de Flesch et Wilson (1992) (Reynolds, 1998a). Monti et Leuzzi (1996) proposent une méthode permettant de générer des fdp non gaussiennes en trois dimensions, qui marche bien pour les premiers moments de la fdp, mais qui n'a pas été testée dans un couvert végétal où la turbulence est fortement inhomogène, et où les termes de transport turbulent sont très intenses. Comme le dit J.C.R. Hunt, "les inhomogénéité de la turbulence [dans le couvert] vont avoir plus d'importance [sur la dispersion] que les moments d'ordre 3 et 4" (cité dans Wilson et Sawford, 1996).

### *III.3.7 Problèmes divers, et ouverts ...*

Différents problèmes importants, de choix de modélisation, ou de paramétrisation de la turbulence, qui n'ont pas été abordés ci-dessus, reviennent souvent dans la bibliographie. Voici les principaux (voir aussi Wilson et Sawford, 1996 ; Rodean, 1996 ).

#### III.3.7.1 Réflexion des particules au niveau du sol

La surface du sol représente pour la particule fluide modélisée une limite infranchissable, puisque le flux d'air le traversant est nul. Ainsi il convient de prendre en compte cette condition aux limites dans les modèles LS. La façon la plus simple (Legg et Raupach, 1992), est d'opérer une réflexion parfaite des particules, i.e.  $w^+ = -w^-$  et  $u^+ = -u^-$ , où  $u$  et  $w$  sont les vitesses lagrangiennes, et les exposants + et - indiquent une particule arrivant au sol et en repartant. La réflexion des deux composantes de la vitesse n'a aucune signification physique, mais elle est nécessaire pour conserver le signe du flux de quantité de mouvement près du sol (Wilson et Flesch, 1993).

Weil (1990) propose un algorithme de réflexion qui permet de calculer  $w^+$  en fonction de  $w^-$ , de telle sorte que la fonction de densité de probabilité (fdp) ne soit pas déformée près de la surface. Wilson et Flesch (1993) montrent quant à eux, que les modèles gaussiens (homogène et inhomogène) avec réflexion parfaite vérifient bien le critère d'entropie de Thomson (1987), mais que les modèles non gaussiens, y compris celui de Weil (1990), n'acceptent pas par essence d'algorithme de réflexion quels qu'ils soient. Toutefois, l'algorithme de Weil (1990), avec un pas d'intégration faible vérifie le critère d'entropie de Thomson (1987). La méthode de Wilson et Flesch (1993) est intéressante : elle permet de tester tout algorithme de réflexion de façon théorique, avant de le mettre en œuvre dans le modèle lui-même.

#### III.3.7.2 Absorption à la surface du sol

Wilson *et al.* (1989) proposent une méthode intéressante pour simuler une vitesse de dépôt  $V_d$  des particules à la surface, basée sur la détermination d'une probabilité de réflexion à la

surface  $R$ . Cette probabilité est liée à la vitesse de dépôt  $V_d(z) = F_z / c(z)$ , où  $F_z$  est le flux, et  $c(z)$  la concentration, par la relation (Wilson *et al.*, 1989) :

$$\frac{1 - R}{1 + R} = \sqrt{\frac{\pi V_d}{2 \sigma_w}} \quad (III.8)$$

où  $\sigma_w$  est l'écart-type de la vitesse du vent (eulérienne) à la hauteur où la vitesse de dépôt a été calculée. En effet,  $V_d(z)$  est une fonction de la hauteur  $z$ , et donc  $R$  est également une fonction de  $z$  dans la CLS, car  $\sigma_w$  lui est constant. Toutefois, cette approche nécessiterait d'être testée à l'aide par exemple du formalisme proposé par Wilson et Flesch (1993), pour savoir si elle ne viole pas le critère d'entropie de Thomson (1987).

### III.3.7.3 Erreurs d'intégration numériques

Peu de remarques sont faites dans la littérature sur les méthodes d'intégration numérique de l'équation de Langevin, ou ses versions plus évoluées. Ceci vient sans doute du fait que ces équations possèdent des termes aléatoires et les erreurs numériques potentielles sont donc difficiles à appréhender. Trois types d'erreurs numériques peuvent apparaître, comme l'indiquent les annexes de certaines publications (van Dop, 1992; Wilson et Flesch, 1993; Flesch et Wilson, 1995) :

- (i) Une erreur statistique liée au nombre de "réalisations" de trajectoires fluide, qui est de l'ordre de  $\{Ln(\tau/\tau_0) / N\}^{1/2}$ , où  $\tau/\tau_0$  est le rapport de deux échelles de temps lagrangienne (maximale et minimale dans le domaine, par exemple),  $N$  est le nombre de réalisations (van Dop, 1992). Pour maintenir cette erreur inférieure à quelques %,  $N$  doit être de l'ordre de  $10^4$ .
- (ii) Une erreur de précision du générateur de nombres aléatoires dont l'impact peut être maintenu inférieur à 1% si la valeur moyenne de cette erreur reste inférieure à  $10^{-5}$  (van Dop, 1992).
- (iii) Enfin, une erreur d'intégration numérique liée à l'inhomogénéité de la turbulence, et qui peut entraîner une surestimation de la concentration à la surface du sol jusqu'à 20%, par l'introduction d'un biais sur la vitesse verticale de la particule (Wilson et Flesch, 1993). Flesch et Wilson (1995) proposent, d'après les travaux de Kloeden et Platen (1992) un modèle implicite d'intégration numérique qui permet de limiter le problème de la surestimation de la concentration à la surface.

### III.3.7.4 Dispersion autour de bâtiments

L'un des intérêts des modèle LS, est qu'ils peuvent être appliqués à des écoulements complexes. L'écoulement autour d'un bâtiment constitue un exemple intéressant à plusieurs titres. D'une part l'écoulement présente des zones de recirculation dont l'effet sur la dispersion est intéressant en soi, et d'autre part le dépôt sec d'ammoniac à courte distance est fortement lié aux émissions depuis les bâtiments d'élevage.

Sans vouloir être exhaustif, Turfus (1988), puis plus récemment Leuzzi et Monti (1998) et Lee et Näslund (1998) ont développé des modèles de dispersion LS couplés à des modèles d'écoulement ou des mesures en soufflerie. Le modèle de Leuzzi et Monti est le même que celui de Monti et Leuzzi (1996) évoqué précédemment. Les modèles de Leuzzi et Monti (1998) et Turfus (1988) donne de bon résultats, et le modèle à 3 dimensions de Thomson (1987) également.

### III.3.7.5 *Autres problèmes récents*

Les modèles présentés ci-dessus permettent d'estimer la concentration moyenne  $\langle c(x,t) \rangle$ . Certains auteurs ont développé des modèles permettant d'estimer les covariances de concentration  $\langle c(x_1,t) c(x_2,t) \rangle$  (Lamb *et al.*, 1979; Durbin, 1980; Sawford, 1982). Toutefois, leur développement pose encore des problèmes théoriques importants, notamment liés à la non-unicité de ces modèles (Sawford, 1993).

Borgas et Sawford (1994) définissent une méthode pour introduire l'intermittence dans les modèles de dispersion, en intégrant une variabilité temporelle du terme de dissipation visqueuse de l'énergie cinétique  $\varepsilon(t)$ . Cette dernière est calculée de façon aléatoire à partir d'un modèle de "cascade" adapté de Meneveau et Sreenivasan (1987). Les trajectoires ainsi obtenues diffèrent peu des trajectoires calculées à partir de l'équation de Langevin.

## III.4 Construction d'un modèle de dispersion lagrangien stochastique

Après être revenu sur l'historique du développement des modèles LS, et les questions les plus importantes qui y sont rattachées, nous présentons notre modèle, en prenant soin toutefois de bien détailler la méthode de Thomson (1987), ainsi que certains points clés sur lesquels nous apportons des résultats originaux, ou qui nécessitent un éclaircissement.

### III.4.1 *Théorie statistique*

Etant donné que les développements théoriques sont assez lourds, il n'est pas inutile d'introduire avant tout les bases statistiques sur lesquelles est fondée l'approche lagrangienne. Nous allons commencer par élargir la définition de l'équation (III.1) introduite précédemment. Quelques définitions s'imposent :  $P(x,u,t)$  est la fonction de densité de probabilité (fdp) de toutes les particules "marquées" dans l'espace des phases, c'est à dire l'espace  $(x,u)$ .  $P_a(x,u,t)$  est la fdp de toutes les particules fluides dans l'espace des phases, c'est à dire la fdp "eulérienne". Ces fdp sont normalisées de telle sorte que (Thomson, 1987) :

$$\int P d^3u = \langle c(x,t) \rangle \quad \text{et} \quad \int P_a d^3u = \langle \rho(x,t) \rangle \quad (\text{III.9})$$

où  $c(x,t)$  et  $\rho(x,t)$  sont la concentration et la densité eulérienne respectivement. La sommation triple sur l'ensemble des réels est sous-entendue dans le signe somme. Les crochets dénotent une moyenne d'ensemble. Donc au sens strictement mathématique du terme,  $P$  et  $P_a$  ne sont pas des densités de probabilité. Par définition, pour toute fonction  $f(x,u,t)$ ,

$\int f P d^3u = \langle f(x,t) \rangle \langle c(x,t) \rangle$  (Thomson, 1987). En particulier, si  $f = u_i(t)$ , où  $u_i(t)$  est la composante selon l'axe  $i$  du vecteur vitesse (lagrangien)  $u(t)$ , on obtient (van Dop *et al.*, 1985) :

$$\int u_i^n P d^3u = \langle u_i^n(x,t) \rangle \langle c(x,t) \rangle \quad (III.10)$$

où  $n$  est un exposant. Par ailleurs, van Dop *et al.* (1985, Annexe A) a montré l'égalité suivante, généralisée par Thomson (1987) :

$$\langle u_i^n \rangle \langle c \rangle = \langle u_{ai}^n c \rangle \quad (III.11)$$

$$\langle f(x,u,t) \rangle \langle c \rangle = \langle f(x,u_a,t) c \rangle \quad (III.12)$$

où  $u_a$  est le vecteur vitesse eulérien. Ici  $(x,t)$  a été omis par souci de simplicité. L'équation (III.11) est très importante, puisqu'elle permet de relier le flux de gaz en un point à la concentration moyenne et la vitesse lagrangienne moyenne (prendre  $n = 1$ ). En inversant le propos, on voit que l'équation (III.11) montre que la vitesse moyenne lagrangienne  $u$  en un point  $(x,t)$ , est le rapport du flux eulérien moyen  $F$  sur la concentration moyenne en ce point.

Intéressons nous maintenant à la fdp de transition  $p(x,t/x_o,t_o)$ , telle que  $p(x,t/x_o,t_o)d^3x$  soit la probabilité qu'une particule se trouvant au point  $x_o$  à l'instant  $t_o$  se trouve dans le volume élémentaire  $d^3x$  à l'instant  $t$ . Elle est simplement reliée à la fdp dans l'espace des phases par (déduit de Thomson, 1987 et van Dop *et al.*, 1985):

$$\int P d^3u = \langle c(x,t) \rangle = \int_{t_o < t} p(x,t/x_o,t_o) S(x_o,t_o) d^3x_o dt_o \quad (III.13)$$

où  $S(x_o,t_o)$  est la densité volumique de la source [ $\text{kg m}^{-3} \text{s}^{-1}$ ]. Ici encore l'intégration est implicite sur l'ensemble des réels, et  $t_o$  doit être inférieur à  $t$ , puisque l'émission est antérieure à l'instant d'observation  $t$ . On peut également introduire la fdp de transition dans l'espace des phases  $p(x,u,t/x_o,u_o,t_o)$ , qui permet d'une part de dériver une expression du flux à partir des équations (III.10, III.11, III.13), mais qui montre également qu'il est possible de considérer une source qui marque (relâche) de façon conditionnelle, par exemple si  $u_o$  appartient à un sous-ensemble donné de valeurs possibles de  $u$  (voir Thomson, 1987). L'expression pour le flux et les moments d'ordres supérieurs, est de forme équivalente à l'équation (III.13) :

$$\langle u_{ai}^n c \rangle = \int_{t_o < t} u_i^n p(x,u,t/x_o,t_o) S(x_o,t_o) d^3u d^3x_o dt_o \quad (III.14)$$

#### III.4.2 Application pratique au cas stationnaire

Dans le cas stationnaire, les expressions (III.13-III.14) ci-dessus se simplifient et permettent d'accéder à un moyen pratique de calculer la concentration et le flux. Si l'écoulement et la source sont tous les deux stationnaires, deux importantes simplifications peuvent être introduites (Flesch et Wilson, 1995; Weil, 1990) :

$$p(x, t/x_0, t_0) = p(x, t-t_0/x_0, 0) \quad (III.15)$$

$$S(x_0, t_0) = S(x_0) \quad (III.16)$$

En introduisant ces équations dans l'équation (III.13), et en effectuant le changement de variable  $t' = t-t_0$ , on démontre aisément (Flesch et Wilson, 1995) :

$$\langle c(x) \rangle = \int_{t' > 0} p(x, t'/x_0, 0) S(x_0) d^3 x_0 dt' \quad (III.17)$$

où ici la concentration ne dépend plus du temps. En pratique c'est la concentration dans un volume  $V_c$ , d'une maille ou d'un capteur, que l'on cherche à obtenir. La concentration moyenne dans ce volume s'exprime par :

$$\langle c^y(x) \rangle = \frac{1}{V_c} \int_{V_c, t > 0} p(x, t/x_0, 0) S(x_0) d^3 x_0 dt d^3 x \quad (III.18)$$

L'équation (III.18), peut être modifiée pour faire ressortir le "temps moyen de résidence"  $\langle T(V_c/x_0) \rangle$  d'une particule issue de la source  $S(x_0)$ , dans le volume  $V_c$  (Flesch et Wilson, 1995) :

$$\langle c^y(x) \rangle = \frac{1}{V_c} \int \langle T(V_c/x_0) \rangle S(x_0) d^3 x_0 \quad (III.19)$$

$$\langle T(V_c/x_0) \rangle = \int_{V_c, t > 0} p(x, t/x_0, 0) d^3 x dt \quad (III.20)$$

En terme discret, la concentration moyenne dans le volume  $V_c$  est la somme des temps moyens de résidence dans ce volume, pour chaque source, divisé par  $V_c$ . Pour un ensemble de sources volumiques, l'équation (III.19) devient (Flesch et Wilson, 1995) :

$$\langle c^y(x) \rangle \approx \frac{1}{N V_c} \sum_{n=1}^N \langle T(V_c/V_n) \rangle S_n \times V_n \quad (III.21)$$

où  $N$  est le nombre de sources, chacune ayant un volume  $V_n$  et une densité de source  $S_n$ . Ici,  $\langle T(V_c/V_n) \rangle$  est la valeur moyenne sur  $V_n$  de  $\langle T(V_c/x_0) \rangle$ . La même démarche permet de définir le flux dans le volume à partir de l'équation (III.14), en introduisant la projection selon chaque direction  $i$  de la distance moyenne parcourue par une particule entrant dans le volume  $V_c$ ,  $\langle d_i(V_c/x_0) \rangle$  :

$$\langle u_{ai}^y c^y(x) \rangle \approx \frac{1}{N V_c} \sum_{n=1}^N \langle d_i(V_c/V_n) \rangle S_n \times V_n \quad (III.22)$$

$$\langle d_i(V_c/x_0) \rangle = \int_{V_c, t > 0} u_i p(x, u, t/x_0, 0) d^3 u d^3 x dt \quad (III.23)$$

Noter ici que la distance  $\langle d_i(V_c/x_0) \rangle$  peut être supérieure à la distance maximale à l'intérieur du volume  $V_c$ , puisque  $V_c$  est indépendant de  $u_i$ .

### III.4.3 Processus de Markov et équation différentielle stochastique

Comme nous l'avons dit dans l'introduction, nous considérons que l'évolution du couple lagrangien  $(x, u)$  est un processus stochastique, ou processus de Markov, continu (Soize, 1993). Ceci veut dire que  $x(t)$  et  $u(t)$  sont continus. L'étape suivante est de faire l'hypothèse que le processus stochastique est défini par l'équation différentielle stochastique (EDS) de forme générale :

$$du_i = a_i(x, u, t) dt + b_{ij}(x, u, t) d\xi_j(t) \quad (III.24a)$$

$$dx_i = u_i dt \quad (III.24b)$$

où  $a$  est un vecteur  $(a_i)$  et  $b$  est une matrice  $(b_{ij})$ , et sont tous deux des fonctions de  $x$  et de  $u$ . Ici le premier terme de l'équation (III.24a) peut être considéré comme un terme d'amortissement, tandis que le second est un terme d'accélération aléatoire. L'EDS est comprise au sens de Itô (Annexe A3-A4), mais il existe d'autres formulations d'EDS, telle que l'EDS de Stratanovitch (Soize, 1993) qui n'ont jusqu'à aujourd'hui pas été appliqués dans des modèles de dispersion. Ici  $d\xi_j(t)$  est un incrément de processus vectoriel de Wiener (Soize, 1993; Thomson, 1987). Par définition d'un tel processus, les "accroissements"  $d\xi_j$  sont gaussiens, de moyenne 0, et de variance  $dt$ , et indépendants, c'est à dire tels que si  $t \neq s$  ou  $i \neq j$ ,  $\langle d\xi_j(t) d\xi_i(s) \rangle = 0$ .

Ce dernier point est important, car il implique que l'accélération aléatoire utilisée ici ne soit pas corrélée à elle-même (Thomson, 1987). Or pour la turbulence, l'échelle de temps caractéristique en dessous de laquelle l'accélération est corrélée correspond à l'échelle de dissipation visqueuse de l'ECT,  $\tau_k$  (van Dop *et al.*, 1985). Ainsi une première condition, fixée par l'équation (III.24a), est que  $dt \gg \tau_k = (\nu^3 / \epsilon)^{1/4}$ .

Noter ici qu'une approche de type diffusif consisterait à considérer que la vitesse n'a pas de "mémoire", c'est à dire qu'elle n'est pas autocorrélée, ou encore que  $T_L$ , l'échelle de temps lagrangienne tend vers 0 (Tennekes, 1983; van Dop *et al.* 1985). Ceci se traduirait en terme d'EDS par une équation unique où  $du_i$  ne serait pas pris en compte, comme le montre Durbin (1983; 1984). C'est le cas de l'EDS d'un modèle de diffusion turbulente, qui est de forme générale (adapté de Durbin, 1984):

$$dx_i = q_i(x, t) dt + d_{ij}(x, t) d\Omega_j(t) \quad (III.25)$$

où  $q$  et  $d$  sont les équivalents de  $a$  et  $b$  dans (III.24a), et  $d\Omega_j(t)$ , l'équivalent de  $d\xi_j(t)$ . Nous verrons plus tard l'application pratique de cette équation.

### III.4.4 Equation de Fokker-Planck

Les équations différentielles stochastiques sont soumises à des lois de différentiations différentes du calcul fonctionnel habituel (Annexe A4; Soize, 1993). De plus, toute EDS est associée à une équation de Fokker-Planck (EFP), ou équation de Kolmogorov directe,

moyennant certaines conditions de régularité des fonctions  $a$  et  $b$ , c'est à dire qu'elles n'aient pas de croissance exponentielle en fonction de  $x$  ou  $u$  (rigoureusement, il faut que  $a$  et  $b$  soient uniformément lipschitziennes, voir Soize, 1993). L'EFP détermine l'évolution de la fdp de la particule dans l'espace des phases  $P(x, u, t)$  (Thomson, 1987) :

$$\frac{\partial P}{\partial t} = - \frac{\partial u_i P}{\partial x_i} - \frac{\partial a_i P}{\partial u_i} + \frac{\partial^2 B_{ij} P}{\partial u_i \partial u_j} \quad (III.26)$$

$$\text{avec } B_{ij} = \frac{1}{2} b_{ik} b_{jk} \quad (III.27)$$

où la sommation d'Einstein est appliquée pour les indices multiples. On retrouve une équation de conservation de  $P$  dans l'espace des phases : la variation de  $P$  au cours du temps, est égale à l'opposé de la divergence des flux advectifs dans les directions  $x_i$  et  $u_i$ , et diffusif avec comme coefficient de diffusion  $\frac{1}{2} b_{ik} b_{jk}$ . Par ailleurs, l'équation (III.26) est aussi vraie pour  $p(x, t/x_0, t_0)$ . L'EFP correspondant à l'EDS (III.25), est :

$$\frac{\partial p}{\partial t} = - \frac{\partial q_i p}{\partial x_i} + \frac{1}{2} \frac{\partial^2 d_{ik} d_{jk} p}{\partial x_i \partial x_j} \quad (III.28)$$

Noter qu'ici nous utilisons la fdp  $p(x, t/x_0, t_0)$ , et non  $P(x, u, t)$  car la formulation (III.25) ne fait pas intervenir la vitesse lagrangienne mais sa position uniquement. Nous avons posé le bases permettant de développer un modèle LS, il reste maintenant à déterminer les paramètres  $a$  et  $b$ , pour fermer complètement le modèle.

#### III.4.5 Estimation du paramètre de diffusion $b$ et matrice de "diffusion" $B$

Le paramètre  $b$  de l'équation (III.24a) correspond au terme d'accélération aléatoire de la particule, et est donc déterminé par la turbulence locale. Nous considérons ici la dispersion depuis une source située à  $(x_s, t_s)$ . Pour un écart de temps  $\Delta t$ , la fonction de structure lagrangienne  $D_{ij}$  est définie par (Thomson, 1987; Tennekes, 1983) :

$$D_{ij} = \overline{(u_i(t_s + \Delta t) - u_i(t_s)) (u_j(t_s + \Delta t) - u_j(t_s))} \quad (III.29)$$

D'après la théorie de Kolmogorov, pour des temps  $\Delta t$  tels que  $\tau_k \ll \Delta t \ll T_L$ , c'est à dire dans le sous domaine inertiel,  $D_{ij}$  ne dépend plus que du taux de dissipation visqueuse de l'ECT,  $\epsilon$  (Kovaszny, 1976).  $D_{ij}$  prend alors la forme (Tennekes, 1983) :

$$D_{ij} = \delta_{ij} C_0 \epsilon \Delta t \quad (III.30)$$

où  $C_0$  est une constante « universelle », dont la valeur varie de 2 à 6 selon les auteurs, et est voisine de  $3 \pm 0.5$  dans la CLS (voir Chapitre II, Tableau II.4). Comme le modèle de l'équation (III.24a) est valide pour  $dt \gg \tau_k$ , il devrait vérifier l'équation (III.30). Par ailleurs, le calcul de  $D_{ij}$  à partir des équations (III.24a) et (III.29) donne :

$$D_{ij} = 2 \overline{B_{ij}(t_s)} \Delta t + \overline{a_i(t_s) a_j(t_s)} \Delta t^2 \quad (III.31)$$

Noter qu'ici la moyenne d'ensemble  $\overline{\quad}$  est faite sur toutes les trajectoires fluides au point

$(x_s, t_s)$ . En comparant les équations (III.30) et (III.31), on trouve qu'avec une bonne approximation, puisque  $\Delta t$  est très petit,  $\overline{B_{ij}}$  est déterminé par :

$$2 \overline{B_{ij}} = \delta_{ij} C_o \varepsilon \quad (III.32)$$

Noter qu'ici,  $\overline{a_i(t) a_j(t)}$  ne peut être de l'ordre de  $1/\Delta t$  car sinon cela signifierait une accélération qui tend vers l'infini quand  $\Delta t$  tend vers 0. Cette hypothèse de fermeture - car il s'agit bien d'une hypothèse puisque cette solution n'est pas unique -, initialement proposée par van Dop *et al.* (1985), puis repris par Thomson (1987), ne permet de déterminer  $B_{ij}$ , que moyennant d'autres hypothèses complémentaires, puisque l'équation (III.32) ne contraint que la moyenne de  $B_{ij}$ . Le choix le plus simple pour  $B$ , et qui est aujourd'hui systématiquement fait, consiste à prendre (Wilson et Sawford, 1996) :

$$2 B_{ij} = \delta_{ij} C_o \varepsilon \quad (III.33)$$

Toutefois Thomson (1987) fait remarquer que ce choix est arbitraire, et que  $B$  pourrait être une fonction, notamment de  $u(t)$  et de  $t$ . Une autre hypothèse est encore nécessaire pour déterminer  $b$  connaissant  $\beta$  : l'hypothèse d'isotropie locale, i.e.  $b_{ij} = b_{ji}$  et  $b_{ii} = b_{kk}$ , permet de déduire que  $b_{ij}$  :

$$b_{ij} = \delta_{ij} \sqrt{C_o \varepsilon} \quad (III.34)$$

Pour résumer, l'expression (III.34) donnant  $b_{ij}$  est obtenue moyennant plusieurs hypothèses; qui sont : (i)  $\overline{B}$  est déterminé par la structure de la turbulence dans la zone inertielle (Eqn. III.32), (ii)  $B$  est indépendant de  $u$ , et ne dépend de  $t$  qu'à travers  $\varepsilon(x(t))$ , et (iii)  $b$  est supposé symétrique et  $b_{ii} = b_{kk}$ , ce qui exprime l'isotropie.

Si l'on suppose que la fonction d'autocorrélation de la vitesse est de la forme exponentielle, et que de plus on intègre la définition de l'échelle intégrale de temps lagrangienne pour la composante  $u_i$  de la vitesse  $T_{Li}$  (Eqn. II.21), le coefficient d'autocorrélation lagrangien s'écrit  $\rho_{Lii}(\tau)$  :

$$\rho_{Lii}(\tau) = \exp(-\tau/T_{Li}) \quad (III.35)$$

D'autre part, le coefficient d'autocorrélation est relié à  $D_{ij}$  par (Tennekes, 1983) :

$$D_{ii} = 2\sigma_{ui}^2(1 - \rho_L(\tau)) \quad (III.36)$$

où  $\sigma_{ui}$  est l'écart-type de la vitesse eulérienne  $u_{Ei}$ . En combinant (III.35) et (III.36), on montre que, pour un  $\tau$  très petit :

$$\varepsilon = \frac{2\sigma_{ui}^2}{C_o T_{Li}} \quad (III.37)$$

Cette dernière relation permet de relier  $T_{Li}$  à  $C_o\varepsilon$ . Mais l'on voit que ce lien n'est justifié ici que pour des temps très petits, et que  $T_{Li}$  correspond à une échelle de temps de corrélation de la vitesse  $u_i$ , c'est à dire que  $T_{Li} = \{-(1/\rho) (d\rho/d\tau)\}^{-1}$ , (Sawford, 1985; Tennekes, 1983).

### III.4.6 Estimation du paramètre de dérive $a$ - critère d'entropie

$B$  étant connu,  $a$  est déterminé grâce au critère d'entropie de Thomson (1987). Celui-ci stipule que "si les particules sont initialement réparties de façon homogène dans l'espace des phases, elles le restent". Nous appelons ce critère, critère d'entropie, car il rappelle le 3<sup>o</sup> principe de la thermodynamique. En effet, si les particules sont réparties de façon homogène à un instant  $t_0$ , elles sont dans le désordre, et le 3<sup>o</sup> principe nous dit qu'elles doivent le rester, donc qu'elles doivent à tout instant ultérieur être réparties de façon homogène.

Ce critère se traduit de façon simple avec le formalisme développé par Thomson (1987); dire qu'initialement les particules sont réparties de façon homogènes dans l'espace des phases revient à dire que la fdp  $P(x,u,0)$  couvre uniformément la partie "physiquement réalisable" de cet espace. Or ce sous-ensemble physiquement réalisable n'est autre que  $P_a(x,u,t)$ . Donc une condition suffisante pour que le principe d'entropie soit réalisé est d'imposer que le modèle soit vrai pour  $P = P_a$ . Le critère se traduit donc par le fait que  $P_a$  soit solution de l'équation (III.26) ce qui, après quelques calculs, donne (Thomson, 1987) :

$$a_i P_a = \frac{\partial^2 B_{ij} P_a}{\partial u_j^2} + \phi_i(x,u,t) \quad (\text{III.38a})$$

$$\text{avec } \frac{\partial \phi_i}{\partial u_i} = - \frac{\partial P_a}{\partial t} - \frac{\partial u_i P_a}{\partial x_i} \quad (\text{III.38b})$$

où  $\phi(x,u,t)$  est une fonction déterminée par l'équation (III.38b). On voit qu'en une dimension, l'Eqn. III.38b donne une solution unique pour  $\phi$ . En revanche, en deux ou trois dimensions, cette équation n'a pas de solution unique, parce qu'elle possède deux ou trois inconnues  $\{\phi_i\}_{i=1,2,3}$ . En plus d'une dimension,  $a$  ne peut donc être défini qu'à un vecteur  $\phi$  près dont la divergence est déterminée par l'équation (III.38b) (Flesch et Wilson, 1992). Noter par ailleurs que la divergence de  $\phi$  ne dépend que de l'inhomogénéité et de la stationnarité de l'écoulement. Les différents choix du vecteur  $\phi$  vérifiant (III.38b), conduisent aux différents modèles de la littérature (Wilson et Flesch, 1997).

Il faut ajouter aux Eqns. III.38a,b une hypothèse sur le comportement asymptotique de  $\phi$ , afin délimiter les cas physiquement non réalisables. Thomson (1987) propose la condition suivante :

$$\phi \rightarrow 0 \text{ quand } \|u\| \rightarrow \infty \quad (\text{III.39})$$

Cette condition est relativement faible, et aucune information n'est donnée sur la façon dont  $\phi$  tends vers 0 lorsque  $\|u\|$  tend vers l'infini. La définition d'une ou plusieurs conditions plus contraignantes sur le comportement asymptotique de  $\phi$  pourrait être un moyen de contraindre un peu plus le modèle.

Les chapitres suivants détaillent les formulations de  $a$  qui ont été retenues,  $B$  étant fixé par l'Eqn. III.33. Les premiers modèles présentés, les plus simples, sont les modèles de

Thomson (1987). Ce sont également ceux qui ont été retenus dans notre modèle.

III.4.6.1 Modèle Gaussien à une dimension (Thomson, 1987)

Nous désignerons par modèle gaussien, un modèle déterminé à partir d'une fdp eulérienne qui possède la forme suivante :

$$P_a(u) = \frac{\langle \rho \rangle}{(2\pi^D \det V)^{1/2}} \exp(-1/2 (u_i - U_i) (V^{-1})_{ij} (u_j - U_j)) \quad (III.40)$$

où  $D$  est la « dimensionnalité » considérée (1, 2 ou 3),  $U$  est la valeur moyenne de  $u$ , et  $V_{ij} = \overline{(u_i - U_i)(u_j - U_j)}$ . Nous avons supposé ici que  $\rho$  est constant dans l'écoulement. Si seule la composante verticale de la vitesse est prise en compte, et que la moyenne de cette vitesse verticale est nulle, la fdp (Eqn. III.40) se réduit à :

$$P_a(w) = \frac{\rho}{\sqrt{2\pi} \sigma_w} \exp(-1/2 w^2 / \sigma_w^2) \quad (III.41)$$

où  $\sigma_w^2 = \overline{w^2}$  est la variance de la vitesse verticale eulérienne de l'air. En remplaçant (III.41) dans (III.38), on trouve pour  $a_w$  et  $\phi_w$  (adapté de Thomson, 1987) :

$$\frac{\phi_w}{P_a} = \frac{1}{2} \frac{\partial \sigma_w^2}{\partial z} + \frac{1}{2\sigma_w^2} \frac{\partial \sigma_w^2}{\partial t} w + \frac{1}{2\sigma_w^2} \frac{\partial \sigma_w^2}{\partial z} w^2 \quad (III.42a)$$

$$a_w = -\frac{B_{ww}}{\sigma_w^2} w + \frac{\phi_w}{P_a} \quad (III.42b)$$

Nous avons inclut ici les termes non stationnaires par souci de généralité. Il n'y a pas d'ambiguïté ici sur un éventuel terme constant ajouté à  $\phi_w$ , car la condition (III.39) l'interdit. En condition stationnaire, on obtient le modèle classique qui est le plus largement répandu dans la littérature (Wilson *et al.*, 1983; Thomson, 1984; Thomson, 1987; Wilson et Sawford, 1996) :

$$dw = \left( -\frac{1/2 C_o \epsilon}{\sigma_w^2} w + \frac{1}{2} \frac{\partial \sigma_w^2}{\partial z} \left( 1 + \frac{w^2}{\sigma_w^2} \right) \right) dt + \sqrt{C_o \epsilon} d\xi_w(t) \quad (III.43a)$$

$$dz = w dt \quad (III.43b)$$

III.4.6.2 Modèle Gaussien à deux dimensions de Thomson, (1987)

En deux dimensions, la fdp de l'équation (III.40) devient :

$$P_a(u, w) = \frac{\rho}{2\pi\sigma} \exp\left(-1/2 \frac{(u-U)^2 \sigma_w^2 + w^2 \sigma_u^2 - 2w(u-U) \overline{uw}}{\sigma^2}\right) \quad (III.44)$$

où  $\sigma^2 = \sigma_u^2 \sigma_w^2 - \overline{uw}^2$ ,  $\overline{uw}$  étant le flux de quantité de mouvement. L'expression de  $V^{-1}$  devient alors :

$$V^I = \frac{1}{\sigma^2} \begin{pmatrix} \sigma_w^2 & -\overline{uw} \\ -\overline{uw} & \sigma_u^2 \end{pmatrix} \quad (\text{III.45})$$

Il faut alors choisir une expression pour  $\phi_u$  et  $\phi_w$ . Nous avons donné ici l'expression proposée par Thomson (1987), qui correspond à une accélération qui en moyenne préserve la direction du vecteur vitesse lagrangien (Wilson et Flesch, 1997) :

$$\frac{\phi_u}{P_a} = \frac{1}{2} \frac{\partial \overline{uw}}{\partial z} + w \frac{\partial U}{\partial z} + \frac{1}{2\sigma^2} \times \left( (u-U) w \left( \sigma_w^2 \frac{\partial \sigma_u^2}{\partial t} - \overline{uw} \frac{\partial \overline{uw}}{\partial z} \right) + w^2 \left( \sigma_u^2 \frac{\partial \overline{uw}}{\partial z} - \overline{uw} \frac{\partial \sigma_u^2}{\partial z} \right) \right) \quad (\text{III.46a})$$

$$\frac{\phi_w}{P_a} = \frac{1}{2} \frac{\partial \sigma_w^2}{\partial z} + \frac{1}{2\sigma^2} \times \left( (u-U) w \left( \sigma_w^2 \frac{\partial \overline{uw}}{\partial z} - \overline{uw} \frac{\partial \sigma_w^2}{\partial z} \right) + w^2 \left( \sigma_u^2 \frac{\partial \sigma_w^2}{\partial t} - \overline{uw} \frac{\partial \overline{uw}}{\partial z} \right) \right) \quad (\text{III.46b})$$

$$a_u = -\frac{B_{uu}}{\sigma^2} [\sigma_w^2 (u-U) - w \overline{uw}] + \frac{\phi_u}{P_a} \quad (\text{III.46c})$$

$$a_w = -\frac{B_{ww}}{\sigma^2} [\sigma_u^2 w - (u-U) \overline{uw}] + \frac{\phi_w}{P_a} \quad (\text{III.46d})$$

Wilson et Flesch (1997) suggèrent que les modèles LS les plus fiables, sont ceux qui préservent ainsi la direction du vecteur fluctuation de vitesse  $(u-U)$ . D'autres modèles (Reynolds, 1998a) donnent à  $\phi$  une direction privilégiée, et Wilson et Flesch (1997) montrent que ces modèles donnent lieu à des trajectoires possédant des "spirales", ce qui diminue le coefficient de dispersion efficace. Wilson et Flesch (1997) proposent un critère supplémentaire pour réduire l'indétermination sur  $\phi$ , qui consiste à ne choisir que les modèles qui conduisent à des trajectoires "sans spirales". Ils ne donnent toutefois pas de moyen d'évaluer si un modèle vérifie ce critère.

Reynolds (1998a) montre quant à lui que dans l'ensemble, les modèles gaussiens et quadratiques en vitesse, c'est à dire dont  $\phi$  est une fonction quadratique de  $u$  qui satisfont le critère d'entropie, ont une forme universelle où  $\phi$  ne dépend uniquement que de deux constantes  $C_1$  et  $C_2$ . Il montre par ailleurs, par comparaison avec les mesures de Legg *et al.* (1986), qu'une classe optimale de modèle correspondrait à  $-0.5 < C_1 < 1$ , et  $C_2 \approx 0$ , et que le modèle de Thomson (1987) en fait partie.

### III.4.7 Modélisation stochastique de l'équation de diffusion turbulente

La comparaison de l'Eqn. III.28, avec l'équation de diffusion turbulente dans la CLS, en conditions d'advection (en négligeant la diffusion horizontale devant l'advection) permet de définir les coefficients  $q_x$ ,  $q_z$  et  $d_z$ , ce qui donne comme EDS (généralisation de Durbin,

1984) :

$$dz = \frac{\partial K_z}{\partial z} dt + \sqrt{2K_z} d\Omega_z(t) \quad (\text{III.47a})$$

$$dx = U dt \quad (\text{III.48b})$$

Cette équation est strictement équivalente à l'équation de diffusion turbulente dans la CLS.

#### III.4.8 Conditions aux limites - schéma d'intégration numérique

Le choix du schéma d'intégration numérique et des conditions aux limites est important, et il peut conduire à des biais importants (Wilson et Flesch, 1993). Nous supposons dans notre modèle une réflexion totale, i.e.  $u$  et  $w$  sont tous deux réfléchis, qui ne viole pas le critère d'entropie, uniquement si  $P_a$  est gaussien. En pratique, la réflexion est appliquée lorsque la particule atteint le sol. Sa nouvelle position est calculée comme le réfléchi de la position actuelle étant donné sa vitesse. En résumé, nous prenons :

$$z^+ = 2z_b - z^- + |w^- \Delta t| \quad (\text{III.48a})$$

$$x^+ = x^- + |u^- \Delta t| \quad (\text{III.48b})$$

$$u^+ = -u^- \quad (\text{III.48c})$$

$$w^+ = -w^- \quad (\text{III.48d})$$

où les exposants + et - correspondent respectivement aux variables avant réflexion et après,  $z_b$  est la hauteur du sol, et  $\Delta t$  est le pas de temps.

Wilson et Flesch (1993) conseillent l'utilisation d'un schéma d'intégration implicite. Dans un tel schéma, les paramètres  $a(x, u, t_n)$  et  $b(x, t_n)$  sont estimés au temps  $t_{n+1}$ , alors que dans les modèles explicites, ils sont évalués au temps  $t_n$ . Nous avons vu dans la section §III.4.5, que les modèles LS nécessitent que le pas de temps  $\Delta t$  soit compris dans les limites suivantes  $\tau_k \ll \Delta t \ll T_L$ . L'idéal serait de fixer  $\Delta t$  à une valeur minimale pour l'ensemble de la CLS. Cela serait toutefois trop coûteux en temps de calcul, car  $\Delta t$  serait alors très petit afin de satisfaire l'inégalité très près de la surface.  $\Delta t$  est donc fixé comme une fraction de  $T_L$  :  $\Delta t = \mu T_L$ , avec  $\mu \leq 0.1$  (Thomson, 1987).

Or nous avons vu que  $T_L$  était proportionnel à l'altitude dans la CLS. donc  $\Delta t$  varie également avec l'altitude. Wilson et Flesch (1993) ont montré que cette variation de  $\Delta t$  engendrait un biais systématique matérialisé par une vitesse additionnelle de la particule de la forme :

$$w_B = -\alpha \mu b_2 \sigma_w \quad (\text{III.49})$$

où  $\alpha$  est une constante, et  $b_2$  est défini dans l'Eqn. II.25. Cette vitesse additionnelle négative entraîne une surestimation systématique de la concentration de surface.

On peut généraliser le résultat de Wilson et Flesch (1993) à l'ensemble des paramètres du modèle LS. C'est à dire que toute variabilité spatiale de  $\sigma_u$ ,  $\sigma_w$ ,  $\bar{u}$ ,  $T_{Lu}$ ,  $T_{Lw}$  entraîne un biais

du modèle. Ce biais est en réalité lié à la discrétisation du modèle. Il faut en effet souligner que ce n'est pas parce que le modèle est stochastique qu'il n'existe pas d'erreur d'intégration numérique.

Nous avons donc choisi un schéma d'intégration semi-implicite, ou schéma "prédicteur-correcteur". Dans ce schéma, les paramètres qui dépendent de la position  $x$ , sont tous estimés à la position intermédiaire  $x_{n+1/2} = [x(t_n) + x^*(t_{n+1})] / 2$ . Cette position est estimée en calculant avec un modèle explicite la position  $x^*(t_{n+1})$  au temps  $t_{n+1}$ . C'est l'étape de prédiction. le calcul des paramètres à la position  $x_{n+1/2}$  correspond à l'étape de correction. Cette procédure permet d'éviter la surestimation de la concentration de surface, comme le montre la Figure III.2.

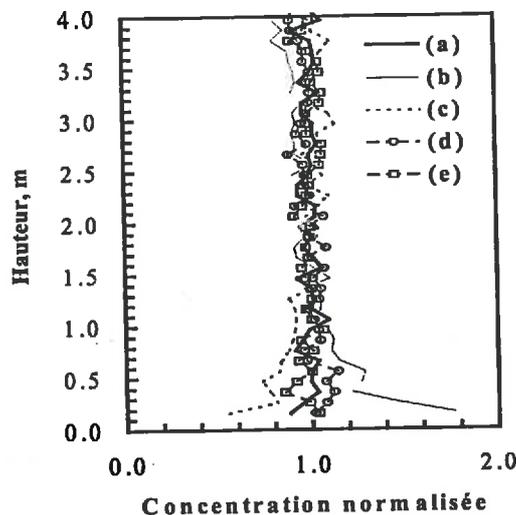


Figure III.2. Profil de concentration pour une source verticale homogène  $S = \overline{UC}$  et  $C = 1$ , avec réflexion totale en haut et en bas du domaine, dans la CLS, en conditions neutres. Comparaison de différents schémas d'intégration numérique. (a), schéma explicite,  $\Delta t = 0.025 T_L$ ; (b), schéma explicite,  $\Delta t = 0.025 T_L$ ; (c), schéma implicite,  $\Delta t = 0.025 T_L$ ; (d), schéma semi-implicite  $s1$ ,  $\Delta t = 0.025 T_L$ ; (e), schéma semi-implicite  $s2$ ,  $\Delta t = 0.001 T_L$ .

### III.4.9 Paramétrisation de l'écoulement turbulent

La paramétrisation que nous présentons ici est principalement adaptée au maïs pour lequel nous possédons des données expérimentales qui permettront de valider le modèle. Les paramétrisations des profils de vitesse moyenne et d'écart-type des composantes verticales et horizontales du vent ont été choisies en rapport avec les discussions du Chapitre II.

#### III.4.9.1 Profil de vitesse moyenne

En ce qui concerne la vitesse moyenne du vent, le profil est basé sur les Eqns. II.16a,b au-dessus du couvert et l'Eqn. II.37 dans le couvert, que nous reprenons ici :

$$\bar{U}(z) = \begin{cases} \bar{U}(h) \exp\{\zeta(z-h)\} & z \leq h_u \\ \frac{u_*}{k} \left\{ \ln\left(\frac{z-d}{z_0}\right) - \Psi_m((z-d)/L) + \Psi_m(z_0/L) \right\} & h_u \leq z \end{cases} \quad (III.50)$$

On rappelle que  $\zeta$  est le coefficient d'extinction de la vitesse moyenne du vent dans le couvert. Les deux profils sont ajustés selon une méthode adaptée de celle décrite dans le chapitre II (Legg et Raupach, 1982). En effet, Legg et Raupach (1982) proposent de relier les profils au-dessus et dans le couvert, en forçant la continuité de  $U$  et de  $\partial U / \partial z$  en  $z = h$ , ce qui conduit à l'Eqn. II.38. Cette méthode conduit à fixer  $\zeta$  qui est un paramètre déterminant du profil dans le couvert (Massman, 1996). Ceci ne paraît pas réaliste, et il semble préférable de fixer la hauteur  $h_u$  à laquelle ces deux profils s'interceptent,  $\zeta$  étant lui fixé à partir des profils mesurés. En vertu de l'Eqn. II.38,  $h_u$  est tel que :

$$\frac{h_u - d}{h_u} \ln\left(\frac{h_u - d}{z_0}\right) = \frac{1}{\zeta} \quad (III.51)$$

Cette dernière équation se résout numériquement. La Figure III.3 montre la variation de  $h_u$  en fonction de  $\zeta$ , pour des valeurs courantes de  $\zeta$ . On note sur la Figure III.3 que lorsque  $\zeta$  varie de 3 à 4,  $h_u$  est quasiment confondu avec la hauteur du couvert. Il est intéressant de constater (calculs non exposés ici) qu'il n'y a quasiment aucune variabilité de  $h_u/h$  lorsque  $h$  varie.

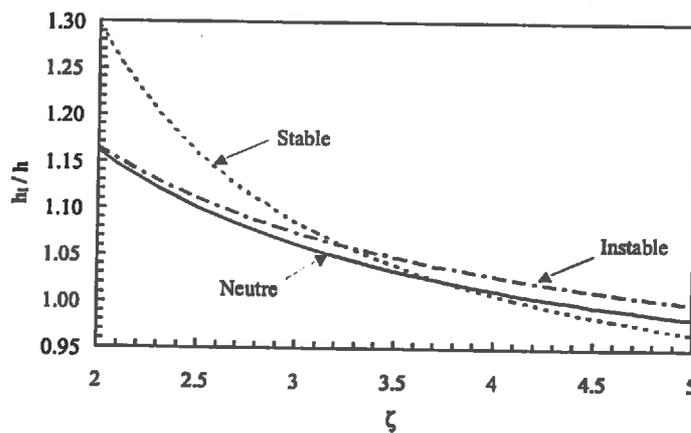


Figure III.3. Variation de  $h_u/h$  en fonction de  $\zeta$ , d'après les Eqns. III.51 et III.52 pour différent cas de stabilité; *Stable*,  $L = 5$ ; *Instable*,  $L = -5$ ; et *Neutre*,  $L = \infty$ . Estimations obtenues en posant  $d/h = 0.75$ , et  $z_0/h = 0.1$ .

Le résultat de la Figure III.3, est en accord avec les mesures qui montrent que le point d'inflexion du profil de vent, qui correspond à la hauteur d'interception, est en général situé au-dessus du couvert ( $h_u/h > 1$ ) mais très proche de celui-ci (Massman et Weil, 1999). L'Eqn. III.51 traite du cas neutre. En conditions non neutres, il faut introduire les fonction de correction de Dyer et Hicks (Kaimal et Finnigan, 1994) dans le profil de vent logarithmique, cela donne alors :

$$\frac{h_u}{h_u - d} \phi_m \left( \frac{h_u - d}{L} \right) = \zeta \times \left( \ln \left( \frac{h_u - d}{z_0} \right) - \psi_m \left( \frac{h_u - d}{L} \right) \right) \quad (III.52)$$

où les fonctions  $\phi_m$  et  $\psi_m$  ont été introduites dans les Eqns. II.14 et II.16b. La solution de l'équation (III.52) dans un cas stable et instable a été reporté sur la Figure III.3, où l'on voit que l'effet sur  $h_u/h$  serait plus important en conditions stables qu'instables. Toutefois, l'effet de la stratification sur le profil de vent dans le couvert n'est pas pris en compte ici, et que probablement,  $\zeta$  en serait altéré. Les données de Oliver (1975) semblent en effet montrer que le rapport de la vitesse du vent dans le couvert sur celle au-dessus augmente avec l'instabilité, ce qui signifierait que  $\zeta$  diminue. Par ailleurs, il est intéressant de constater que pour  $\zeta = 3.5$ , qui est une valeur courante pour le maïs, la stratification a peu d'effet (de l'ordre de 2% ; Figure III.3) sur la hauteur d'interception  $h_u/h$ , et peut donc être négligée.

Le profil de vitesse moyenne du vent ne tend pas vers 0 à proximité du sol. Ceci pourrait avoir des implications sur les simulations, surtout si certaines sources ou puits se situent au niveau du sol, ce qui est parfois le cas pour l'ammoniac (feuilles sénescentes, volatilisation). Toutefois, comme le notent Wilson et Flesch (1993), près du sol, le profil n'est pas aisément mesurable (dimensions des capteurs, incertitude statistique liée l'intermittence), et est donc souvent défini *a priori*, comme un profil de loi de paroi (par exemple Liu *et al.*, 1996). Le fait que le profil de vitesse tende vers 0 à la surface peut également entraîner des problèmes numériques, car une particule dont la vitesse tend vers 0 met un temps infini à se déplacer et reste donc bloquée au niveau du sol. Ainsi, par simplicité, le profil ne tend pas vers 0 au niveau du sol, mais l'effet potentiel est évalué dans une étude de sensibilité présentée dans le chapitre VI.

#### III.4.9.2 Profil d'écart-type de la vitesse

Les profils de  $\sigma_w$  et  $\sigma_u$  dans le couvert sont de forme exponentielle, comme le suggèrent Aylor *et al.* (1993). Par ailleurs, comme le montrent les simulations de Massman et Weil (1999),  $\sigma_w(0)/u_*$  augmente exponentiellement avec le LAI (cf. §II.2.2). La combinaison de ces deux lois (Aylor *et al.*, 1993 ; Massman et Weil, 1999) conduit, dans le couvert, à un profil de la forme :

$$\frac{\sigma_{u,w}}{u_*} = b_{u,w} \phi_{u,w}(h) \exp \left( 0.6 \text{ LAI} \left( \frac{z}{h} - 1 \right) \right) \quad (III.53a)$$

où  $b_{u,w}$  est la valeur du facteur  $\sigma_{u,w}/u_*$  dans la CLS, en conditions neutres, c'est à dire respectivement 2.4 et 1.3 pour  $\sigma_u$  et  $\sigma_w$  (Tableau II.7).  $\phi_{u,w}$  est la fonction de correction en fonction de la stabilité, qui dépend de nombreux facteurs qui n'ont pas été notés ici par souci de clarté. Le facteur 0.6 LAI dans l'exponentielle est égal à 2.4 pour un LAI de 4, alors que Aylor *et al.* (1993), pour un LAI de l'ordre de 4, obtiennent un facteur de l'ordre de 2.5. Ici, en conditions neutres,  $\sigma_{u,w}(0)$  est légèrement surestimé par rapport aux mesures de Aylor *et al.* (1993), mais est comparable aux mesures de Wilson *et al.* (1982) dans du maïs (Tableau II.7).

Ce profil exponentiel s'étend entre  $z/h = 0$ , et  $z/h \approx 0.8$ , comme le suggèrent Leuning *et al.* (1999), ou bien les mesures de Nemitz *et al.* (1998). Afin de garder une marge de manœuvre, le paramètre  $h_{u,w1}$  fixe la hauteur jusqu'à laquelle le profil de  $\sigma_{u,w}$  suit la loi (III.53a).

Au-dessus du couvert, le profil de  $\sigma_{u,w}$  dépend de l'état de stratification de l'atmosphère à travers  $\phi_{u,w}(z)$ . Par ailleurs, étant donné que les dérivées de  $\sigma_u$  et  $\sigma_w$  par rapport à  $z$  sont nécessaires, il convient d'utiliser une fonction  $\sigma_{u,w}(z)$  continue et de dérivée continue. Ainsi, entre  $z = h_{u,w1}$  et le profil développé au-dessus, un polynôme de degré deux est utilisé, qui permet de satisfaire ces conditions de continuité, ce qui nous donne :

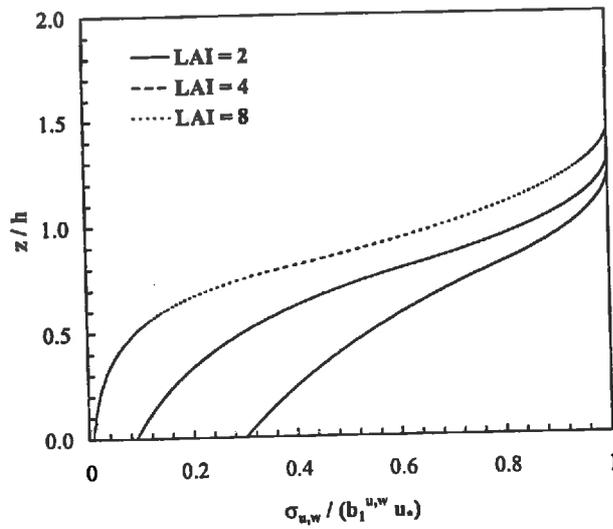
$$\frac{\sigma_{u,w}(z)}{u_*} = b_{u,w} \phi_{u,w}(z) \quad h_{u,w2} \leq z \quad (\text{III.53b})$$

$$\frac{\sigma_{u,w}(z)}{u_*} = \alpha_2 z^2 + \alpha_1 z + \alpha_0 \quad h_{u,w1} \leq z \leq h_{u,w2} \quad (\text{III.53c})$$

où les  $\alpha_i$  sont les coefficients du polynôme, et  $h_{u,w2}$  est la hauteur jusqu'à laquelle le profil transitoire (Eqn. III.53c) est défini. Les paramètres  $\alpha_i$ , et  $h_{u,w2}$  sont déterminés en forçant la continuité des profils et de leurs dérivées. En pratique, les  $\alpha_i$  sont exprimés comme des fonctions de  $h_{w2}$  par résolution d'un système de trois équations à trois inconnues, puis  $c_i$  est obtenu par une méthode numérique (dichotomie). Le système d'équation est donné ci-après :

$$\left\{ \begin{array}{l} \alpha_2 = \frac{s_1' - s_2'}{2(h_1 - h_2)} \\ \alpha_1 = \frac{-2 h_2 s_1' + 2 h_1 s_2'}{2(h_1 - h_2)} \\ \alpha_0 = \frac{2(h_1 - h_2) s_1 - h_1 (h_1 - 2 h_2) s_1' - h_1^2 s_2'}{2(h_1 - h_2)} \\ a_2 h_2^2 + a_1 h_2 + a_0 - 2 s_2 (h_1 - h_2) = 0 \end{array} \right. \quad (\text{III.54})$$

où  $s_1$  et  $s_2$  correspondent aux expressions de  $\sigma_{u,w}$  des équations (III.53a) et (III.53c) respectivement, et  $h_1 = h_{u,w1}$ , et  $h_2 = h_{u,w2}$ . Un « ' » dénote une dérivée par rapport à  $z$ . En général,  $h_{u,w2}$  est de l'ordre de 1.2 à 1.4. La Figure III.4 montre les profils de  $\sigma_u$  et  $\sigma_w$ , pour différents LAI.



**Figure III.4.** Profils normalisés d'écart-types des composantes horizontales et verticales de la vitesse du vent,  $\sigma_u / (b_u u_s)$  et  $\sigma_w / (b_w u_s)$ , dans le couvert, pour différentes valeurs de  $LAI$ . Les profils correspondent aux Eqns. III.53a,b,c.

Parmi toutes les formulations existantes (Tableau II.2), nous avons choisi une expression de  $\phi_{u,w}$  en condition instable (et neutre) et une en condition stable.  $\phi_w$  vérifie les similitudes de couche limite de surface de Monin et Obukhov (Kaimal et Finnigan, 1994) et ne dépend que de  $(z-d)/L$ . En revanche,  $\phi_u$  dépend des paramètres d'échelle de la CLA. Nous retenons les formulations de Flesch et Wilson (1995) pour  $\phi_w$  en conditions instables, et les formulations de Kaimal et Finnigan (1994) pour  $\phi_w$  en conditions stables. Etant donné que  $\phi_u$  dépend essentiellement de la hauteur de la CLA, nous avons choisi dans un premier temps de garder une paramétrisation simple de  $\phi_u$ , afin de ne pas complexifier le modèle :

$$\phi_w = \begin{cases} (1 - 3(z-d)/L)^{1/3} & -2 \leq (z-d)/L \leq 0 \\ (1 + 0.2(z-d)/L) & 0 \leq (z-d)/L \leq 1 \end{cases} \quad (III.55)$$

$$\phi_u = 1 \quad (III.56)$$

De la même façon que pour le profil de vitesse moyenne, l'effet potentiel d'une décroissance vers 0 de  $\sigma_{u,w}$  à la surface est évalué dans l'étude de sensibilité. La Figure III.5 illustre l'effet de la stratification stable et instable sur les profils de  $\overline{U}$ ,  $\sigma_u$  et  $\sigma_w$ .

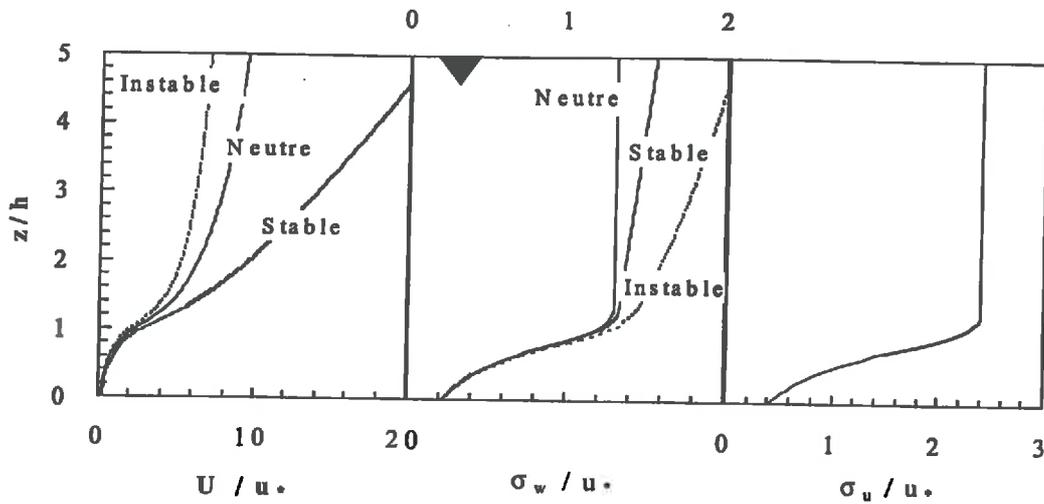


Figure III.5. Profils normalisés de vitesse moyenne et d'écart-types des composantes horizontales et verticales de la vitesse du vent, pour différents états de stratification de l'atmosphère. Stable,  $L = 10$  m; Neutre,  $L = -10^5$  m; Instable,  $L = -10$  m.  $\zeta = 3$ ,  $LAI = 3$ , et  $h_{wl} / h = 0.8$ .

#### III.4.9.3 Profils de tension de frottement

La tension de frottement  $\overline{u'w'}$  est constante et égale à  $-u_*^2$  au-dessus du couvert végétal (Kaimal et Finnigan, 1994). Dans le couvert, la tension de frottement diminue à mesure que le couvert végétal absorbe la quantité de mouvement par traînée sur les éléments de feuillage. En reprenant l'approche du paragraphe précédent, nous avons découpé le profil de  $\overline{u'w'}$  en trois parties : décroissance de  $\overline{u'w'}$  dans le couvert pour  $z \leq h_{u*1}$ ,  $\overline{u'w'}$  constant au-dessus du couvert  $z \geq h_{u*2}$ , et entre les deux, nous utilisons comme précédemment, un polynôme de raccordement du second degré.

En se basant sur les mesures de Raupach *et al.* (1996), et les développements théoriques de Massman (1996), et Massman et Weil (1999), nous avons choisi une décroissance de type exponentielle pour  $\overline{u'w'}$  dans le couvert. En supposant que le coefficient de frottement  $C_d$  est constant dans le couvert, et en supposant de plus que le facteur "d'interférence" pour la quantité de mouvement est constant et égal à 1, l'expression de Massman et Weil (1999) devient, pour  $z \leq h_{u*1}$  :

$$\overline{u'w'} = -u_*^2 \exp\left\{C_d LAI \frac{U_h^2}{u_*^2} \left(\frac{z}{h} - 1\right)\right\} \quad z \leq h_{u*1} \quad (\text{III.57})$$

où  $C_d$  est fixé, et typiquement de l'ordre de 0.2 (Massman, 1996),  $U_h$  est la vitesse du vent à la hauteur  $h$ , et  $h_{u*1}$  est la hauteur analogue à  $h_{u,w1}$ . Cette paramétrisation pourrait être utilisée telle quelle, mais il faut intégrer certaines conditions de stabilité du modèle stochastique (Eqns. III.46). En effet, les équations III.46 font intervenir au dénominateur  $\sigma^2 = \sigma_u^2 \sigma_w^2 - \overline{uw}^2$ , et il convient donc de s'assurer que  $\sigma^2$  est strictement positif en toutes circonstances, afin que le modèle ne diverge pas. Un corollaire est que le terme de corrélation  $\overline{uw} / \sigma_u \sigma_w$  soit toujours inférieur à 1 en valeur absolue, ce qui découle de la définition de  $\overline{uw}$ .

Tout d'abord, il est facile de voir que  $\sigma^2$  est strictement positif pour  $z \geq \max(h_{w2}, h_{u2}, h_{u*2})$ , puisque alors  $\sigma^2 = b_u^2 b_w^2 - 1 \geq 0$ . Pour  $z \leq \min(h_{w1}, h_{u1}, h_{u*1})$ , la condition impose que :

$$C_d \leq \frac{2 \times 0.6 u_*^2}{u_h^2} \quad (III.58)$$

Nous avons choisi de fixer  $C_d$  à la valeur maximale autorisée par l'équation (III.58). Bien que cette détermination de  $C_d$  soit arbitraire, et que nous avons conscience qu'elle demanderait à être améliorée, elle est toutefois qualitativement cohérente. En effet, elle indique que  $C_d$  varie de façon inversement proportionnelle à  $u_h^2 / u_*^2$ . Or, effets de stratification mis à part, plus ce rapport est grand, moins il y a de frottement dans le couvert. Nous obtenons donc en remplaçant  $C_d$  dans l'Eqn. III.57 :

$$\overline{u'w'} = -u_*^2 \exp\left\{1.2 LAI \left(\frac{z}{h} - 1\right)\right\} \quad z \leq h_{u*1} \quad (III.59)$$

Comme dans le paragraphe précédent,  $h_{u*1}$  est fixé tel que  $h_{u*1} / h = 0.8$ , et  $h_{u*2}$  est calculé de façon à résoudre le système d'équation équivalent à (III.54).

#### III.4.9.4 Profil d'échelle de temps lagrangienne $T_{Lw}$ et dissipation de l'ECT $\varepsilon$

La paramétrisation de  $T_{Lw}(z)$  ou de  $\varepsilon(z)$  est problématique. Tout d'abord parce que  $T_{Lw}$  n'est pas directement mesurable, et ensuite parce que l'expression de  $\varepsilon$  en fonction des paramètres du couvert n'est pas immédiate, si elle n'a été mesurée. Leur paramétrisation repose donc sur l'utilisation de critères de cohérence, pour que les expressions de  $T_{Lw}$  et  $\varepsilon$  soient en accord avec les profils de  $\sigma_{u,w}$ . Les critères utilisés sont les suivants (Du, 1997) :

$$T_{Lw} = \frac{2 \sigma_w^2}{C_0 \varepsilon} \quad (III.60a)$$

$$C_0 = 3.0 \pm 0.5 \quad (III.60b)$$

En revanche, la vérification asymptotique de l'équation de diffusion par le modèle lagrangien n'est pas retenue comme critère, car elle n'est pas compatible avec la valeur de  $C_0$  retenue ici, et celle de  $\sigma_w$  (Du, 1997 ; §II.1.8).  $\sigma_w$  est fixé à partir des Eqns. III.53a,b,c. Dans la CLS, la paramétrisation classique de  $\varepsilon$ , repose sur l'équilibre local entre production et destruction d'ECT (voir par exemple Kaimal et Finnigan, 1994) :

$$\varepsilon = \frac{u_*^3}{k(z-d)} \phi_\varepsilon\{(z-d)/L\} \quad h_\varepsilon < z \quad (III.61)$$

où  $h_\varepsilon$  est la hauteur au-dessus de laquelle l'expression dans la CLS est valable, et  $\phi_\varepsilon$  est une fonction de correction de stabilité (équation II.29). Dans un premier temps,  $T_{Lw}$  est supposé constant dans le couvert, et  $\varepsilon$  est déduit de (III.60a). Les mesures des pics spectral d'énergie (Raupach *et al.*, 1986 ; Nemitz *et al.*, 1998), et d'échelle intégrale de longueur (Raupach *et al.*, 1986), indiquent que  $T_{Lw}$  serait en effet constant dans le couvert végétal. En se basant sur les

travaux de Raupach *et al.* (1996), ou d'autres auteurs (Legg et Raupach, 1982)  $T_{Lw}$  est donc déterminé par :

$$T_{Lw} = b_3 \frac{h}{u_*} \quad (III.62)$$

avec  $b_3$  qui est une constante variant entre 0.2 et 0.5 (Raupach *et al.*, 1996). Une fois le paramètre  $b_3$  fixé, la hauteur  $h_\varepsilon$  d'interception des profils de  $\varepsilon$  définis par la combinaison des Eqns III.60 et III.62 dans le couvert, et de l'Eqn. III.61 dans la CLS, peut être déterminée. Ceci conduit à l'estimation de  $h_\varepsilon$  par résolution de l'équation suivante :

$$h_\varepsilon = \frac{b_3 C_0 h}{2 k b_w^2} \frac{\phi_\varepsilon(h_\varepsilon)}{\phi_w^2(h_\varepsilon)} + d \quad (III.63)$$

En conditions non neutres, cette équation est résolue numériquement. En conditions neutres, avec  $b_3 = 0.5$  et  $b_w = 1.3$ ,  $h_\varepsilon/h$  est de l'ordre de 1.8. Il est intéressant de constater que  $h_\varepsilon$  est comparable à  $z_*$ , la hauteur de la couche de rugosité (Cellier et Brunet, 1992). La Figure III.6, montre les profils de  $\varepsilon$  et  $T_{Lw}$  obtenus par cette méthode, dans différentes conditions de stabilité.

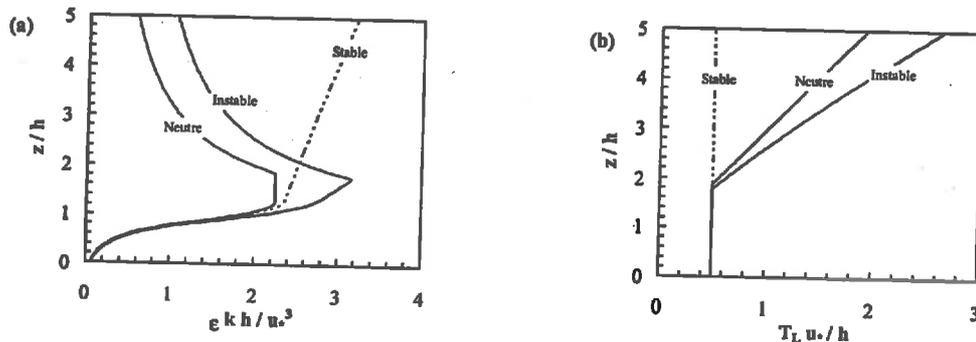


Figure III.6. Profils normalisés de dissipation d'ECT,  $\varepsilon h / u_*^3$ , et d'échelle de temps lagrangienne de la vitesse verticale  $T_{Lw} h / u_*$ , dans et au-dessus du couvert, pour différents états de stratification. LAI = 4; Stable,  $L = 10$  m; Neutre,  $L = -10^5$  m; Instable,  $L = -10$  m.  $\zeta = 3$ , LAI = 3, et  $h_{wl} / h = 0.8$ .

#### III.4.9.5 Prise en compte de la dissipation par frottement sur le couvert

Comme il a été noté au chapitre II, dans le couvert, un deuxième terme de dissipation par frottement existe. Ceci a comme conséquence de diminuer les échelles de temps associées, et donc l'échelle de temps lagrangienne. Par ailleurs, comme nous l'avons vu, c'est  $\varepsilon$  qui est utilisé dans la formulation moderne des modèles LS, et non pas  $T_{Lw}$ . En plus de la paramétrisation présentée ci-dessus, nous en avons donc également développé une autre basée sur  $\varepsilon_l$  et  $\varepsilon_d$  (cf. §II.2.4). Au-dessus du couvert,  $\varepsilon_d$  est nul, et  $\varepsilon_l$  est égal à l'expression donnée dans l'Eqn. II.45b. Dans le couvert, en se basant sur les travaux de Wilson (1988) d'une part qui donne une expression analytique de  $\varepsilon_l$ , et de Ayotte *et al.* (1999) d'autre part qui détermine une expression simplifiée de  $\varepsilon_d$ , nous obtenons (voir Tableau II.8, §II.2.4) :

$$\varepsilon_l = \frac{u_*^3 (e/e_h)^{3/2}}{kz} \quad z \geq h \quad (III.64a)$$

$$\varepsilon_d = 2 C_d a \overline{U} \left( \frac{\sigma_u^2}{2} + \frac{\overline{U}^2 \sigma_u^2 + \sigma_u^4 + \sigma_w^4 + 2 \overline{u'w'^2}}{\overline{U}^2} \right) \quad (III.64b)$$

où  $e$  est l'ECT à la hauteur  $z$ ,  $e_h$  est l'ECT à la hauteur  $h$ ,  $a$  est la densité de surface foliaire (2 faces). Ici le profil de  $\varepsilon(z)$  dans la CLS est utilisé jusqu'à la hauteur  $h$ .  $C_d$  est estimé comme pour  $\overline{u'w'}$  par la relation  $C_d = 1.2 u_*^2 / u_h^2$ . La Figure III.7 montre les profils obtenus avec cette méthode. Comme pour celle de Massman et Weil (1999), ce type de paramétrisation prédit des valeurs de  $\varepsilon$  trop grandes à  $z = h$ , et trop petites en milieu de couvert, comparées aux mesures. Au sommet du couvert, les valeurs de  $T_{Lw}$  sont comparables à ceux de la Figure III.6 et de Raupach (1988),  $T_{Lw} u_* / h = 0.3$  au sommet du couvert.

En revanche,  $T_{Lw}$  croit à nouveau à l'approche du sol, pour atteindre une valeur bien plus élevée, proche de 2. Ce type de profil n'est pas incohérent car il faut se rappeler que  $T_{Lw}$  n'est strictement défini que lorsque la turbulence est gaussienne. Or l'écoulement est de plus en plus intermittent, donc non gaussien, à mesure que l'on s'approche du sol. Pendant les périodes d'éjection, des structures cohérentes se développent dans le couvert avec des échelles de temps lagrangiennes bien plus grande que celles existantes dans les périodes de balayages qui sont moins fréquentes en bas du couvert qu'en haut (Collineau et Brunet, 1993).

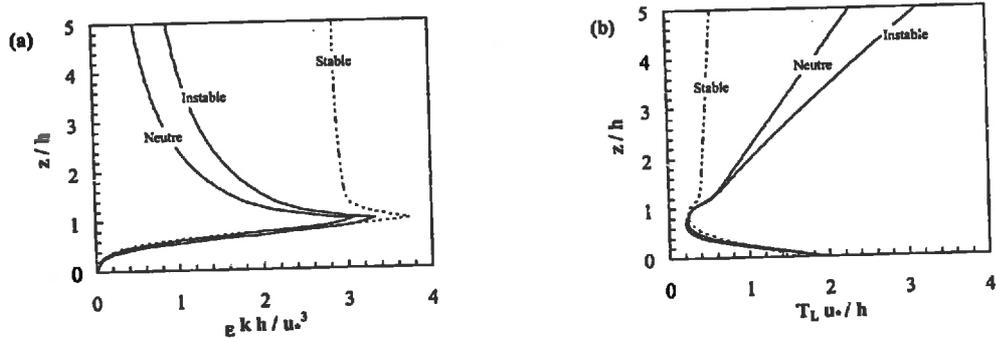


Figure III.7. Profils de  $\varepsilon$  et  $T_{Lw}$  normalisés, obtenus à partir des équations (III.64) en prenant en compte le terme de dissipation lié au feuillage  $\varepsilon_d$ . LAI = 4; Stable,  $L = 10$  m; Neutre,  $L = -10^5$  m; Instable,  $L = -10$  m.  $\zeta = 3$ , LAI = 3, et  $h_w / h = 0.8$ .

### III.4.10 Conclusions sur le modèle de dispersion

Nous avons vu que les fondements théoriques des modèles LS sont "simples", mais la complexité des expressions de  $\phi_i$  et les paramètres du modèle croissent rapidement lorsque l'on passe en 2 et 3 dimensions. Ainsi, en 3 dimensions, l'expression de  $\phi_u$  dans le modèle de Thomson (1987) contient 63 termes, et nécessite 9 variables d'entrée (Vecteur vitesse et les 6 termes indépendants du tenseur de Reynolds), et leurs 27 dérivées (Näslund *et al.*, 1994).

Ainsi la difficulté des modèles lagrangiens stochastiques réside dans (i) la détermination de leurs paramètres, et en particulier  $\varepsilon$ , et (ii) la complexité de l'application numérique en deux ou trois dimensions. Leur faiblesse conceptuelle, tient dans le fait qu'en plus de deux dimensions, ils ne sont pas "fermés", c'est à dire qu'il existe plusieurs solutions pour  $\phi$  dont seul le gradient dans l'espace des phases est spécifié. La recherche d'un critère de fermeture pour  $\phi$ , est aujourd'hui une priorité, à moins qu'il ne s'agisse de proposer une approche différente de celle de Thomson (1987).

### III.5 Modèle d'échange foliaire

Nous avons détaillé dans la partie précédente le modèle de dispersion qui permet d'estimer la concentration moyenne  $\langle c^v(x) \rangle$  dans un volume  $V_c$  situé en  $x$  due à  $N$  sources situées en  $x_o^n$ , de débit  $S_n(x_o^n)$  constant. Cette partie détaille la modélisation de ces termes sources  $S_n$  qui dépendent des paramètres du couvert, de la position dans le couvert, mais aussi de la concentration  $\langle c^v(x_o^n) \rangle$ . La partie suivante détaille le couplage du modèle de dispersion avec le modèle d'échange foliaire.

#### III.5.1 Choix du modèle d'échange foliaire

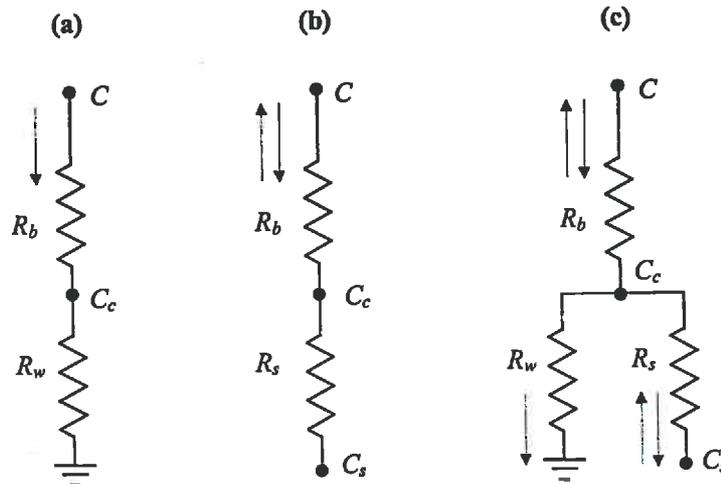
Le modèle d'échange au niveau de la végétation, utilise l'analogie avec un schéma électrique (Monteith et Unsworth, 1990; van der Hurk et McNaughton, 1995), c'est à dire qu'un flux  $F$  entre deux points est défini comme la différence de concentration moyenne  $C_2 - C_1$  divisé par la résistance  $R$  au transfert entre ces deux points. Pour simplifier les notations, la concentration moyenne  $\langle c^v(x) \rangle$  est notée  $C(x)$  ou  $C_i$ .

$$F = - \frac{C_2 - C_1}{R} \quad (III.65)$$

Par convention le flux est de signe opposé au gradient. Une majuscule est utilisée pour désigner une résistance par unité de surface du sol, et une minuscule pour une résistance par unité de surface de feuille. Le dépôt sec d'NH<sub>3</sub> est en réalité la somme de deux processus, qui sont l'échange stomatique d'une part, et le dépôt surfacique d'autre part (Sutton *et al.*, 1995). L'échange par voie stomatique est un processus de diffusion moléculaire contrôlé par la résistance stomatique  $r_s$ , et dépendant du point de compensation stomatique  $C_s$ . Ainsi,  $C_s$  permet de rendre compte des échanges bidirectionnels observés (Sutton *et al.*, 1994) : si  $C_s$  est supérieur à la concentration à l'extérieur de la feuille, il y a émission, sinon il y a dépôt.

La Figure III.8 montre trois modèles « d'échange » gazeux entre l'atmosphère et la feuille, parmi les plus simples. Le modèle (a) ne reproduit pas les échanges bidirectionnels d'NH<sub>3</sub>. Il n'est donc adapté à l'ammoniac que pour des sites naturels où  $C_s \sim 0$ . Le modèle (b) est un modèle d'échange bidirectionnel mais sans dépôt surfacique, et le (c) combine les deux aspects précédents. Noter que les modèles (a) et (b) sont des limites asymptotiques du modèle (c) respectivement lorsque  $R_s$  et  $R_w$  tendent vers 0. Remarquer que dans la Figure III.8, il n'y a

pas de résistance atmosphérique  $R_a$ , comme dans les modèles classiques qu'ils soient monocouche ou multicouches (Sutton *et al.*, 1995; Nemitz *et al.*, 1998). En effet,  $R_a$  est implicitement inclut dans le modèle de dispersion, et ne doit donc pas apparaître dans le modèle d'échange foliaire.



**Figure III.8.** Trois schémas de résistances pour modéliser les échanges plante-atmosphère. (a) N'autorise que du dépôt. (b) Simule les échanges bidirectionnels. (c) Autorise à la fois les échanges stomatiques bidirectionnels et le dépôt sur la surface des feuilles (cuticulaire). Les résistances  $R_b$ ,  $R_w$  et  $R_s$  sont exprimées par unité de surface de sol,  $C_c$  est le point de compensation, et  $C$  est la concentration moyenne dans l'air environnant la feuille.

Sur le principe, le modèle d'échange foliaire que nous avons retenu est celui représenté sur la Figure III.8c, mais en remplaçant les résistances par unité de surface de sol  $R$ , par des résistances par unité de surface de feuille  $r$ , pondérées par la densité volumique de surface de feuille  $a$ , en  $[\text{m}^2 \text{m}^{-3}]$ . En effet, nous cherchons à obtenir la densité de source  $S$ , en  $[\text{kg m}^{-3} \text{s}^{-1}]$ , dans un élément de volume du couvert. On voit que l'Eqn. III.65 devient alors :

$$S = -a \frac{C_2 - C_1}{r} \quad (\text{III.66})$$

Pour obtenir une densité de flux par unité de surface du sol, il faut multiplier  $S$  par  $\Delta z$ , la hauteur de l'élément de volume  $\Delta x \Delta y \Delta z$  considéré. La relation entre la résistance par unité de surface de sol dans l'élément de volume considéré ( $R^{\Delta z}$ ), et celle par unité de surface de feuille ( $r$ ) s'exprime simplement :

$$R^{\Delta z} = \frac{r}{a \Delta z} \quad (\text{III.67})$$

En appliquant ces conventions, le modèle de la Figure III.8c aboutit aux relations suivantes entre  $S$  et  $C$  :

$$S(x) = -a(x) \frac{C(x) - C_c(x)}{r_b(x)} = -a(x) \left[ \frac{C_c(x) - C_s(x)}{r_s(x)} + \frac{C_c(x)}{r_w(x)} \right] \quad (\text{III.68a})$$

D'où l'on déduit :

$$C_c(x) = \frac{C(x)/r_b(x) + C_s(x)/r_s(x)}{r_b^{-1} + r_s^{-1} + r_w^{-1}} \quad (\text{III.68b})$$

où  $C_c$  est une concentration analogue à la concentration de surface de la feuille. Cela donne pour  $S(x)$ , en remplaçant l'Eqn. III.68b dans l'Eqn. III.68a :

$$S(x) = -a(x) \frac{C(x)}{r_b(x)} \left( 1 - \frac{r(x)}{r_b(x)} \right) + a(x) \frac{C_s(x)}{r_b(x)} \frac{r(x)}{r_s(x)} \quad (\text{III.69a})$$

$$\text{avec } r = \frac{1}{r_b^{-1} + r_s^{-1} + r_w^{-1}} \quad (\text{III.69b})$$

Ici, toutes les variables sont exprimées en fonction de la position  $x$  ( $x, z$ ), car elles en dépendent. En effet, les résistances  $r_b$ ,  $r_s$  et  $r_w$ , le point de compensation stomatique  $C_s$ , ainsi que la densité volumique de surface foliaire  $a$  varient avec la hauteur dans le couvert, mais aussi horizontalement dans une zone hétérogène spatialement. L'expression de ces paramètres en fonction du type de couvert et du microclimat fait l'objet des paragraphes suivants.

Le modèle de la Figure III.8c formalisé dans les Eqns. III.69a,b est basé sur plusieurs hypothèses simplificatrices dont les bases physiques sont discutées dans le chapitre II, et qu'il n'est pas inutile de rappeler ici : (i) le dépôt d'NH<sub>3</sub> sur la surface des feuilles est supposé illimité, et la concentration de surface est supposée nulle. Certaines études montrent que le dépôt surfacique est en réalité bidirectionnel, et que la concentration de surface varie au cours d'un cycle diurne (Flécharde *et al.*, 1999). Toutefois, vu la complexité des interactions chimiques et de la physique des films d'eau à la surface des feuilles, il nous a paru souhaitable de garder une approche simplifiée dans un premier temps, tout en sachant qu'il est possible de complexifier le modèle ultérieurement. (ii) la présence d'autres gaz (H<sub>2</sub>O et CO<sub>2</sub> en particulier), dont les concentrations de surfaces et les gradients sont importants, n'est pas supposé influencer le transfert d'NH<sub>3</sub> dans la feuille, ce qui est justifié du fait de la très faible concentration molaire d'NH<sub>3</sub> dans la feuille (Chapitre II).

### III.5.2 Découplage des émissions et des dépôts

La méthode de couplage des modèles de dispersion et d'échange foliaire présentée dans la section §III.6, nécessite que la relation entre le terme source dans le couvert,  $S(x_o)$ , et la concentration moyenne  $C(x_o)$  soit linéaire. C'est pourquoi il est nécessaire de regrouper dans  $S(x_o)$ , d'un côté les termes sources qui ne dépendent pas de la concentration, et de l'autre les termes puits qui en dépendent. C'est ce que nous faisons dans l'Eqn. III.69. Ce regroupement consiste à séparer dans le flux net, les composantes positives et négatives.

Pour simplifier l'Eqn. III.69, nous introduisons deux résistances associées aux termes de dépôt ( $r_{dep}$ ) et aux termes d'émission ( $r_{em}$ ). Elles sont définies à partir de l'Eqn. (III.69). Après simplification, cela donne :

$$r_{dep} = r_b + \frac{r_s r_w}{r_s + r_w} \quad (\text{III.70a})$$

$$r_{em} = r_b + r_s + \frac{r_b r_s}{r_w} \quad (III.70b)$$

Logiquement, on voit que  $r_{dep}$  est la somme de  $r_b$  en série avec  $r_s$  et  $r_w$  en parallèles, et est donc la résistance équivalente de la Figure III.8c lorsque  $C_s = 0$ . De façon moins intuitive,  $r_{em}$  est la somme de trois résistances en séries, dont l'une s'exprime en fonction de  $r_b$ ,  $r_s$  et  $r_w$ . Asymptotiquement, lorsque  $r_w \rightarrow 0$ ,  $r_{dep} \rightarrow r_b$  et  $r_{em} \rightarrow \infty$ , il n'y a plus d'émissions, et la surface est totalement absorbante. De même, lorsque  $r_w \rightarrow \infty$ , le modèle " $C_s-R_w$ " (Fig. III.8c), se réduit au modèle de la Figure III.8b, et lorsque  $r_s \rightarrow \infty$ , il se réduit au modèle de la Figure III.8a.

À chaque voie d'échange correspond une densité de flux, qui est positive pour  $S_{em}$  et négative pour  $S_{dep}$ . La relation (III.69a) se simplifie :

$$S(x) = -a(x) \frac{C(x)}{r_{dep}(x)} + a(x) \frac{C_s(x)}{r_{em}(x)} = S_{dep} + S_{em} \quad (III.71)$$

### III.5.3 Paramétrisation des résistances et du point de compensation

Nous avons détaillé ci-dessus, la relation flux-concentration qui est utilisée dans le modèle. Elle fait intervenir trois résistances,  $r_b$ ,  $r_s$ ,  $r_w$ , la densité de surface de feuille  $a$ , et le point de compensation  $C_s$ . Ces paramètres sont essentiels puisqu'ils déterminent l'intensité et le sens des échanges d' $\text{NH}_3$  entre la plante et l'air environnant.

#### III.5.3.1 Résistance de couche limite de feuille $r_b$

Comme nous l'avons vu au chapitre II, la résistance de couche limite de feuille,  $r_b$ , est difficile à paramétrer, à cause de la complexité de l'écoulement dans le couvert végétal et sur la feuille elle-même, mais aussi de la difficulté de relier les paramétrisations obtenues en laboratoire aux conditions de plein champ. Nous avons malgré tout repris les paramétrisations classiques de  $r_b$ , et avons choisi en conditions de convection forcée la formulation de Landsberg et Powell (1973) qui est comparable aux autres formulations proposées dans la bibliographie (cf. §II.3.1 pour une discussion).

Les formulations de  $r_b$  dans les différentes conditions sont données dans le Tableau III.1. Dans le cas d'un régime d'écoulement mixte, entre libre et forcé,  $r_b$  peut être calculé comme le suggèrent Finnigan et Raupach (1987) et Monteith et Unsworth (1990), comme le minimum des formulations en régime forcé et libre. Les critères utilisés pour déterminer le régime d'écoulement sont le nombre de Reynolds critique  $Re_c$  qui sépare régime laminaire et turbulent, et le nombre de Grashof  $Gr$  (cf. §II.3.1). La correction proposée par Finnigan et Raupach (1987) pour tenir compte de la non-linéarité de  $r_b$  en fonction de  $U$  est aussi utilisée. Noter que dans le cas turbulent, un facteur 0.8 apparaît du fait de la relation II.62.

Tableau III.1. Résistance de couche limite de feuille pour l'ammoniac  $r_{b,NH_3}$  (20°C) en  $s\ m^{-1}$ , en fonction des différents régimes d'écoulement sur la feuille.  $d$  est taille caractéristique des feuilles (largeur), en m,  $U$  est la vitesse moyenne du vent en  $m\ s^{-1}$ ,  $T_a$  et  $T_s$  sont les températures de l'air et de la surface de la feuille, en K,  $p_a$  est la pression atmosphérique en kPa,  $e_{sat}(T)$  est la pression de vapeur saturante en kPa,  $HR$  est l'humidité relative (0-1). Les valeurs critiques de  $Gr$  et  $Re$  ont été reprises de Jacobs *et al.* (1994a).

$Gr \leq 0.1 Re^2$		$0.1 Re^2 \leq Gr \leq 16 Re^2$		$Gr \geq 16 Re^2$	
$Re < Re_c$	$Re > Re_c$	$Re < Re_c$	$Re > Re_c$	$Re < Re_c$	$Re > Re_c$
Forcé - laminaire <sup>1</sup>	Forcé - turbulent <sup>1</sup>	Mixte - laminaire	Mixte - turbulent	Libre - laminaire <sup>2</sup>	Libre - turbulent <sup>2</sup>
$\frac{297 (d/U)}{1 + 0.5 \sigma_u/U}$	$\frac{196 (d/U)}{1 + 0.8 \sigma_u/U}$	Min(libre, forcée)	min(libre, forcée)	$134 [\Delta\rho / \rho_a]^{-1/3}$	$203 [\Delta\rho / d \rho_a]^{-1/4}$

<sup>1</sup> Cette formulation tend vers la formulation classique quand  $U \gg \sigma_u$ . Lorsque  $\sigma_u \gg U$ , elle est proportionnelle à  $(d \times U)^X / \sigma_u$ , où  $X$  vaut respectivement 1/2 et 0.2 en laminaire et turbulent. <sup>2</sup> où  $\Delta\rho / \rho_a = \left| \frac{T_s - T_a}{T_a} + 0.378 (q_s - q_a) \right|$ .

Toutefois, parce que pour NH<sub>3</sub>,  $r_b$  peut jouer un rôle essentiel, lorsque le dépôt est cuticulaire, nous avons essayé d'affiner la paramétrisation du Tableau III.1, en cherchant à y intégrer l'effet de l'intermittence du vent. Comme les formulations utilisées sont associées à de fortes incertitudes, et parce que nous ne disposons pas de données de validation, nous avons essayé de garder une approche simple du problème.

L'idée développée est simple : la composante horizontale de la vitesse du vent est définie dans le modèle de dispersion par une fonction dont la densité de probabilité est gaussienne (Eqn. III.40). Par ailleurs, le seuil  $Gr = 16 Re^2$  (Jacobs *et al.*, 1994a) avec  $d$ ,  $T_a$ ,  $T_f$  et  $HR$  donnés, définit une vitesse critique  $u_{cF}$  correspondant à la transition entre régime forcé et régime mixte. De la même façon, il est possible de définir une vitesse critique  $u_{cL}$  qui marque le passage entre régime mixte et libre par la relation  $Gr = 0.1 Re^2$  (Jacobs *et al.*, 1994a).

La fonction de densité de probabilité du vent  $p(u)$  correspond à une fréquence d'apparition des vitesses  $u$ . Ainsi, pour une valeur seuil  $u_{crit}$ , la probabilité  $P(u \geq u_{crit})$ , qui est l'intégrale de  $p(u)$  pour  $u \geq u_{crit}$ , correspond à la fraction de temps pendant laquelle  $u$  est supérieur à  $u_{crit}$ . Nous avons développé une méthode qui consiste à calculer la résistance  $r_b$  comme la combinaison des expressions de  $r_b$  en régimes de convection libre et forcé. Parce qu'en réalité, c'est la conductance  $g_b$  qui est la variable extensive et non  $r_b$  on utilise une somme harmonique pour  $r_b$ . La pondération pour le régime forcé correspond à  $P(u \geq u_{crit})$ , et pour le régime libre à  $P(u \leq u_{crit})$ . Pour une distribution de vitesse gaussienne, de moyenne  $U$  et d'écart-type  $\sigma_u$ ,  $P(u \geq u_{crit})$  et  $P(u \leq u_{crit})$  s'expriment simplement par la relation :

$$P(u \geq u_{crit}) = \frac{1}{2} \left\{ 1 + \operatorname{erf} \left( \frac{u_{crit} - U}{\sqrt{2} \sigma_u} \right) \right\} = 1 - P(u \leq u_{crit}) \quad (III.72)$$

où  $\operatorname{erf}$  est la fonction erreur (Press *et al.*, 1994). Il reste à déterminer entre  $u_{cL}$  et  $u_{cF}$  quelle valeur seuil utiliser. En se basant sur le raisonnement tenu par Finnigan et Raupach (1987), nous avons choisi une autre valeur critique de  $u$ ,  $u_{cl}$ , correspondant à la valeur de  $u$  pour laquelle les expressions de  $r_b$  en régime libre et forcé (Tableau III.1) sont égales. Le Tableau

III.2 qui montre les 3 valeurs critiques de  $u$  dans deux cas très contrastés indique que cette méthode revient à choisir  $u_{cl}$ , et donc à minimiser l'effet de la convection libre.

**Tableau III.2.** Estimation des vitesses de vent critiques  $u_{cl}$ ,  $u_{cf}$  et  $u_{cl}$ , tels qu'ils sont définis dans le texte ci-dessus, pour différentes valeurs de  $\Delta T$  dans des conditions de jour ( $T_a = 20^\circ\text{C}$  et  $HR_a = 50\%$ ) et de nuit humide ( $T_a = 5^\circ\text{C}$  et  $HR_a = 90\%$ ). Ici la dimension caractéristique des feuilles  $d$  est 0.05 m.

Conditions	$\Delta T$ °C	$\Delta q$ mol mol <sup>-1</sup>	$\Delta\rho/\rho$ %	Gr -	$u_{cl}$ (libre) m s <sup>-1</sup>	$U_{cf}$ (forcé) m s <sup>-1</sup>	$u_{cl}$ m s <sup>-1</sup>
Jour : $T_a = 20^\circ\text{C}$ et $HR_a = 50\%$	0	0.012	0.4%	24060	0.01	0.138	0.01
	1	0.013	0.8%	45377	0.02	0.190	0.01
	10	0.031	4.6%	233919	0.04	0.445	0.03
Nuit : $T_a = 5^\circ\text{C}$ et $HR_a = 90\%$	0	0.001	0.0%	2180	0.00	0.040	0.00
	-1	0.000	-0.3%	23211	0.01	0.129	0.01
	-10	-0.004	-3.7%	264459	0.03	0.420	0.03

Finalement, l'expression de  $r_b$  est :

$$1/r_b = \frac{P(u \leq u_{cl})}{r_b\{\text{libre}\}} + \frac{P(u \geq u_{cl})}{r_b\{\text{forcé}\}} \quad (\text{III.73})$$

où  $r_b(\text{forcé})$ , et  $r_b(\text{libre})$  sont respectivement les résistances de couche limite en régime forcé et en régime libre, telles qu'elles sont décrites dans le Tableau III.2. Une démarche plus rigoureuse aurait été d'estimer la valeur de  $\int g_{b\text{forcé}}(u) p(u) du$  entre  $u_{crit}$  et  $\infty$  pour le régime forcé, mais l'intégrale n'a pas de solution analytique simple (à ma connaissance), et le calcul numérique pourrait conduire à rallonger les temps de calcul de façon non acceptable. De plus, étant donné l'incertitude sur ces expressions, il nous a paru préférable de garder une approche simple dans un premier temps.

Un paramétrisation plus correcte de  $r_b$  nécessiterait de prendre en compte le bilan d'énergie des feuilles car  $r_b$  influe sur  $\Delta T$  et  $HR$  dans le couvert, et cet effet est ici négligé. Les différentes paramétrisations de  $r_b$  proposées ci-dessus seront comparées dans le Chapitre V. Autrement, la première formulation classique, est utilisée sauf indication contraire.

### III.5.3.2 Résistance au dépôt sur les surfaces humides $r_w$

L'estimation des paramètres de l'adsorption d' $\text{NH}_3$  sur les surfaces externes de la plante est problématique. D'une part parce qu'expérimentalement, il est difficile d'isoler la composante du flux correspondant à ces échanges, et d'autre part parce que le modèle " $R_c - C_s$ " (Fig. III.8c) est une simplification, qui ne tient pas compte des effets de désorption (Flécharde *et al.*, 1999). La paramétrisation de  $r_w$  est basée sur très peu de données expérimentales, en fait trois jeux de données au maximum (van Hove *et al.*, 1989; Sutton *et al.*, 1995).

En général,  $r_w$  est paramétrée en fonction de l'humidité relative dans l'air (Sutton *et al.*, 1995). Pourtant, il est clair que la présence de film d'eau sur le couvert dépend de bien plus de paramètres que l'humidité relative de l'air, notamment le bilan radiatif du couvert sa

transpiration (Garratt et Segal, 1988; Huber et Itier, 1990), le vent, et également l'évaporation du sol (Jacobs *et al.*, 1994b; Wilson *et al.*, 1999).

Nous avons retenu dans notre modèle, deux formulations. L'une faisant intervenir l'humidité relative  $HR$ , explicitée dans Sutton *et al.* (1995) (équation III.74), et l'autre faisant intervenir le déficit de pression de vapeur  $DPV$  proposée par van Hove et Adema (1996) et reprise par Nemitz *et al.* (1998) (équation III.75):

$$r_w = r_{wmin} \exp\left(\frac{100 - HR}{\beta_{rw}}\right) \quad (III.74)$$

$$r_w = \exp\{\eta_{rw} e_{sat}(T_a) (1 - HR)\} \quad (III.75)$$

où  $T_a$  est la température de l'air environnant la feuille,  $e_{sat}$  est en kPa,  $r_w$  et  $r_{wmin}$  en  $s\ m^{-1}$ , et  $\eta_{rw}$  est en  $kPa^{-1}$ , et  $\beta_{rw}$  est sans dimension.  $r_{wmin}$ ,  $\eta_{rw}$ , et  $\beta_{rw}$  ont respectivement des valeurs de 2, 12 et 30 (Sutton *et al.*, 1995; Nemitz *et al.*, 1998). La Figure III.9 montre la variation de  $r_w$  en fonction de  $HR$ , pour différentes valeurs de  $T_a$ , à partir de l'équation (III.75).

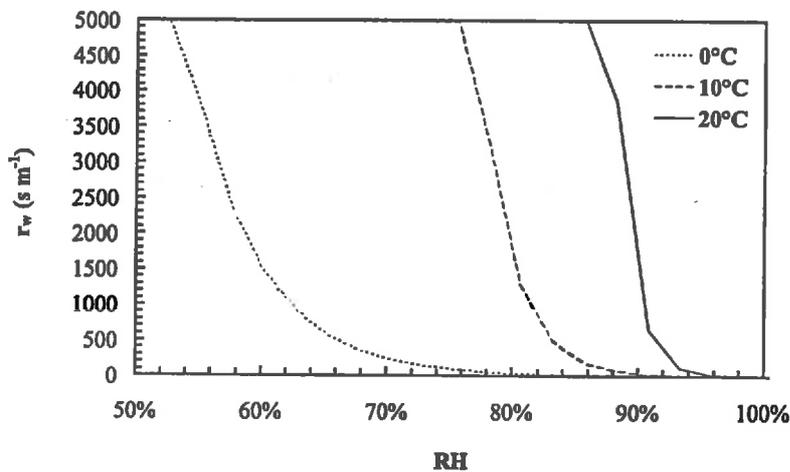


Figure III.9. Résistance à l'adsorption d'NH<sub>3</sub> sur les surfaces externes de la plante  $r_w$ , d'après l'Eqn. III.75, en fonction de  $HR$ , pour trois températures de l'air : 0°C, 10°C, et 20°C.

Dans le modèle, l'expression la plus simple (équation III.74) est utilisée, sauf indication contraire.

### III.5.3.3 Résistance stomatique $r_s$

La paramétrisation de la résistance stomatique  $r_{s,NH_3}$  pour l'ammoniac est identique à celle proposée par Jarvis (1976), reprise par de nombreux auteurs (Baldocchi *et al.*, 1987; Huber *et al.*, 1999). La résistance stomatique  $r_{s,NH_3}$  diminue avec le rayonnement photosynthétiquement actif  $PAR$ , et l'influence de stress divers s'exprime à travers des fonctions de la température de feuille  $T_f$ , du déficit de pression de vapeur  $DPV$ , et du potentiel hydrique de la feuille  $\Psi_f$ .

$$r_{s,NH_3} = \frac{D_{NH_3}}{D_{vp}} \frac{r_{smin} [1 + \beta / PAR]}{g(T_f)g(DPV)g(\Psi_f)} \quad (III.76)$$

Il existe plusieurs formulations pour les fonctions de stress  $g$  (Olioso *et al.*, 1995). On peut retenir celles présentées dans Baldocchi *et al.* (1987) :

$$g(T_f) = \frac{T_f - T_{min}}{T_{opt} - T_{min}} \left( \frac{T_{max} - T_f}{T_{max} - T_{opt}} \right)^{bT} \quad (III.77)$$

$$g(DPV) = 1 - b_v DPV \quad (III.78)$$

$$g(\Psi_f) = \begin{cases} 1 & \Psi_f \geq \Psi_0 \\ a\Psi_f + b_\Psi & \Psi_f \leq \Psi_0 \end{cases} \quad (III.79)$$

où  $T_{min}$ ,  $T_{max}$  sont les températures minimales et maximales [°C] pour lesquelles la fermeture stomatique apparaît,  $T_{opt}$  est la température optimale de fonctionnement des stomates, et  $bT = T_{max} - T_{opt} / T_{max} - T_{min}$ .  $\Psi_0$  [MPa] est le seuil à partir duquel le stress hydrique impose une fermeture stomatique. Les paramètres  $b_v$  [kPa<sup>-1</sup>],  $a$  [MPa<sup>-1</sup>] et  $b_\Psi$  sont des constantes. Ici tous les paramètres dépendent de l'espèce considérée, comme le montre le Tableau III.3, repris de Baldocchi *et al.* (1987).

**Tableau III.3.** Liste des paramètres de résistance stomatique pour différentes espèces, d'après Baldocchi *et al.* (1987). La liste des publications desquelles sont tirés ces estimations sont données dans Baldocchi *et al.* (1987).

Variable	Unités	Sapin	Chêne	Soja	Maïs
$r_{smin}$	$s\ m^{-1}$	232	145	65	242
$\beta$	$W\ m^{-2}$	25	22	10	66
$T_{min}$	°C	-5	10	5	5
$T_{max}$	°C	35	45	45	45
$T_{opt}$	°C	9	24-32	25	22-25
$b_v$	kPa <sup>-1</sup>	-0.0026	0	0	0
$\Psi_0$	MPa	-2.1	-2	-1.1	-0.8

Comme le montre Olioso *et al.* (1995), la paramétrisation de la résistance stomatique est entachée d'une large incertitude. En pratique, il est préférable de mesurer directement la résistance stomatique, soit à l'aide de poromètres de terrain, soit par mesure de flux de vapeur d'eau ou d'ozone, ou tout autre gaz vérifiant les deux critères suivants : (i) le point de compensation stomatique est soit nul soit connu. C'est le cas de la vapeur d'eau, puisque l'air dans la cavité stomatique étant saturé, la pression de vapeur ne dépend que de la température. Le deuxième critère est rarement vérifié : (ii) il n'y a pas de dépôt surfacique du gaz. Même pour la vapeur d'eau, Burkhardt *et al.* (1999) montrent qu'une partie de la quantité évaporée peut se condenser à la surface des feuilles. Cela n'a toutefois pas d'incidence sur l'estimation des paramètres de l'Eqn. III.76, à condition que le régime d'évaporation soit stationnaire. Lorsqu'il est transitoire la recondensation peut entraîner une sous estimation de  $r_s$ .

Notre objectif n'étant pas modéliser de façon précise la résistance stomatique pour chaque espèce, en fonction des facteurs environnementaux, nous n'avons pas dans un premier temps pris en compte les différents stress exprimés dans les Eqn. III.77-III.79. Il nous

apparaissait toutefois important d'en préciser leurs expressions.

#### III.5.3.4 Paramétrisation du point de compensation stomatique $C_s$

Le point de compensation stomatique dépend de nombreux facteurs, notamment liés au climat, au stade de développement de la plante, et au sol (Schjørring, 1997), mais  $C_s$  varie également au sein d'une même plante, en fonction de l'âge de la feuille (Husted *et al.* 1997). Nous ne cherchons pas ici à intégrer tous ces facteurs dans la paramétrisation de  $C_s$ , mais simplement la température de la feuille  $T_f$ . Le point de compensation pour l'ammoniac s'exprime de la façon suivante :

$$C_{s,NH_3} = K_d(T_f) \cdot K_H(T_f) \cdot \frac{[NH_4^+]_{apo}}{[H^+]_{apo}} \quad (III.80)$$

où  $C_{s,NH_3}$  est la concentration en mol l<sup>-1</sup>,  $K_d$  est la constante de dissociation de l'équilibre NH<sub>3</sub>/NH<sub>4</sub><sup>+</sup> en mol l<sup>-1</sup> et  $K_H$  est la constante de Henry de l'équilibre NH<sub>3aq</sub>/NH<sub>3g</sub>, sans unité. Elles dépendent toutes deux de la température. [NH<sub>4</sub><sup>+</sup>]<sub>apo</sub> et [H<sup>+</sup>]<sub>apo</sub> sont les concentrations en ions NH<sub>4</sub><sup>+</sup> et H<sup>+</sup> dans l'apoplasme, dont le rapport est indépendant de la température, et est appelé  $\Gamma$  (Sutton *et al.*, 1995). En utilisant la formule de Clausius-Clapeyron pour décrire la variation des équilibres thermodynamiques et chimiques en fonction de la température, l'équation (III.80) devient :

$$C_{s,NH_3}(T, \Gamma) = K_d(25^\circ C) \cdot K_H(25^\circ C) \cdot \Gamma \cdot \exp\left(\frac{\Delta H_d^0 + \Delta H_{vap}^0}{R} \frac{T - 25}{298 \times (T + 273)}\right) \quad (III.81)$$

où  $\Delta H_d^0$  et  $\Delta H_H^0$  [J mol<sup>-1</sup>] sont les enthalpies des réactions de dissociation et de vaporisation de l'ammoniac,  $T_f$  est la température de la feuille en °C,  $R$  est la constante de dissociation des gaz parfaits (8.3143 J K<sup>-1</sup> mol<sup>-1</sup>).  $\Gamma$  varie typiquement entre 200 pour des écosystèmes semi-naturels, à plus de 10000 pour des plantes cultivées (cf. Tableau II.14). Les valeurs des constantes et enthalpies sont récapitulées dans le Tableau III.4. La solubilité de l'ammoniac étant très fortement dépendante de la température, le point de compensation double lorsque la température augmente de 5°C dans la plage de température correspondant aux conditions environnementales. La formulation numérique de l'équation III.81, pour une force ionique égale à 0 est la suivante :

$$C_{s,NH_3}(T, \Gamma) = 4.79 \cdot 10^{-12} \cdot \Gamma \cdot \exp\left(10396 \frac{T - 25}{298 \times (T + 273)}\right) \quad (III.82)$$

Une expression simplifiée peut être déterminée par régression, qui est équivalent à l'Eqn. III.82 avec moins de 10% d'erreur. Cette expression n'est pas utilisée dans le modèle lui-même, mais est utile comme expression simplifiée, où ici,  $C_s$  est exprimé en µg NH<sub>3</sub> m<sup>-3</sup>, et  $T$  en °C :

$$C_s = 10^{-3.4362 + 0.0508 T} \cdot \Gamma \quad (III.83)$$

On voit de façon évidente dans cette expression que 1° de variation de  $T$  multiplie  $C_s$  par un

facteur  $10^{0.0508}$  soit 1.124. Ainsi, dans la gamme de température 5-40°C, lorsque  $T$  augmente de 1°C,  $C_s$  augmente de 12.4%, et donc  $C_s$  double tous les 6°C car  $(1.124)^6 = 2.02$ .

Tableau III.4. Constantes d'équilibre  $K$ , et enthalpies  $\Delta H^0$  des réactions de dissociation et de vaporisation pour l'ammoniac.  $I$  est la force ionique de l'apoplasme (typiquement entre 0 et 40 mM).

Réaction	$\Delta H^0$ [kJ mol <sup>-1</sup> ]	$K (I = 0)$	$K (I = 20 \text{ mM})$
Dissociation	52.21	$10^{-9.25}$	$10^{-9.32}$
Vaporisation	34.18	$10^{-3.14}$	-

La constante  $\Gamma$ , dépend de nombreux facteurs, et varie au cours de la saison. Elle caractérise l'écosystème étudié (Sutton *et al.*, 1994). Dans la suite du document, elle sera déterminée à partir des mesures réalisées sur maïs à différent niveau de fertilisation (Loubet *et al.*, 1999), et du Tableau II.14.

### III.5.4 Paramétrisation du couvert et du microclimat

Plusieurs des paramètres décrits ci-dessus dépendent du microclimat dans le couvert. En particulier, la formulation de  $r_b$  dépend de la température de l'air,  $T_a$ , et des feuilles,  $T_f$ , et de l'humidité relative  $HR$  à travers le nombre de Grashof.  $r_s$  dépend du rayonnement photosynthétiquement actif  $PAR$ , de  $T_f$ , et du déficit de pression de vapeur  $DPV$ , et  $r_w$  dépend de  $T_a$  et  $HR$ . Quant à  $C_s$ , il dépend fortement de  $T_f$ .

Noter aussi que toutes les résistances doivent également être pondérées par la densité de surface foliaire dans le couvert  $a(z)$ , pour obtenir le flux. Il convient donc de préciser ces quantités pour compléter la paramétrisation du modèle. Comme l'objectif de ce travail n'est pas de réaliser un modèle de microclimat, nous utiliserons des paramétrisations simples, mais réalistes de  $a(z)$  et de  $PAR(z)$ . Les profils de vapeur d'eau et de température de feuilles et de l'air ne sont pas déterminés ici. Elles sont basées sur des valeurs expérimentales.

#### III.5.4.1 Profil de densité de surface foliaire $a(z)$

La densité de surface foliaire  $a(z)$  est très dépendante du type de végétation (Meyers et Paw U, 1986). Nous présentons ici le cas simple d'un couvert de maïs. En se basant sur les travaux de Meyers et Paw U (1986), la densité de surface foliaire est définie, pour un couvert de maïs par une courbe gaussienne :

$$a(z) = \frac{A}{p_r \sigma_a \sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{(z - h_m)^2}{2 \sigma_a^2}\right) \quad (III.84)$$

où  $h_m$  est la hauteur où se situe le maximum de densité de surface foliaire dont l'amplitude est fixée par  $A$ ,  $\sigma_a$  est l'écart-type de la distribution de  $a(z)$  autour de ce maximum, et  $p_r$  est un facteur de recouvrement. Lorsque  $z$  est supérieur à la hauteur du couvert  $h$ ,  $a(z)$  est forcé à 0 si l'Eqn. III.88 ne vaut pas 0. Typiquement pour un couvert de maïs de hauteur 1.40 m,  $A = 8$  et  $\sigma = 0.25$ .

En pratique, afin que le profil de  $a(z)$  soit cohérent avec le  $LAI$ , les paramètres  $p_r$ ,  $h_m$  et  $\sigma_a$  étant fixé,  $A$  est estimé en inversant l'équation exprimant l'égalité entre l'intégrale entre  $z = 0$  et  $z = h$  de l'Eqn. III.84, et le  $LAI$ .

#### III.5.4.2 Profil de rayonnement

En supposant que le couvert végétal est (i) un milieu turbide plan, (ii) les feuilles sont réparties de façon homogène et aléatoire dans le couvert, (iii) leur distribution azimutale est symétrique et (iv) la distribution des angles d'inclinaison est invariante avec la hauteur, le rayonnement pénétrant à la hauteur  $z$ , peut s'écrire :

$$PAR(z) = PAR_0 \exp\left(-\frac{0.5 L(z)}{\sin \beta_i}\right) \quad (III.85)$$

où  $PAR_0$  est le rayonnement PAR au-dessus du couvert,  $L(z)$  est la densité de surface foliaire cumulée à partir du sommet du couvert,  $\beta_i$  est l'angle d'incidence des rayons solaires, et le facteur 0.5 est obtenu en faisant l'hypothèse que les inclinaisons des feuilles ont une distribution uniforme.

#### III.5.4.3 Profil de température de feuille $T_f$ et de l'air $T_a$

Etant donné que ce n'est pas l'objet de ce travail de développer un modèle d'échange de chaleur dans le couvert, les profils de température de l'air et des feuilles sont obtenus expérimentalement. Il ne serait pas simple, ni satisfaisant de définir des profils empiriques de température étant donnée la forte variabilité en fonction de l'intensité du vent en particulier.

Toutefois, comme  $C_s$  dépend fortement de la température des feuilles  $T_f$ , et que  $r_w$  est une fonction de  $HR$  dans le couvert, il paraît important à l'avenir de coupler le modèle à un modèle d'échange de chaleur (sensible et latente) dans le couvert. Ce couplage sera simplifié par le fait que nous disposons d'ores et déjà d'un modèle de dispersion de scalaire passif dans le couvert, couplé à un modèle d'échange foliaire. Le couplage d'un bilan d'énergie, sur le plan de la modélisation seulement, demanderait uniquement de spécifier les sources de chaleur et de vapeur en fonction de  $T_f$ , et d'estimer cette dernière par itération. L'équation de bilan d'énergie de la feuille est :

$$A_f - 2 \varepsilon \sigma T_f^4 = \frac{\rho_a 2 C_p (T_f - T_a)}{r_b} + \frac{L (e_{sat}(T_f) - e_a)}{r_b + r_s} \quad (III.86)$$

où ici  $A_f$  est le rayonnement total incident (grande et courte longueur d'onde), absorbé par la feuille,  $\varepsilon$  est l'émissivité de la feuille,  $\sigma$  est la constante de Boltzman. Les autres termes ayant déjà été définis. Même si l'intégration des échanges d'énergie au modèle est simple, le nécessaire travail de validation, et l'intégration d'autres composantes essentielles du bilan d'énergie (flux de chaleur dans le sol), sort du cadre de ce travail, mais constitue un objectif à l'avenir.

### III.6 Couplage dispersion-absorption

Les modèles de dispersion et d'échange de l'ammoniac gazeux ont été présentés dans les paragraphes précédents. Le modèle de dispersion permet d'estimer la concentration en  $\text{NH}_3$  lorsque les sources et puits sont spécifiés, et le modèle d'échange détermine l'intensité des sources et puits si la concentration en  $\text{NH}_3$  dans le couvert est connue. Il est donc nécessaire d'utiliser une technique d'inversion pour résoudre ce problème implicite, qui a l'avantage d'être un système linéaire. Cette résolution nécessite que le domaine d'étude soit "discrétisé" en un maillage, où chaque maille "contient" soit une source de débit fixé, soit une partie du couvert, qui est une source / puits de débit variable, soit de l'air. Ce chapitre décrit et justifie la façon dont est discrétisé le domaine, puis la localisation des sources et des puits, et enfin, le couplage des modèles de dispersion et d'échange.

#### III.6.1 Discrétisation du domaine d'étude et du couvert

Toutes les coordonnées sont repérées par rapport à un repère  $(O,x,z)$  dont la hauteur  $z = 0$  correspond à la surface du sol comme indiqué sur la Figure III.10. Le domaine étudié est un rectangle, dont la base  $z_{min}$  se situe au niveau du sol, et la hauteur  $z_{max}$  peut-être spécifiée. La limite amont  $x_{min}$  et aval  $x_{max}$  sont également spécifiées. Ce domaine, est une fenêtre d'observation, mais ne limite en rien la dispersion des particules fluides. En effet, chaque trajectoire de particule est suivie jusqu'à ce que la particule ait dépassé la limite aval de 5 mètres dans la direction du vent (avec le modèle en 2 dimensions, il peut y avoir de la rétrodiffusion). Si la particule se trouve dans le domaine, sa trajectoire est enregistrée, sinon elle ne l'est pas.

Le domaine est découpé en mailles rectangulaires numérotées de 1 en bas à gauche, à  $N$  en haut à droite, et la numérotation s'incrémente de gauche à droite et de bas en haut. Le nombre de lignes du maillage est séparé en deux parties ; le nombre de mailles se trouvant dans le couvert  $N_h$ , et le nombre de mailles au-dessus,  $N_z - N_h$ . Le nombre de colonnes est  $N_x$  (Fig. III.10). Lors d'un changement de rugosité, le maillage horizontal est uniforme, et la rupture entre les deux couverts est placée à un nœud.

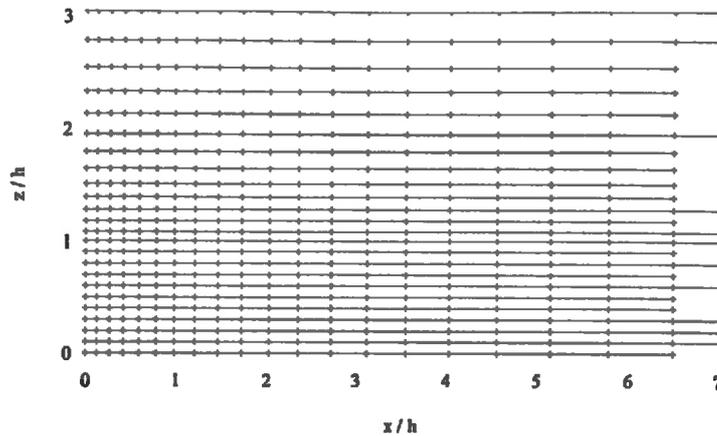


Figure III.10. Exemple de maillage du domaine. 10 couches équidistantes sont placées dans le couvert. 15 couches d'épaisseur variable (progression géométrique) sont placées au-dessus, et 20 colonnes à progression géométrique découpent le domaine horizontalement. L'échelle n'est pas respectée sur la figure.

Il y a possibilité d'utiliser un maillage dont la taille des couches horizontales ou verticales suivent une progression géométrique de raison  $\alpha_x$  et  $\alpha_z$ . En introduisant les limites du domaine, et sachant que le maillage non uniforme s'applique uniquement au-dessus du couvert, cela donne pour la suite des nœuds  $\{x_i\}_{i=1..N_x}$   $\{z_i\}_{i=1..N_z}$ , en remplaçant au choix  $y$  par  $x$  ou par  $z$  :

$$\Delta y_0 = (y_{max} - y_{min}^h) \frac{1 - \alpha_y}{1 - \alpha_y^{N_y}} \quad (III.87a)$$

$$y_i = y_{min}^h + \Delta y_0 \frac{1 - \alpha_y^i}{1 - \alpha_y}, \quad i = [0..N_y] \quad (III.87b)$$

où  $z_{min}^h = h$ , et  $\Delta y_0$  est la taille de la première maille. Noter que  $i$  est numéroté de 0 à  $N_y$ , car à  $N_y$  maille, correspondent  $N_y+1$  nœuds (Fig. III.10). En pratique, la raison de la suite,  $\alpha$ , varie entre 1 et 1.2. Dans le couvert, les couches sont de tailles identiques. Si le nombre de couche est égal à 1, le modèle se réduit à un modèle de type "grande feuille".

Toutes les variables sont moyennées dans les mailles, sauf les paramètres de la turbulence, qui sont exprimés par des fonctions continues de  $z$ .

### III.6.2 Répartition des sources et des puits

Les différentes sources et puits d'NH<sub>3</sub>, intervenant dans le modèle, ont été définies selon trois types (Fig. III.11) : (i) la concentration de fond qui est considérée comme due à une source de densité  $S_{fd}(z)$ , (ii) le couvert végétal, qui est en fait la somme de deux sources  $S_{ems}$ , et  $S_{dep}$ , et (iii) des sources additionnelles qui correspondent à la source de pollution locale  $S_p$ .

La source "de fond"  $S_{fd}(z)$ , est considérée comme une source plage d'épaisseur  $\Delta x$ , dont la densité est égale au flux horizontal correspondant à une concentration de fond  $C_{fd}(z)$ , soit :

$$S_{fd}(z) = \frac{C_{fd}(z) \times \bar{u}(z)}{\Delta x} \quad (III.88)$$

La zone de la source de fond s'étend plus haut que la hauteur maximale du domaine  $z_{max}$ , soit au moins 100 à 200 m, afin d'éviter les effets de bord.

Dans chaque maille du couvert, les sources  $S_{em}$  et les puits  $S_{dep}$  sont définis à partir de l'Eqn. III.71. Cela correspond à un nombre de mailles  $N_c = N_x \times N_h$ . Les autres sources  $S_p$  dont le débit est fixe (le rond sur la Figure III.11) sont indépendantes de la concentration. Leur densité est fixée  $S_p$ , et elles sont délimitées par des coordonnées dans le repère orthonormé. Elles sont numérotées de 1 à  $N_p$ .

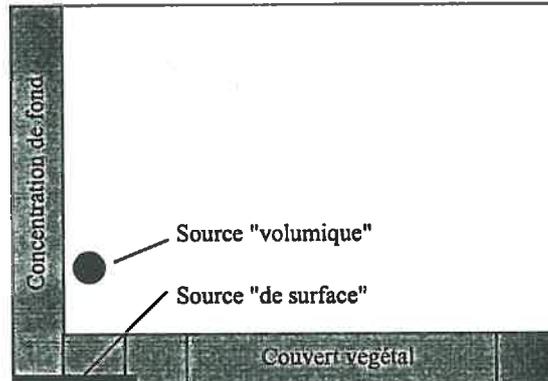


Figure III.11. Représentation schématique des zones sources et puits. La concentration de fond génère une source variable avec l'altitude. Le couvert végétal est une source ou un puits, et les sources volumiques et surfaciques sont des sources locales d' $\text{NH}_3$  (ventilation d'un bâtiment d'élevage, épandage de fertilisants).

Les sources et les puits ainsi répertoriées, sont numérotées avec des indices indépendants les uns des autres entre 1 et  $N_c$ ,  $N_p$ , et  $N_{fd}$ .

### III.6.3 Couplage du modèle de dispersion et d'échange

Le couplage est réalisé à l'aide d'une méthode d'inversion matricielle. L'expression matricielle du problème est immédiate une fois le domaine discrétisé. En effet, en reprenant l'Eqn. III.21, et en utilisant comme volume  $V_c$  d'intégration, celui d'une maille  $i$ , la concentration moyenne s'écrit  $\langle c^v(\mathbf{x}) \rangle = C_i$ , et l'Eqn. III.18 se transforme en :

$$C_i = \sum_{j=0}^{N_s} D_{ij} S_j \quad , i = 1..N \quad (III.89)$$

$$D_{ij} = \frac{1}{V_i} \int_{V_i} \int_{\Omega_{s,j}, R^+} p(x,t|x_0,t_0) dx_0 dt_0 dx \quad (III.90)$$

où  $D_{ij}$  est la matrice de dispersion, définie par l'Eqn. III.90,  $S_j$  est la densité de source de la source n°j, et  $N = N_x \times N_z$  est le nombre de mailles du domaine entier. Il est possible de découpler les différentes composantes de la concentration liées aux sources de fonds  $S_{fd}$ , les sources liées au couvert  $S_{em}$  et  $S_{dep}$ , et les sources de pollution  $S_p$ . L'équation (III.89) devient alors :

$$C_i = \sum_{j=1}^{N_{fd}} D_{ij}^{fd} S_j^{fd} + \sum_{j=1}^{N_p} D_{ij}^p S_j^p + \sum_{j=1}^{N_c} D_{ij}^{em} S_j^{em} + \sum_{j=1}^{N_c} D_{ij}^{dep} S_j^{dep}(C_j), \quad i=1..N \quad (III.91)$$

$$(I) \qquad (II) \qquad (III) \qquad (IV)$$

où les indices correspondent au numéro de source ( $j$ ), et le nom des sources a été placé en exposant afin de garder la notation matricielle en indice. Les matrices de dispersion  $D_{ij}^X$ , correspondent à la contribution des sources  $S_j^X$ . Ainsi, les  $D_{ij}$  ont toutes le même nombre de lignes ( $i$ ), mais un nombre de colonne correspondant au nombre de sources ( $j$ ). Les termes (I) à (III) sont indépendants de la concentration atmosphérique, c'est à dire que les densités de sources correspondantes le sont. Leur somme peut donc être identifiée à une concentration de référence  $C_i^{ref}$  dans la maille  $i$ . D'autre part,  $S_j^{dep}(C_j)$  peut être exprimée en fonction de la concentration  $C_j$  et de la résistance au dépôt dans la maille  $j$ ,  $r_j^{dep}$  (Eqn. III.71). En intégrant ces remarques dans l'Eqn. III.91, il vient :

$$C_i = C_i^{ref} + \sum_{j=1}^{N_c} D_{ij}^{dep} \left( -\frac{C_j}{r_j^{dep}} \right), \quad i=1..N \quad (III.92)$$

Cette formulation n'est pas sans rappeler celle de Raupach (1989). En fait, elle est strictement identique, mais la numérotation indiciaire est différente, puisque ici les indices  $i=1..N$  correspondent à un domaine en deux dimensions, alors que le modèle de Raupach est en une dimension. L'Eqn. (III.92) peut s'écrire sous forme matricielle, en utilisant des symboles en caractère gras pour désigner une matrice ou un vecteur :

$$C = C^{ref} - D^{dep} \times R^{dep} C \quad (III.93)$$

où  $R^{dep}$  est une matrice avec  $N_c$  colonnes et  $N$  lignes construite à partir du vecteur  $r^{dep}$  de dimension  $N_c$ , de sorte que  $R^{dep} = \{r^{dep} \dots r^{dep}\}_{1..N_c}$ . Le couplage du modèle de dispersion avec le modèle d'échange d'NH<sub>3</sub> revient donc à résoudre le système linéaire de l'Eqn. III.93. Ce système est de dimension  $N \times N_c$ . Or seule la concentration dans le couvert est nécessaire pour estimer la densité de puits  $S_j^{dep}$ . Donc pour résoudre ce système, nous allons réduire la taille du système à  $N_c \times N_c$ , le résoudre, puis estimer la densité de source du couvert, et utiliser l'équation (III.92) pour trouver la concentration en tout point du domaine. Cette méthode présente deux avantages, d'une part de réduire les dimensions du système étudié, et d'autre part d'obtenir un système matriciel carré, ce qui permet de le simplifier. En effet, en introduisant la matrice  $D_r^{dep} = D^{dep} \times R^{dep}$ , l'équation (III.93) se transforme pour donner le système linéaire suivant :

$$(I + D_r^{dep}) C = C^{ref} \quad (III.94)$$

Où  $I$  est la matrice identité. Le système linéaire ci-dessus est inversé par une méthode de Gauss-Jordan (Press *et al.*, 1994), qui est certes moins rapide que des méthodes de gradient ou

gradient conjugué, mais qui a l'avantage d'être très robuste. Par ailleurs, du fait de la numérotation des mailles, la matrice possède un très mauvais "profil" (dispersion autour de la diagonale), qui rend les méthodes de gradient plus instables. De plus, le temps d'inversion de la matrice, même pour des matrices très volumineuses est dérisoire devant le temps de calcul des trajectoires de particules.

En pratique, les différentes étapes sont (i) estimer  $C^{ref}$  à partir des sources liées à la concentration de fond, à la pollution locale, et aux points de compensation, (ii) estimer  $I + D_r^{dep}$  à partir de  $r_{dep}(x)$ , (iii) inverser le système de l'équation (III.94), (iv) estimer  $S^{dep}$ , et enfin (v) utiliser l'Eqn. III.91 pour estimer la concentration en tout point du domaine.

Nous n'avons rien dit de l'estimation du flux vertical  $F_z$ , qui comme nous l'avons montré dans l'introduction du chapitre (Eqn. III.2), et dans la partie sur la construction du modèle de dispersion (Eqn. III.22), peut être également déterminé à l'aide du même modèle. La méthode est strictement la même que celle présentée ci-dessus, en remplaçant la matrice de dispersion par la "matrice des flux", qui est obtenue à partir de l'Eqn. III.22.

### III.7 Mise en œuvre du modèle

Certains aspects de la mise en œuvre numérique du modèle sont délicats. Nous avons déjà noté (cf. §III.3.9, Figure III.2) que la méthode d'intégration numérique de l'équation stochastique pouvait entraîner des erreurs numériques importantes si l'on n'y prenait garde. L'autre difficulté principale réside dans le coût numérique de tels modèles qui peut vite devenir exorbitant. La mise en œuvre de l'algorithme doit donc tenir compte de cette contrainte.

#### III.7.1 Calcul de la concentration moyenne dans une maille

Le calcul de la concentration moyenne et du flux vertical d'ammoniac dans une maille est un important par la fréquence d'utilisation de cette fonction. Elle doit donc être optimisée. L'optimisation numérique n'est pas discutée ici, mais la première façon pour améliorer le temps de calcul est d'optimiser la procédure de calcul de la concentration moyenne.

Le calcul de la concentration moyenne est basé sur l'équation (III.21). On voit que ce calcul revient à estimer le *temps moyen*  $T_{ij}$  passé par une particule issue d'une source  $S_i$  dans la maille  $j$ . Celui-ci est égal à la moyenne du temps passé par toutes les particules issues de la source  $S_i$ . Or à chaque pas de temps, la particule parcourt une trajectoire linéaire dont les bornes sont indépendantes du maillage. Il convient donc pour chaque pas de temps  $\Delta t$  de repérer les mailles traversées par la particule, et d'y affecter le temps passé par celle-ci (Figure III.12).

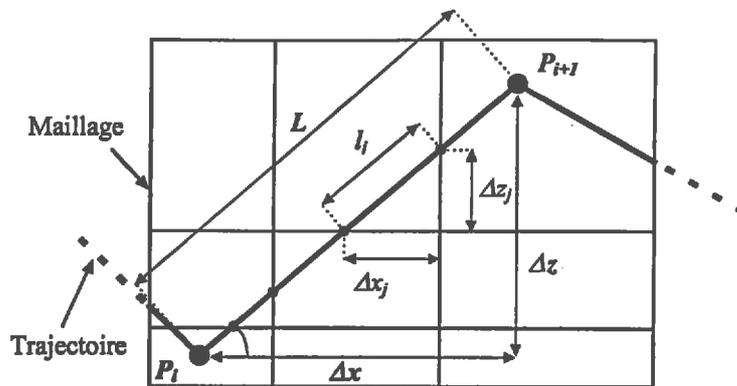


Figure III.12. Illustration de la procédure d'estimation du temps moyen de parcours d'une particule dans chacune des mailles traversées au cours d'un pas de temps  $\Delta t$  entre  $P_i$  et  $P_{i+1}$ . Le temps  $\Delta t_j$  passé dans la maille du milieu est égal à  $l_j/L \times \Delta t$ , où  $l_j$  est la distance parcourue dans cette maille. En vertu du théorème de Thalès, le rapport  $l_j/L$  s'exprime par  $l_j/L = \Delta x_j / \Delta x = \Delta z_j / \Delta z$ . En utilisant cette propriété, le calcul de  $\Delta t_j$  est simplifié.

A chaque nouveau segment de trajectoire, la procédure consiste à (i) repérer l'abscisse et l'ordonnée du nœud le plus proche du point  $P_i$ , et dans le quart de plan correspondant à la direction de la particule (sur la Figure III.12, premier nœud au-dessus à gauche de  $P_i$ ), puis (ii) à chaque nouvelle maille, repérer si la trajectoire passe dans les mailles du dessus/dessous ou bien droite/gauche, en comparant  $\Delta z_j$  à la hauteur de la maille, (iii) incrémenter le temps dans la maille de  $\Delta t \Delta x_j / \Delta x$  ou  $\Delta t \Delta z_j / \Delta z$ , suivant le cas, puis (iv) calculer les coordonnées de l'intersection avec la prochaine maille, et enfin (v) incrémenter la maille, et ce jusqu'à arriver au bout du segment.

### III.7.2 Schéma algorithmique

La Figure III.13 présente le schéma d'organisation des différents modules. Chaque module possède ses propres paramètres qui dépendent des paramètres du couvert ou du microclimat. Les variables d'entrée combinées aux paramètres de chacun de ces modules permettent de construire les profils des caractéristiques de la turbulence et des résistances. Ceux-ci sont utilisés dans les modules de dispersion et d'échange. Les deux éléments essentiels du programme sont le module de dispersion et le module de couplage.

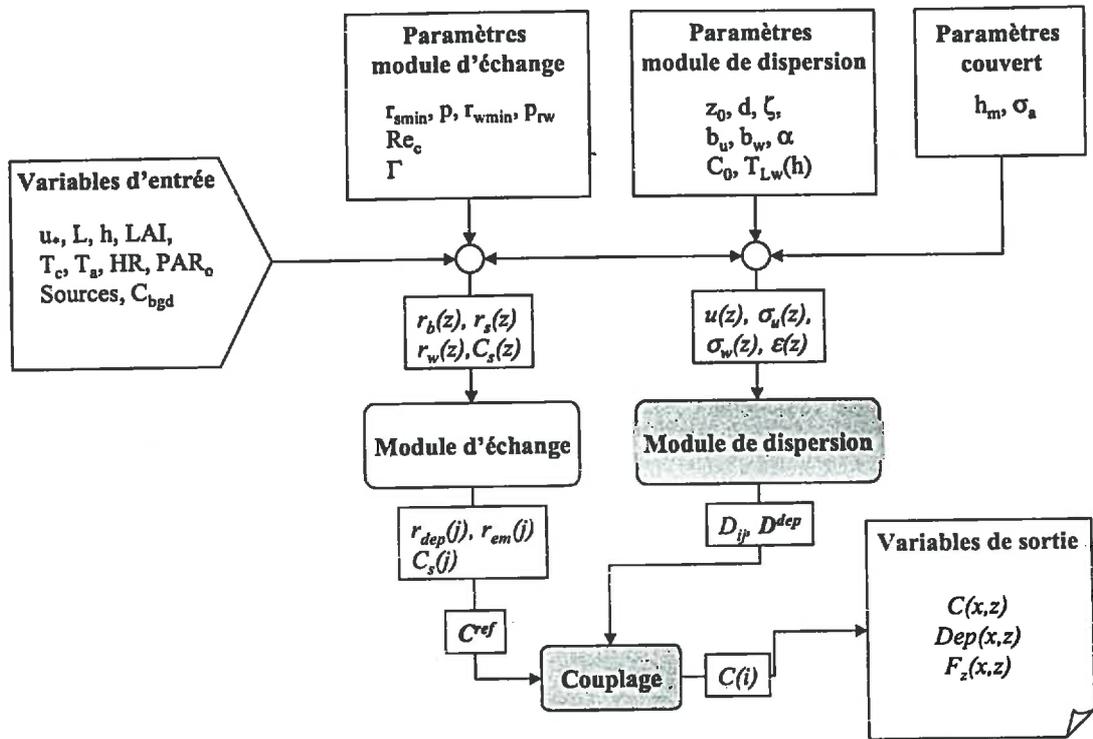


Figure III.13. Schéma de principe de l'organisation des différents modules du modèle. Le détail de la méthode est donné dans le texte.

Le module d'échange permet d'estimer les résistances  $r_{dep}$  et  $r_{em}$  dans chacune des mailles du couvert ainsi que le point de compensation, ce qui permet de construire le vecteur  $C^{ref}$ . Le module de dispersion permet d'estimer  $D_{ij}$ , d'où l'on extrait  $D^{dep}$ . Le module de couplage inverse le système linéaire l'Eqn. III.94 à partir de  $C^{ref}$  et  $D^{dep}$ , et donne la concentration en tout point du couvert  $C(i)$ , ainsi que le terme de dépôt. Les variables de sortie du modèle sont la concentration  $C(x,z)$ , le flux  $F_z(x,z)$  en tout point du domaine, et le dépôt en tout point du couvert.

### III.8 Conclusions

Nous avons développé un modèle de dispersion et de dépôt sec de l'ammoniac atmosphérique en deux dimensions, basé sur le *couplage* de deux modèles: (i) un modèle de dispersion lagrangien stochastique et (ii) un modèle d'échange foliaire pour l'ammoniac.

Le modèle de dispersion est basé sur les travaux de Thomson (1987). Il décrit les équations différentielles stochastiques du mouvement des particules fluides. Nous avons vu qu'un tel modèle nécessite d'introduire une fermeture lorsque la dimension est supérieure à 1. Il semble que le choix de fermeture le plus simple donne les meilleurs résultats. Nous proposons par ailleurs une méthode de discrétisation qui permet d'éviter les biais souvent observés avec ce type de modèle.

Les paramétrisations du modèle de dispersion sont basées sur les profils de vitesse moyenne et d'écart-types du vent, présentés dans le chapitre II. Nous introduisons deux

paramétrisations de  $\varepsilon$ , l'une basée sur une valeur fixe de  $T_{Lw}$  dans le couvert et l'autre sur une expression plus complexe de  $\varepsilon$ . Ces deux expressions seront comparées dans le chapitre V.

Le modèle d'échange foliaire prend en compte à la fois le dépôt cuticulaire et l'existence du point de compensation stomatique  $C_s$ . Afin de réaliser le couplage avec le modèle de dispersion, le modèle d'échange est regroupé en deux voies, une voie d'émission et une voie de dépôt. Le flux net étant égal à la somme de ces deux composantes. Nous introduisons également une nouvelle paramétrisation de  $r_b$  qui prend en compte l'intermittence, ainsi que la convection libre dans le couvert. La structure du couvert est prise en compte à travers un profil de surface foliaire qui détermine l'extinction du PAR.

Enfin, le couplage entre les deux modèles est réalisé en discrétisant le domaine étudié avec un maillage de taille variable. Cette discrétisation de l'espace permet de définir une expression matricielle de l'équation de conservation de la masse, qui est résolue numériquement par une méthode d'inversion classique.

Ce modèle va être évalué en comparaison avec des données expérimentales que nous présentons dans le chapitre IV. La validation et l'étude de sensibilité du modèle seront ensuite réalisées dans le Chapitre V.

### III.9 Bibliographie

- Asman W.A.H., 1998: Factors influencing local dry deposition of gases with special reference to ammonia. *Atmos. Environ.*, 32(3): 415-421.
- Asman W.A.H., Janssen A.J., 1987: A long-range transport model for ammonia and ammonium for Europe. *Atmos. Environ.*, 21(10): 2099-2119.
- Aylor D. E., Ferrandino F. J., 1989: Dispersion of spores released from an elevated line source within a wheat canopy. *Boundary-Layer Meteorol.*, 46: 251-273.
- Aylor D. E., Wang Y., Miller D.R., 1993: Intermittent wind close to the ground within a grass canopy. *Boundary-Layer Meteorol.*, 66: 427-448.
- Ayotte K.W., Finnigan J.J., Raupach M.R., 1999: A second-order closure for neutrally stratified vegetative canopy flows. *Boundary-Layer Meteorol.*, 90: 189-216.
- Baerentsen J.H., Berckowitz R., 1984: Monte Carlo simulation of plume dispersion in the convective boundary layer. *Atmos. Environ.*, 18: 701-712.
- Baldocchi D.D., Hicks B.B., Camara P., 1987: A canopy stomatal resistance model for gaseous deposition to vegetated surfaces. *Atmos. Environ.*, 21(1): 91-101.
- Borgas M.S., Sawford B.L., 1994: Stochastic equations with multifractal random increments for modelling turbulent dispersion. *Phys. Fluids*, 6: 618-633.
- Brown P., 1826: cité dans Csanady 1990.
- Bugharello G., Jackson E.D., 1964: Random-walk study of convective diffusion. *Proc. A.S.C.E.*, 90: 49-77.
- Burkhardt J., Kaiser H., Goldbach H., Kappen L., 1999: Measurements of electrical leaf surface conductance reveal recondensation of transpired water vapour on leaf surfaces. *Plant, Cell and Environ.*, 22: 189-196.
- Cellier P., Brunet Y., 1992: Flux-Gradient relationships above tall plant canopies. *Agricultural and Forest Meteorology*, 58 : 93-117.

### III.9. Bibliographie

---

- Csanady G.T., 1980: Turbulent diffusion in the environment. *Geophysics and Astrophysics Monographs*, D. Reidel Publishing Co., Dordrecht, The Netherland, 248pp.
- Daniels P., Jones J.G., 1970: Discrete-step model of low altitude atmospheric turbulence based on Markov chain. *R.A.E. Tech. Rep.* 70010.
- De Jong J.J., Klassen W., 1997: Simulated dry deposition of nitric acid near forest edges. *Atmos. Environ.*, **31(22)**:3681-3691.
- Denmead O.T., Bradley E.F., 1985: Flux-gradient relationships in a forest canopy. *The Forest-Atmosphere Interaction* (B.A. Hutchison and B.B. Hicks, Eds.). D. Reidel Publishing Co. Dordrecht, The Netherlands, 421-442.
- Du S., 1997: Universality of the lagrangian velocity structure function constant ( $C_0$ ) across different kinds of turbulence. *Boundary-Layer Meteorol.*, **83**: 207-219.
- Du S., Wilson J.D., Yee E., 1994a: Probability density functions for velocity in the convective boundary layer, and implied trajectory models. *Atmos. Environ.*, **28**: 1211-1217.
- Du S., Wilson J.D., Yee E., 1994b: On the moment approximation method for constructing a lagrangian stochastic model. *Boundary-Layer Meteorol.*, **70**: 273-292.
- Durbin P.A., 1980: A stochastic model of two-particle dispersion and concentration fluctuation in homogeneous turbulence. *J. Fluid Mech.*, **100**: 279-302.
- Durbin P.A., 1983a: Stochastic differential equations and turbulent dispersion. *NASA Reference Publication*, **1103**.
- Durbin P.A., 1983b: Asymptotic behaviour of the Langevin equation for non-homogeneous medium. Presented at the 4<sup>th</sup> Annual Meeting of Canad. Appl. Math. Soc., June 1983, Toronto.
- Durbin P.A., 1984: Comments on papers by Wilson *et al.*, (1981), and Legg and Raupach, (1982). *Boundary-Layer Meteorol.*, **29**: 409-411.
- Einstein A., 1905: *Ann. Physik*, **17**: 549.
- Finnigan J.J., Raupach M.R., 1987: Transfer processes in plant canopies in relation to stomatal characteristics. In *Stomatal Function*, Eds. E. Zeiger, G.D. Farquhar, I.R., Cowan, Stanford University Press, Stanford :385-429.
- Flécharde C.R., Fowler D., Sutton M.A. and Cape J.N., 1999: A dynamic chemical model of bi-directional ammonia exchange between semi-natural vegetation and the atmosphere. *Quart. J. R. Met. Soc.*, **125**, 2611-2641.
- Flesch T.K., Wilson J.D., 1992: A two-dimensional trajectory-simulation model for non-Gaussian, inhomogeneous turbulence within plant canopy. *Boundary-Layer Meteorol.*, **61**: 349-374.
- Flesch T.K., Wilson J.D., Yee E., 1995: Backward-Time Lagrangian Stochastic Dispersion Models and Their Application to Estimate Gaseous Emissions. *Journal of Applied Meteorology*, **34**: 1320-1332.
- Garratt J.R., 1990: The internal boundary layer - A review. *Boundary-Layer Meteorol.*, **50**: 171-203.
- Garratt J.R., 1992: The Atmospheric boundary Layer. *Cambridge university Press*, 316 pp.
- Garratt J.R., Segal M., 1988: On the contribution of atmospheric moisture to dew formation. *Boundary-Layer Meteorol.*, **45**: 209-236.
- Gash J.H.C., 1986: Observation of turbulence downwind of a forest-heath interface. *Boundary-Layer Meteorol.*, **36**: 227-237.
- Gopalakrishnan S.G., Sharan M., 1997: A lagrangian particle model for marginally heavy gas dispersion. *Atmos. Environ.*, **31(20)**: 3369-3382.
- Hall C.D., 1975: The simulation of particle motion in the atmosphere by a numerical random walk model. *Quart. J. R. Met. Soc.*, **101**: 235-244.

- Hill J.D., 1997: Application of computational modelling to ammonia dispersion from agricultural sources. *Ph.D. Thesis*, Imperial College Centre for Environmental Technology, University of London.
- Huber L., Itier B., 1990: Leaf wetness duration in a field bean canopy. *Agricultural and Forest Meteorology*, 51: 281-292.
- Huber L., Laville P., Fuentes J.D., 1999: uncertainties in isoprene emissions from a mixed deciduous forest using a canopy microclimate model. *Journal of Applied Meteorology*, 38(7):889-912.
- Husted S., Schjørring J.K., Nielsen K.H., Nemitz E., Sutton M., 1997: Determination of stomatal compensation points for ammonia in oilseed rape plants (*Brassica Napus* L.) under field conditions. *Soumis à Atmos. Environ.*
- Irvine M.R., Gardiner B.A., Hill M.K., 1997: The evolution of turbulence across a forest edge. *Boundary-Layer Meteorol.*, 84: 467-496
- Jacobs A.F.G., van Boxel J.H., El-Kilani R.M., 1994a: Night-time free convection characteristics within a plant canopy. *Boundary-Layer Meteorol.*, 71: 375-391.
- Jacobs A.F.G., van Pul A., El-Kilani R.M.M., 1994b: Dew formation and the drying process within a maize canopy. *Boundary-Layer Meteorol.*, 69: 367-378.
- Jarvis P.G., 1976: The interpretation of the variation in leaf water potential and stomatal conductance found in canopies in the field. *Phil. Trans. R. Soc. Lond. B.*, 273: 593-610.
- Jonas P.R., Barlett J.T., 1972: The numerical simulation of particle motion in a homogeneous field of turbulence. *J. Comp. Phys.*, 9, 290-302.
- Kloeden P.E., Platen E., 1992: Higher-order implicit strong numerical schemes for stochastic differential equations. *J. Stat. Phys.*, 66: 283-314.
- Kovaszny L.S.G., 1976: Revue des théories de la turbulence. In *la turbulence en mécanique des fluides*, Favre A., Kovaszny L.S.G, Dumas R., Gaviglio J., Coantic M., Gauthier-Villars, Bordas, Paris, pp. 411.
- Lamb R.G., Hogo H., Reid L.E., 1979: A lagrangian approach to modelling air pollution dispersion. Development and testing in the vicinity of a roadway. *US Environmental Protection Agency, EPA-600/4-79-023*.
- Landsberg J.J., Powel D.B.B., 1973: Surface exchange characteristics of leaves subject to mutual interference. *Agricultural Meteorology*, 12: 169-184.
- Leclerc M.Y., Thurtell G.W., Kidd G.E., 1988: Measurements and Langevin simulation of mean tracer concentration fields downwind from a circular line source inside an alfalfa canopy. *Boundary-Layer Meteorol.*, 43: 287-308.
- Lee R.L., Näslund E., 1998: Lagrangian stochastic particle model simulation of turbulent dispersion around buildings. *Atmos. Environ.*; 32(4): 665-672.
- Legg B.J. and Raupach M.R., 1982, Markov-Chain simulation of particle dispersion in inhomogeneous flows: The mean drift induced by a gradient in eulerian velocity variance, *Boundary Layer Meteorology*, 24 : 3 13.
- Leuning R., Denmead O.T., Miyata A., Kim J., 1999: Source/sink distributions of heat, water vapour, carbon dioxide and methane in a rice canopy estimated using Lagrangian dispersion analysis. *Agricultural and Forest Meteorology*, sous presse.
- Leuzzi G., Monti P., 1998: Particle trajectory simulation of dispersion around a building. *Atmos. Env.*, 32(2): 203-214.
- Ley A.J., 1982: A random walk simulation of two-dimensional diffusion in the neutral surface layer. *Atmos. Environ.*, 16: 2799-2808.
- Ley A.J., Thomson D.J., 1983: A random walk model of dispersion in the diabatic surface layer. *Quart. J. R. Met. Soc.*, 109: 847-880.

- Li Z., Lin J.D., Miller D.R., 1990: Air flow over and through a forest edge : A steady-state numerical simulation. *Boundary-Layer Meteorol.*, **51**: 179-197.
- Liu J., Chen J.M., Black T.A., Novak M.D., 1996: E -  $\epsilon$  modelling of turbulent air flow downwind of a model forest edge. *Boundary-Layer Meteorol.*, **77**: 21-44.
- Loubet B., Hill P.W., Milford C., Sutton M., Tang Y.S., Cellier P., 1999: Apoplastic, bulk ammonium and pH in leaves of *Lolium Perenne* L. and *Zea Mays* L. Effects of management practices and fertilisation. *En préparation*.
- Luhar A.K., Britter R.E., 1989: A random walk model for dispersion in inhomogeneous turbulence in a convective boundary layer. *Atmos. Environ.*, **23**: 1911-1924.
- Luhar A.K., Rao K.S., 1994: lagrangian stochastic model simulations of tracer data in nocturnal flows over complex terrain. *Atmos. Environ.*, **28(21)**: 3417-3431.
- Massman W.J., 1996: An analytical one-dimensional model of momentum transfer by vegetation of arbitrary structure. *Boundary-Layer Meteorol.*, **83**: 407-421.
- Massman W.J., Weil J.C., 1999: An analytical one-dimensional second-order closure model of turbulence statistics and the lagrangian time scale within and above plant canopies of arbitrary structure. *Boundary-Layer Meteorol.*, **91**: 81-107.
- Meneveau C., Sreenivasan K.R., 1987: Simple multifractal cascade model for fully developed turbulence. *Phy. Rev. Lett.*, **59**: 1424-1427.
- Meyers T.P., Paw U. K.T., 1986: Testing of a higher-order closure model for modelling airflow within and above plant canopies. *Boundary-Layer Meteorol.*, **37**: 297-311.
- Monin A.S., Yaglom A.M., 1971 : Statistical Fluid Mechanics: Mechanism of turbulence, vol. 1, *MIT Press*.
- Monin A.S., Yaglom A.M., 1975 : Statistical Fluid Mechanics: vol. 2, *MIT Press*.
- Monteith J.L., Unsworth M.H., 1990: Principles of Environmental Physics. 2nd edn., E. Arnold ed., 291 pp.
- Monti P., Leuzzi G., 1993: A closure to derive a three-dimensional well-mixed trajectory-model for non-Gaussian, inhomogeneous turbulence. *Boundary-Layer Meteorol.*, **80**: 311-331.
- Murphy C.E., Knoerr K., 1977: Simultaneous determinations of the sensible and latent heat transfer coefficients for tree leaves. *Boundary-Layer Meteorol.* **11**: 223-241.
- Näslund E., Rodean H.C., Nasstrom J.S., 1994: A comparison between two stochastic diffusion models in a complex three-dimensional flow. *Boundary-Layer Meteorol.* **67**: 369-384.
- Olioso A. Bethenod O., Rambal S., Tchamitchian M., 1995: Comparison of empirical leaf photosynthesis and stomatal conductance models. In *Photosynthesis: from light to Biosphere*. Proceedings of the 10<sup>th</sup> International Photosynthesis Congress, Montpellier, France, 20-25 August 1995, Ed. Paul Mathis, Kluwer academic publishers.
- Press W.H., Teukolsky S.A., Vetterling W.T., Flannery B.P., 1994: Numerical recipes in C, Second Edition. *Cambridge University Press*, 965p.
- Raupach M.R., 1989: A practical lagrangian method for relating scalar concentrations to source distributions in vegetation canopies. *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, **115**: 609-632.
- Raupach M.R., 1989: Stand overstorey processes. *Phil. Trans. Roy. Soc. London, B*, **324**: 175-190.
- Raupach M.R., Finnigan J.J., Brunet Y., 1996: Coherent eddies and turbulence in vegetation canopies: the mixing-layer analogy. *Boundary-Layer Meteorol.*, **78**: 351-382.
- Reid J.D., 1979: Markov chain simulations of vertical dispersion in the neutral surface layer for surface and elevated releases. *Boundary-Layer Meteorol.*, **19**: 157-162.
- Reynolds A.M., 1998a: A two dimensional lagrangien stochastic model for convective boundary layers with wind shear. *Boundary-Layer Meteorol.*, **86**: 345-352.

- Reynolds A.M., 1998b: On the formulation of stochastic models of scalar dispersion within plant canopies. *Boundary-Layer Meteorol.*, **86**: 333-334.
- Rodean H.C., 1996: Stochastic lagrangian models of turbulent diffusion. *Meteorol. Monographs.*, **26**, Amer. Meteorol. Soc., Boston, MA, 84 pp.
- Ryall D.B., Maryon R.H., Derwent R.G., Simmonds P.G., 1998: Modelling long-range transport of CFCs to Mace Head, Ireland. *Quart. J. R. Met. Soc.*, **124**: 417-446.
- Sawford B.L., 1982: Lagrangian Monte Carlo simulation of turbulent motion of a pair of particles. *Quart. J. R. Met. Soc.*, **108**: 207-213.
- Sawford B.L., 1993: Recent developments in the lagrangian stochastic theory of turbulent dispersion. *Boundary-Layer Meteorol.*, **62**: 197-215.
- Schjørring J.K., 1997: Plant-Atmosphere Ammonia Exchange. Quantification, Physiology regulation and interaction with environmental factors. *D.Sc. Degree*, Royal Veterinary and Agricultural University, Copenhagen, Denmark: 55p.
- Schuepp P.H., Leclerc M.Y., Macpherson J.I., Desjardins R.L., 1990: Footprint prediction from analytical solutions of the diffusion equation. *Boundary Layer Meteorology*, **50**: 355-373.
- Singles R.J., 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.
- Soize C., 1993, Méthodes mathématiques en analyse du signal, 1993, Masson.
- Stohl A., Thomson D.J., 1998: A density correction for lagrangian particle dispersion models. *Boundary-Layer Meteorol.* **90**: 155-167.
- Sutton M.A., Asman W.A.H., Schjørring J.K., 1994: Dry deposition of reduced nitrogen. *Tellus*, **46**: 255-273.
- 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**(S1): 349-361.
- Sutton M.A., Schjørring J.K., Wyers G.P., 1995: Plant-atmosphere exchange of ammonia. *Phil. Trans. Roy. Soc. Lond. A*, **351**: 261-278.
- Taylor G.E., Hanson Jr.P.J., D.D. Baldocchi, 1988: Pollutant deposition to individual leaves and plant canopies: sites of regulation and relationship to injury. In *Assessment of crop losses from Air Pollutants*, Eds. N.W. Heck, O.C. Taylor and O.T. Tingey, Elsevier Applied Science (London).
- Taylor G.I., 1921: Diffusion by continuous Movements. *Proc. London. Math. Soc. (2)*, **20**: 196-202.
- Tennekes H., 1983: Similarity relations, scaling laws and spectral dynamics. Pp. 37-64 in *Atmospheric Turbulence and Air Pollution Modelling*. Ed. F.T.M. Nieuwstadt and H. Van Dop. D Reidel publishing Company, Dordrecht Holland.
- Thompson R., 1971: Numeric calculation of turbulent diffusion. *Quart. J. R. Met. Soc.*, **97**: 93-98.
- Thomson D.J., 1984: Random Walk modelling of diffusion in inhomogeneous turbulence. *Quart. J. R. Met. Soc.*, **110**: 1107-1120.
- Thomson D.J., 1987 : Criteria for the selection of stochastic models of particle trajectories in turbulent flows. *J. Fluid Mech.*, **180**: 529-556.
- Turfus C., 1988: Calculating mean concentration for steady sources in recirculating wakes by a particle trajectory method. *Atmos. Environ.*, **22**(7): 1271-1290.
- Van der Hurk B.I.J.M., McNaughton K.G., 1995: Implementation of near-field dispersion in a simple two-layer surface resistance model. *Journal of Hydrology*, **166**: 293-311.

- Van Dop H., 1992: Buoyant plume rise in a lagrangian framework. *Atmos. Environ.*, **26A(7)**: 1335-1346.
- Van Dop H., Nieuwstadt F.T.M., Hunt J.C.R., 1985, Random walk models of particle displacements in inhomogeneous unsteady turbulent flows. *Phys. Fluid*, **28(6)**: 1639-1653.
- Wang M.C., Uhlenbeck G.E., 1945: On the theory of Brownian motion II. *Rev. Mod. Phys.*, **17**: 323-341.
- Weil J.C., 1990: A diagnosis of the asymmetry in top-down and bottom-up diffusion using a Lagrangian stochastic model. *J. Atmos. Sci.*, **47**: 501-515.
- Weil J.C., 1994: A hybrid lagrangian dispersion model for elevated sources in the convective boundary layer. *Atmos. Environ.*, **28(21)**: 3433-3448.
- Wilson J. D., Ward D.P., Thurtell G.W., Kidd G.E., 1982: Statistics of atmospheric turbulence within and above a corn canopy. *Boundary-Layer Meteorol.*, **24**: 485-519.
- Wilson J.D., Flesch T.K., 1993: Flow boundaries in random-flight dispersion models: enforcing the well-mixed condition. *Journal of Applied Meteorology*, **32**: 1695-1707.
- Wilson J.D., Flesch T.K., 1997: Trajectory curvature as a selection criterion for valid Lagrangian stochastic dispersion models. *Boundary-Layer Meteorol.*, **84**: 411-425.
- Wilson J.D., Legg B.J., Thomson D.J., 1983: Calculation of particle trajectories in the presence of a gradient in turbulent-velocity variance. *Boundary-Layer Meteorol.*, **27**: 163-169.
- Wilson J.D., Sawford B.L., 1996: Review of lagrangian stochastic models for trajectories in the turbulent atmosphere. *Boundary Layer Meteorology*, **78**: 191-210.
- Wilson J.D., Thurtell G.W., Kidd G.E., 1981a: Numerical simulation of particle trajectories in inhomogeneous turbulence - II. Systems with variable turbulent velocity scale. *Boundary-Layer Meteorol*, **21**: 423-441.
- Wilson J.D., Thurtell G.W., Kidd G.E., 1981b: Numerical simulation of particle trajectories in inhomogeneous turbulence - III. Comparison of predictions with experimental data for the atmospheric surface-layer. *Boundary-Layer Meteorol*, **21**: 443-463.
- Wilson T.B., Bland W.L., Norman J.M., 1999: Measurement and simulation of dew accumulation and drying in a potato canopy. *Agricultural and Forest Meteorology*, **93**: 111-119.
- Wong R.K.W., Hage K.D., 1995: Numerical simulation of pollutant dispersion in a small valley with supercritical Richardson number. *Boundary-Layer Meteorol.*, **73**: 15-33.
- Wyngaard J.C., 1982: Boundary Layer Modelling. In *Atmospheric Turbulence and Air Pollution Modelling*. Ed. F.T.M. Nieuwstadt and H. Van Dop., pp. 69-105, D Reidel Publ. Co, Dordrecht.

## IV. EXPERIMENTATIONS

### Résumé

Dans le but de valider le modèle de dépôt sec local, nous avons réalisé une série d'expérimentations consistant à mesurer la concentration en aval d'une source ligne d' $\text{NH}_3$  de 200 m de long dont le débit était contrôlé. La source était placée au bord d'un champ de maïs dont la hauteur a varié de 1 m à 2.2 m au cours de la période. La concentration moyenne était mesurée entre 10 et 150 m en aval de la source à l'aide de 30 "tubes à diffusion" placés dans et au-dessus du couvert. Le gradient vertical d' $\text{NH}_3$  était mesuré en continu à 150 m de la source. Un mât de bilan de masse, placé au bord du champ, permettait de contrôler le débit moyen de la source à 10 m en aval de celle-ci. Un mât micrométéorologique placé au milieu du champ permettait d'estimer la vitesse de frottement ( $u_*$ ) et la longueur de Monin et Obukhov ( $L$ ). Il donnait également le flux de chaleur sensible ( $H$ ), ainsi que la vitesse moyenne du vent dans et au-dessus du couvert. Un mât météorologique mesurait l'humidité relative de l'air ( $HR$ ), le rayonnement global ( $R_g$ ) et net ( $R_n$ ).

Ces mesures de flux de chaleur ont été utilisées pour estimer la résistance stomatique du couvert ( $R_s$ ) par inversion du bilan d'énergie. Des mesures de la résistance stomatique foliaire, de la hauteur du couvert et du  $LAI$ , ont été réalisées ponctuellement. Des mesures par anémométrie sonique 3D dans le couvert ont permis de caractériser la turbulence au milieu et en bordure du champ. En tout, 8 séries de mesures complètes ont été réalisées. Chaque série durait de 2 à 3 heures pendant lesquelles la source était mise en route.

La résistance stomatique du couvert  $R_s$  variait entre 10 et 10000  $\text{s m}^{-1}$ . La comparaison avec les valeurs mesurées directement sont satisfaisante. Les valeurs de  $\sigma_u$ ,  $\sigma_v$  et  $\sigma_w$  mesurées dans et au-dessus du couvert sont comparables aux valeurs classiques de la bibliographie. Les coefficients d'asymétrie ( $Sk_u = 1.0$ ,  $Sk_v = -1.5$ ) et d'aplatissement ( $Ku_u = 5.4$ ,  $Ku_w = 7.5$ ) des distributions de vitesse du vent dans le couvert témoignent d'un écoulement intermittent. Les spectres d'énergie des composantes  $u$ ,  $v$ , et  $w$  du vent indiquent par ailleurs que le bord du champ perturbe fortement les fluctuations basses fréquence des composantes  $u$  et  $v$  mais uniquement au-dessus du couvert. La composante  $w$  n'est pas affectée ni dans le couvert ni au-dessus.

Le flux vertical d' $\text{NH}_3$  estimé au-dessus du couvert à 162 m en aval de la source était positif, et variait entre 100 et 1000  $\text{ng NH}_3 \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ , de telle sorte qu'il y avait une "émission apparente" de la part du couvert. Il s'agit en fait d'un flux d'advection. La concentration moyenne en  $\text{NH}_3$  variait entre 700  $\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$  à 12 m en aval de la source et moins de 10  $\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$  150 m plus loin. La concentration était plus élevée dans le couvert qu'au-dessus à 12 m de la source mais c'était en général l'inverse à 162 m de la source. Les profils horizontaux de concentration moyenne dans le couvert se regroupent tous en une courbe unique lorsque qu'ils sont adimensionnés par l'échelle de concentration  $c_* = Q_{src} / (u_* h)$ , où  $Q_{src}$  est le débit de source. La courbe est du type puissance, et l'on a  $c / c_* = 4.2 (x / h)^{-1.5}$ . L'incertitude sur l'estimation des coefficients de cette courbe est discutée et elle est comparée avec d'autres modèles de concentration de surface.

Enfin, le dépôt sec local entre 10 et 150 m est estimé à partir de la concentration moyenne dans le couvert, de l'estimation de ( $R_s$ ), d'une estimation de  $R_w$  en fonction de  $HR$ , et d'une évaluation du point de compensation en fonction de l'apport d'azote. Les dépôts cumulés entre 10 et 150 m de la source variaient entre 1% et 15% de la quantité émise selon les simulations. Etant donné la grande incertitude sur l'estimation des paramètres  $R_s$ ,  $R_w$  et  $C_s$ , une étude de sensibilité a été réalisée. Elle révèle une distribution des estimations non gaussienne, avec une faible probabilité, mais non nulle, que le couvert émette de l'ammoniac au lieu d'en absorber. Ce résultat met en avant l'importance des paramètres  $C_s$  et  $R_w$  dans l'estimation des dépôts secs locaux.

Les résultats de cette expérimentation vont être utilisés dans le chapitre V pour valider le modèle de dépôt local. D'autres résultats expérimentaux sont utilisés dans le chapitre V. Ils sont brièvement décrits à la fin de ce chapitre.

## IV.1 Introduction

Les méthodes d'estimation directe des dépôts secs en conditions d'advection, c'est à dire avec un gradient horizontal de concentration, sont multiples. Elles sont le plus souvent basées sur les méthodes de bilan de masse qui consistent à estimer le flux vertical au niveau du sol (dépôt ou émission) comme la différence de flux horizontaux mesurés entre deux mâts placés en amont et aval de la zone étudiée (Denmead, 1995). Les défauts majeurs de cette méthode sont : (1) de potentiellement surestimer le flux de 10 à 20% (Raupach et Legg, 1984; Wilson et Shum, 1992), car elle néglige la composante turbulente du flux horizontal. (2) Dès que le fetch devient supérieur à quelques dizaines de mètres, le mât doit être placé très haut afin de mesurer à travers toute la couche limite interne qui s'est développée. La hauteur de cette couche limite interne est de l'ordre de  $X / 100$  où  $X$  est le fetch (Gash, 1986), mais elle est plus basse en conditions stables, et plus haute en conditions instables ainsi que sur des couverts très rugueux. Ces méthodes sont susceptibles de surestimer l'absorption, comme semblent le suggérer les résultats de Hill *et al.* (1998), qui ont mesuré des dépôts cumulés d' $\text{NH}_3$  d'environ 36% des quantités émises à 30 m en aval de la source.

Les deux défauts évoqués ci-dessus sont très restrictifs pour l'étude des dépôts secs à proximité d'une source sur un couvert développé, puisque d'une part les distances d'intérêt vont de une à plusieurs centaines de mètres (Asman *et al.*, 1989), et que d'autre part la présence de la végétation accroît la composante turbulente du flux horizontal (Asman, 1998).

D'autres méthodes qui utilisent le même principe de bilan de masse sont les méthodes de tunnels (Lockyer, 1984), qui (1) ne permettent pas d'avoir des fetchs suffisants, (2) modifient les caractéristiques turbulentes des échanges (Loubet *et al.*, 1999a) et, (3) demandent un équipement lourd lorsqu'il faut travailler avec une végétation développée telle que le maïs.

Il y a également les méthodes utilisant de l'ammoniac marqué avec l'isotope stable  $^{15}\text{N}$  (Lockyer et Whitehead, 1986; Vertes *et al.*, 1995). Dans ces méthodes, le principe est soit de marquer la source d' $\text{NH}_3$  (technique 1) soit de marquer le récepteur, c'est à dire la plante, avec le  $^{15}\text{N}$  (technique 2), puis de mesurer la dilution du  $^{15}\text{N}$  dans le récepteur. La première technique demande des quantités d'azote telles que le coût de l'expérimentation devient rapidement prohibitif.

La deuxième technique a montré toute son utilité pour étudier l'absorption d' $\text{NH}_3$  par la plante en conditions contrôlées (Sommer *et al.*, 1997). Elle présente toutefois un inconvénient majeur; Le dépôt est en réalité la somme de deux flux, l'un dirigé de l'atmosphère vers la feuille, et l'autre de la feuille vers l'extérieur, du fait de l'existence d'un point de compensation. La dilution du  $^{15}\text{N}$  dans la plante correspond alors à la seule composante entrante du flux et non pas au flux net, car l'émission d'ammoniac n'est pas discriminante, et n'entraîne donc aucune dilution isotopique (Figure IV.1).

La surestimation peut être évaluée puisqu'elle est égale à la composante sortante du flux, qui dépend du point de compensation stomatique  $C_s$ . L'erreur relative sur le flux mesuré par dilution isotopique peut donc être estimée par  $f_s / f_e = C_s / C_a$ , où  $f_s$  et  $f_e$  sont respectivement les flux sortant et entrant, et  $C_a$  est la concentration dans l'air. En prenant des valeurs typiques de  $C_s$  dans des écosystèmes intensifs ( $1-10 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ ) et de  $C_a$  à 100 m d'une source agricole ( $10-20 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ ), on obtient des erreurs qui varient entre 5% et 100%. Très près d'une source où  $C_a$  est très grand, l'erreur serait plus faible, mais elle pourrait être considérable au-delà de 100 m, où la concentration chute souvent en dessous de  $10 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$  (Fowler *et al.*, 1998), d'autant plus si le couvert possède un point de compensation élevé. Près d'une source intense, l'erreur pourrait également devenir importante par l'augmentation du point de compensation sous l'effet des dépôts atmosphériques intenses qui saturent la plante, comme certaines études semblent l'indiquer (Sommer *et al.*, 1991 ; Pitcairn *et al.*, 1998 ; voir §VI.2.3 pour une discussion).

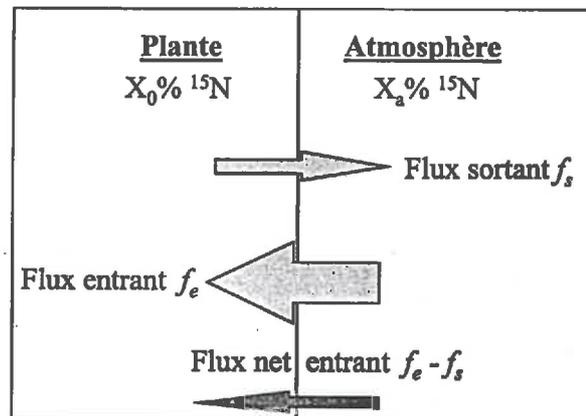


Figure IV.1. Illustration du problème de la mesure des flux d' $\text{NH}_3$  par la méthode de dilution du  $^{15}\text{N}$  lorsque le flux est la composante de deux flux opposés  $f = f_e - f_s$  ( $f$  compté positivement lorsqu'il y a dépôt). Les flux sortant de  $^{15}\text{NH}_3$  et  $^{14}\text{NH}_3$  sont respectivement  $Xf_s$  et  $(1-X)f_s$ , où  $X$  est la fraction de  $^{15}\text{N}$  dans la plante. De même les flux entrant sont respectivement  $X_a f_e$  et  $(1-X_a)f_e$ , où  $X_a$  est la fraction de  $^{15}\text{N}$  dans l'air (abondance naturelle,  $X_a = 0.3663\%$  ; Domenach, 1995). En résolvant le système d'équation obtenu, et en négligeant  $X$  ou  $X_a$  devant 1, il apparaît que la dilution isotopique du  $^{15}\text{N}$  dans la plante est représentative de  $f_e$  et non de  $f$ , [ $X(t) = (X_0 - X_a) \exp(-f_e t / m) + X_a$ , et vaut  $X_0$  à  $t = 0$  et tend vers  $X_a$  lorsque  $t \rightarrow \infty$ ].

A défaut de donner des estimations exactes, la méthode de dilution du  $^{15}\text{N}$  peut donner une estimation de la répartition spatiale des dépôts. Ainsi Sommer et Jensen (1991), en appliquant cette méthode avec des plantes en pots, placées à différentes distances d'une source, ont trouvé que les dépôts décroissaient entre  $800 \text{ ng NH}_3 \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$  à proximité de la source et  $200 \text{ ng NH}_3 \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$  à 130 m de celle-ci.

Une autre méthode consistant à lessiver les feuilles pour analyser la quantité d'ammoniac déposée ne prendrait pas en compte la composante stomatique du flux, mais elle reste intéressante pour déterminer la composante cuticulaire du dépôt. Par ailleurs, les flux sont trop faibles pour détecter l'accroissement de la quantité d'azote dans une plante exposée pendant quelques heures aux dépôts : un dépôt de  $1 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$  correspond à quelques mg

par m<sup>2</sup> de surface de sol à comparer aux 5 à 10 g d'azote dans la plante sur la même biomasse. Ceci reviendrait donc à détecter une variation d'un millième à 1 dix millièmes de la quantité d'azote par une méthode destructive et donc sujette à la variabilité inter-plantes.

Après avoir passé en revue (de façon non exhaustive) les différentes méthodes permettant d'estimer les dépôts secs, il apparaît qu'aucune n'est réellement adaptée à l'estimation des dépôts locaux, mais que la méthode par bilan de masse est la plus adaptée, à condition que le mât soit suffisamment haut. Nous avons donc mis en place une expérimentation où la concentration dans l'air a été mesurée, en aval d'une source ligne d' $\text{NH}_3$  contrôlée.

Ce chapitre décrit l'expérimentation mise en place pour obtenir les jeux de données nécessaires à la validation du modèle, et les résultats obtenus. L'objectif était de mesurer la concentration en aval d'une "source ligne" d' $\text{NH}_3$  dont le débit était contrôlé, et de mesurer dans le même temps les variables nécessaires à l'estimation des paramètres du modèle. D'autres jeux de données (Sutton *et al.*, 1998), qui ont également été utilisés pour la validation du modèle, sont brièvement décrits en fin de chapitre.

## IV.2 Matériel et méthode

### IV.2.1 Description générale

L'expérimentation s'est déroulée du 24/06/97 au 24/07/97 dans la commune de Davron (78), à environ 3 km au nord de l'unité de Recherche en Bioclimatologie de l'INRA à Thiverval-Grignon (Figure IV.2). La parcelle choisie était une parcelle de maïs plantée à la mi-mai avec une densité d'environ  $9 \times 10^4$  pieds par ha, d'environ 300 m sur 400 m, et ayant reçu  $160 \text{ kg N ha}^{-1}$  sous forme  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  en granules.

Les rangs étaient orientés d'est en ouest (exactement  $107^\circ\text{N}$ ), et la parcelle était bordée d'une rangée d'arbres d'à peu près 15 m de hauteur au sud, et d'une double rangée d'arbres de même hauteur à l'ouest, d'un chemin en terre à l'est, autorisant l'accès, et d'un champ de blé au nord. Les autres champs avoisinants étaient du maïs au sud et à l'ouest, et du Colza à l'est. La ferme la plus proche est située à environ 4000 m, et la source potentielle la plus proche, est une prairie pâturée par quelques chevaux à 2000 m au nord.

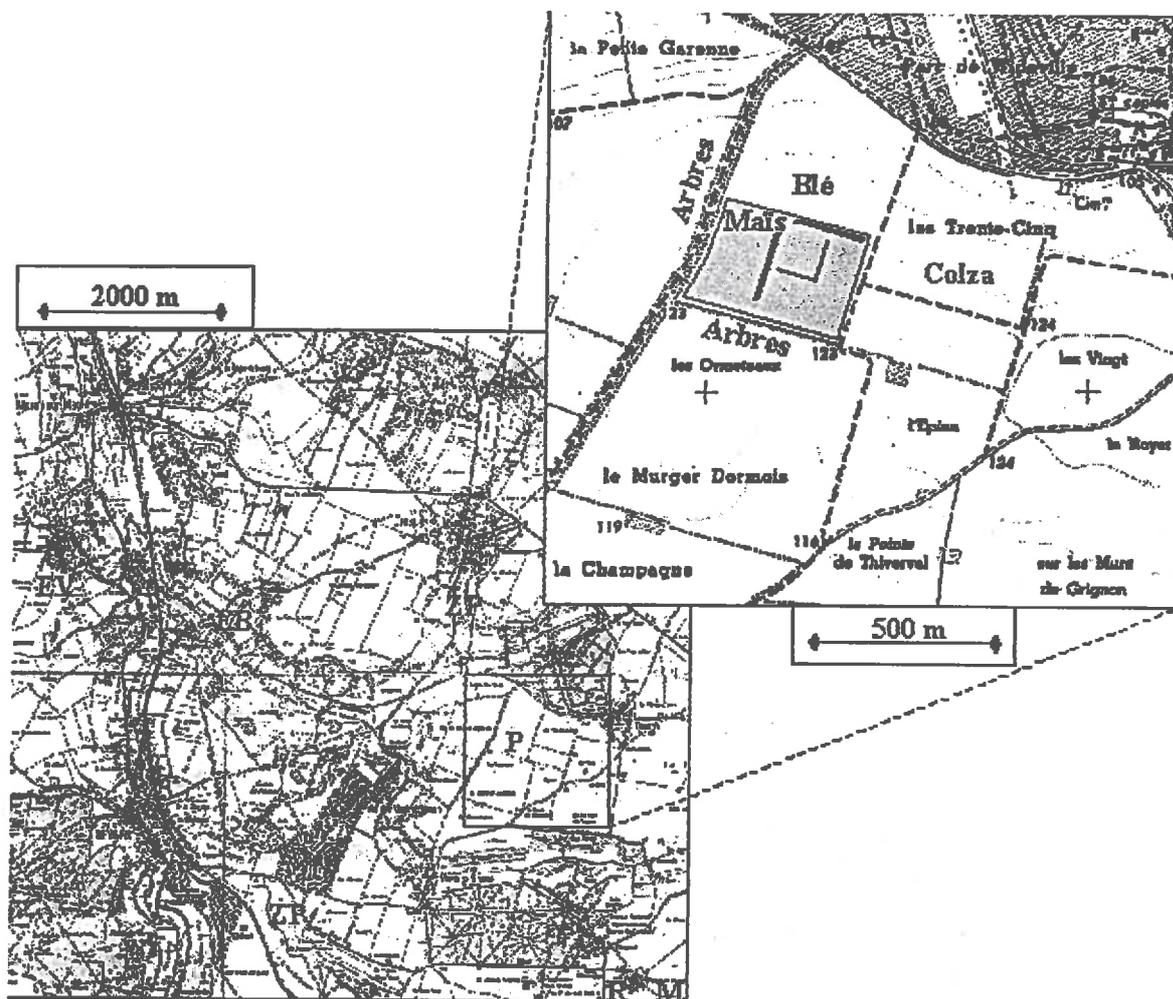
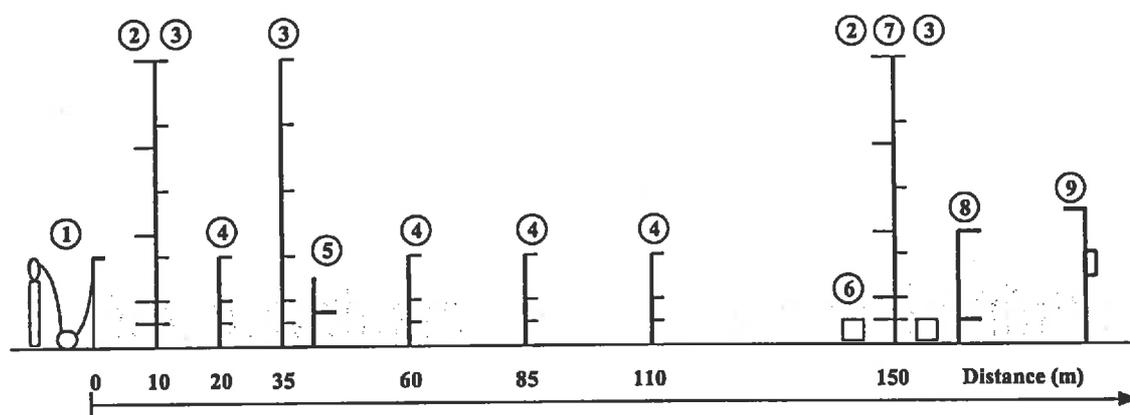


Figure IV.2. Carte de la parcelle où a eu lieu l'expérimentation, topographie des alentours, et la localisation des sources d' $\text{NH}_3$  potentielles. P: Parcelle expérimentale. EB: élevage bovin. EV: Volaille pour ponte. ZP: Zone de pâturages. R: Station de recherche de l'INRA. M: mât météorologique du réseau STEFCE. Coordonnées du site  $48^{\circ}52'$  nord,  $1^{\circ}56'$  est. Echelles indiquées sur les cartes.

Le dispositif expérimental est schématisé sur la Figure IV.3. Il est composé d'une source d'ammoniac contrôlée de 200 m de long (①) (voir Figure IV.2), d'un mât de "bilan de masse" (② + ③) permettant de contrôler le débit de la source, de 7 mâts de mesure de concentration de hauteurs 3 (④) ou 5 m (⑤), portant respectivement 3 ou 6 tubes à diffusion, de trois anémomètres soniques répartis sur deux mâts (⑥ et ⑦), d'une mesure de gradient d' $\text{NH}_3$  en deux points au-dessus du couvert en continu ( ), d'une mesure de profils de température et de vitesse de l'air à 5 niveaux (mât micrométéorologique) (⑧), et d'un mât météorologique classique (⑨). Sur ce dernier mât, les températures de feuilles, ainsi que les températures et flux de chaleur dans le sol, étaient également mesurés. Par ailleurs, la direction du vent était mesurée sur le mât micrométéorologique.



**Figure IV.3.** Schéma du dispositif expérimental au champ. ① Source d'ammoniac contrôlée, constituée d'une bouteille d'ammoniac pur sous pression, d'une pompe, et d'un tube de 200 m de longueur, percé de 200 aiguilles. ② Mesure de la vitesse moyenne du vent à 5 niveaux. ③ Mesure de la concentration moyenne avec des "tubes à diffusion" à 6 niveaux. ④ Idem, mais à 3 niveaux. ⑤ Anémomètre sonique dans le couvert. Mesure du gradient de concentration entre deux niveaux situés au-dessus du couvert, et estimations des flux de chaleur par méthode du gradient. ⑦ Mesure de la température de l'air à 5 niveaux par prises ventilées. ⑧ Deux anémomètres soniques dans et au-dessus du couvert. ⑨ Mât météo classique, et mesure des flux de chaleur dans le sol, et des températures de feuilles.

La concentration en amont aurait dû être mesurée, mais l'appareil concerné est tombé en panne durant la mise en place de l'expérimentation. Le système de mesure en continu des gradients de concentration en  $\text{NH}_3$  a été utilisé pour palier à ce problème : les concentrations mesurées au-dessus du couvert avant la mise en route de la source et quelque temps après sa fermeture ont permis de calculer la concentration moyenne de fond au cours des émissions. Les concentrations en aval de la source étaient d'un à plusieurs ordres de grandeur supérieures à la concentration de fond estimée ainsi. Cela montre que l'impact de la concentration de fond n'a de toutes les façons pas été important, ce qui est confirmé par la carte des alentours (Fig. IV.2) qui montre que l'élevage le plus proche est à plus d'1 km du champ. La concentration de fond issue de cet élevage aurait difficilement pu être supérieure à quelques  $\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$  de jour (Fowler *et al.*, 1998; Sommer et Jensen, 1991).

Le protocole expérimental consistait à mettre en route la source lorsque la direction du vent était propice, c'est à dire lorsque le vent était dans l'axe des mâts, puis à démarrer l'échantillonnage de l'air quelques minutes plus tard simultanément sur tous les mâts. La durée d'une expérimentation variait de 1h30 à 2h00. Au total, 11 séries de mesures ont été réalisées sur la période, desquelles seulement huit ont pu être exploitées. Les dates et durées de ces huit expérimentations sont résumées dans le Tableau IV.1.

En plus de ce dispositif, la physiologie du couvert a été suivie, avec des mesures du LAI (surface de feuille par unité de surface de sol), de la hauteur du couvert, ainsi que des contrôles de la résistance stomatique avec un poromètre (Mk3, Delta-T).

Tableau IV.1. Dates, jours, heures de mise en route et d'arrêt de la source, et durée des huit séries de mesures pour lesquelles toutes les données sont disponibles.

Numéro de la série	Date	Jour Julien	Mise en route de la source	Arrêt de la source	Durée (mn)
1	24/06/99	175	09.30	13.01	211
2	08/07/99	189	09.00	12.20	200
3	08/07/99	189	12.45	16.20	215
5	10/07/99	191	13.51	15.51	120
6	11/07/99	192	13.05	16.00	175
7	16/07/99	197	13.25	15.28	123
8	17/07/99	198	09.10	13.00	230
10	23/07/99	204	13.20	16.02	162

Sur la période de l'expérimentation, la hauteur du couvert a augmenté entre 1 m et 2.1 m, et il a été nécessaire de rehausser à plusieurs reprises les mâts de mesure micrométéorologiques, météorologiques, et de bilan de masse (Figure IV.3). Le Tableau IV.2 indique les différentes hauteurs de mesure et les dates auxquelles elles ont été changées.

Tableau IV.2. Hauteurs de mesure des différents mâts, exprimées en hauteur au-dessus du sol. Deux hauteurs séparées d'un tiret indiquent deux niveaux de mesure.  $U$ ,  $HR$  et  $T_a$  sont respectivement la vitesse du vent, l'humidité relative et la température de l'air.

Date	Mât météo. $U$ , $HR$ and $T_a$	Mât micrométéo. $U$ , $T_a$	Mât micrométéo. $NH_3$	Mât bilan de masse $U$ et $T_a$	Anémomètre sonique*	Mât tubes à diffusion $NH_3$ (m)
24/06/97	2 m	0.72 - 3.35 m	0.72 - 1.68 m	0.5 - 3.0 m	0.5 - 2.5 m	0.7, 1.0, 1.5, 2.4, 3.1, 4.5
08/07/97	-	-	1.68 - 2.44 m	-	-	-
10/07/97	-	-	2.44 - 3.35 m	-	-	-
17/07/97	-	-	-	1.0 - 5.0 m	-	-
21/07/97	-	0.95 - 5.00 m	-	-	-	-
23/07/97	3 m	-	-	-	-	-

\* Les mesures soniques ont été réalisées seulement les 24/06, 03/07, 29/07, et 31/07.

Dans la suite, on donne les détails du dispositif expérimental, et de l'analyse des données.

#### IV.2.2 Source d'ammoniac gazeux

La source d'ammoniac consistait en un tube de PVC de 0.02 m de diamètre interne et 200 m de longueur, percé tout les 2 m par des aiguilles de seringue en acier inoxydable (TERUMO 0.45×12 mm) de 0.45 mm de diamètre interne et de 12 mm de long, collées au tube. L'ammoniac provenait d'une bouteille de 44kg d' $NH_3$  pur à 99.96%, pressurisée à 7 bar. Le débit en était contrôlé par un détendeur de pression d'entrée maximale 55 bar et de sortie réglable 0.3-8.0 bar (AIR LIQUIDE). L'ammoniac pur était mélangé à de l'air prélevé en amont avec une pompe à un débit  $50 \text{ l min}^{-1}$  environ, et était injecté dans le tube en PVC en son milieu. Le fort débit d'air et la taille des aiguilles devaient permettre d'assurer une répartition uniforme de l'émission sur la largeur du tube, bien que ce point n'ait pas été contrôlé expérimentalement, mais seulement simulé par calcul.

Le tube en PVC était maintenu au-dessus du couvert à l'aide de 40 tubes en aluminium

supportant un câble d'acier tendu. La source a été successivement placée à 1.2 m au-dessus du sol jusqu'au 11/07, puis 2.5 m. Pour essayer de se placer au mieux par rapport à la direction du vent la source a été placée dans un premier temps à l'ouest, perpendiculaire aux rangs et en plein milieu du champ, puis au nord après le 24/06 au bord du champ (Figure IV.2).

Le débit d' $\text{NH}_3$  était réglé à l'aide du manomètre de la bouteille, et contrôlé avec un débitmètre à bille ou rotamètre ( $0\text{-}45 \text{ l min}^{-1}$ , précision 2%) étalonné auparavant à 1 atm, et  $20^\circ\text{C}$  avec de l'air, à l'aide d'un débitmètre massique (INSTRUTECH,  $1\text{-}50 \text{ l min}^{-1}$ , précision 0.2 % Pleine échelle). La pression en sortie du détendeur était fixée à 2.5 bar. La température n'était pas mesurée, mais elle peut être supposée égale à celle de l'air ambiant (malgré la forte détente du gaz) étant donné les 5 m de tubes reliant le manomètre au débitmètre. Le débit mesuré en litre d'air a été corrigé pour tenir compte de la densité de l'ammoniac, à la pression de sortie de la bouteille et la température de l'air enregistrée dans le couvert. En effet, si l'on considère que le coefficient de traînée  $C$  du flotteur est indépendant de la viscosité, le débit volumique dans un rotamètre est inversement proportionnel à la racine carré de la densité du fluide (Ower and Pankhurst, 1966). Le *débit massique* d'ammoniac  $q_{\text{NH}_3}$ , s'exprime donc simplement en fonction du *débit volumique* d'air  $Q_{\text{air}}$  lu sur le rotamètre par :

$$q_{\text{NH}_3} = Q_{\text{air}} \sqrt{\rho_{\text{NH}_3} \rho_{\text{air}}} \quad (\text{IV.1})$$

où  $\rho_{\text{NH}_3}$  et  $\rho_{\text{air}}$  sont respectivement les densités de l'ammoniac et de l'air (à pression et température de référence, 1 atm.,  $20^\circ\text{C}$ ). Pour une pression de 2.5 atm, et une température de  $24^\circ\text{C}$ , le facteur de correction est de -16%, et il variait entre -15% et -19% pour les conditions de l'expérimentation. Les débits ainsi corrigés, et l'intensité par mètre de source correspondante, sont présentés dans le Tableau IV.3. L'incertitude sur la mesure a été estimée à partir de l'erreur de lecture sur le débitmètre qui est de  $\frac{1}{2}$  division, soit au maximum  $0.3 \text{ l min}^{-1}$ , de l'erreur sur la mesure de température qui a été estimée à  $1^\circ\text{C}$  maximum, et sur la pression qui est de  $\frac{1}{2}$  division soit 0.05 bar. L'erreur relative s'élève au maximum à 9%, et est répartie en une fraction due à la mesure de pression (2%), de température (5%), et de débit (2%). La mesure précise de la température afin de calculer le débit massique à partir d'une mesure de débit volumique peut s'avérer cruciale, comme l'indique l'erreur relative de 5% par degré.

Tableau IV.3. Débits corrigés de la densité de l'ammoniac à la température de l'air et la pression de sortie du manomètre, et intensité équivalente de la source par mètre linéaire. Le détail du calcul de l'incertitude sur la mesure est indiqué dans le texte.

Série	Débit corrigé g NH <sub>3</sub> min <sup>-1</sup>	Intensité de source équivalente µg NH <sub>3</sub> m <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup>	Incertainitude %
1	18.2	1514	9%
2	17.9	1493	7%
3	9.9	829	8%
5	16.3	1358	7%
6	13.2	1099	8%
7	16.3	1362	7%
8	14.8	1235	8%
10	15.9	1326	7%

L'intensité de source équivalente varie entre 850 µg NH<sub>3</sub> m<sup>-1</sup> s<sup>-1</sup> et 1520 µg NH<sub>3</sub> m<sup>-1</sup> s<sup>-1</sup>, ce qui est comparable à des émissions de 15 à 30 µg NH<sub>3</sub> m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup> pour une bande de lisier de 50 m de large. Ces débits linéaires de source sont équivalents à ceux d'une bande de lisier de 5 à 50 m de large pendant les quelques jours qui suivent un épandage de lisier (Générmont *et al.*, 1997), et d'environ 10 fois plus que l'émission moyenne depuis un bâtiment d'élevage intensif (Fowler *et al.*, 1998). Elles sont également entre 5 et 10 fois supérieures aux émissions moyennes mesurées sur prairie pâturée de 500 m de large (Hatch *et al.*, 1990; Jarvis *et al.*, 1991). Les intensités d'émission obtenues correspondent donc aux pics qui sont susceptible d'être observés après épandage, ou ponctuellement à proximité de bâtiment d'élevage ou des prairies pâturées.

#### IV.2.3 Mesures micrométéorologiques

Un certain nombre de mesures micrométéorologiques ont été réalisées sur le site dans le but de (1) bien caractériser les coefficients d'échange turbulents, (2) connaître le microclimat du couvert, pour en déduire, entre autres, l'ouverture stomatique, et (3) obtenir une base de données aussi complète que possible pour permettre l'analyse critique des concentrations et flux mesurés.

##### IV.2.3.1 Précipitations, rayonnement, humidité et température de l'air

Les précipitations étaient mesurées à la station météorologique située environ à 1.5 km du site expérimental (Site M sur la Figure IV.2), sur une base de temps de 15 min. La température et l'humidité de l'air, ainsi que le rayonnement solaire étaient également mesurés sur ce site, et servent de référence.

Sur le site, un mât météorologique classique mesurait, aux hauteurs indiquées sur le Tableau IV.2, l'humidité relative de l'air  $HR$  (HMP35A, Vaisala), la vitesse du vent  $U$  avec un anémomètre à coupelle (Cimel, CE 155), la température de l'air  $T_a$  avec un thermocouple cuivre-constantan ventilé (Thermoelectric), le rayonnement solaire  $R_g$  avec un pyranomètre (CM6B, Kipp and Zonen) et le rayonnement net  $R_n$  (S1, Swissteco). Toutes ces mesures

étaient faites à 2 m au-dessus du sol avant le 23/07 et à 3 m après.

La direction du vent était mesurée à 5 m du sol, sur le mât micrométéorologique avec une girouette (Vech Instruments), et la valeur moyenne calculée à l'aide d'une procédure évitant les erreurs autour de la direction 0° (qui se trouve être aussi 360°), et pondérée par la vitesse du vent (voir documentation Campbell Scientific).

Le flux de chaleur dans le sol était également mesuré à 10 cm sous la surface du sol, dans l'inter-rang, avec deux fluxmètres (Heat Flow Transducer 3.1, Radiation and Energy Balance Systems). La température du sol était également mesurée à 0 cm, -5 cm, -10 cm, -20 cm et -50 cm avec respectivement à chaque profondeur 4, 4, 3, 2, et 1 thermocouple(s) (Thermoelectric) recouverts d'une gaine plastique.

#### IV.2.3.2 Profils de vent et de température dans et au-dessus du couvert

La vitesse de l'air était mesurée à 5 niveaux sur les mâts bilan de masse (BM) et micrométéorologiques (UM) (② sur la Figure IV.3), avec deux types d'anémomètres à coupelles (MCB; Cimel, CE 155). Les anémomètres étaient placés à 0.7, 1.0, 1.7, 2.45, 3.35 m sur le mât UM, et 0.5, 1.0, 1.5, 2.0 et 3.0 m sur le mât BM. En raison de la croissance de la végétation, le 17/07 l'anémomètre placé à 0.5 m sur le mât BM a été déplacé à 5.0 m, et la même opération a été réalisée sur le mât UM le 21/07. La vitesse du vent était mesurée toutes les secondes et la moyenne et l'écart-type des mesures étaient calculés sur 15 min.

Le seuil de démarrage des anémomètres étant de  $0.2 \text{ m s}^{-1}$ , toute valeur moyenne en dessous de ce seuil n'a pas été retenue. Par ailleurs les anémomètres à coupelles possèdent une inertie qui biaise la dynamique de réponse aux fluctuations de vitesse vent (Kaimal et Finnigan, 1994). En termes simples, le temps de réponse de l'anémomètre étant de 3 s, le spectre de transmission du capteur est tronqué aux fréquences supérieures à 1/3 Hz, et l'énergie des fluctuations contenues dans cette partie du spectre n'est donc pas transmise. Nous avons tenté de corriger ce biais en supposant que (1) l'anémomètre est équivalent à un filtre passe-bas, c'est à dire qu'il laisse passer toutes les fréquences en dessous de 1/3 Hz, et coupe toutes celles au-dessus, et (2) que le spectre de puissance de la composante horizontale du vent  $S_u(f)$ , est décrit par l'expression universelle dans la couche limite de surface (Kaimal et Finnigan, 1994) :

$$S_u(f) = \frac{0.3 n^{-2/3} u_*^2 \Phi_\epsilon^{2/3}}{f} \quad (IV.2)$$

$$n = \frac{fz}{U(z)} \quad (IV.3)$$

où  $f$  est la fréquence cyclique du signal,  $n$  est la fréquence adimensionnée,  $z$  est la hauteur,  $U(z)$  est la vitesse moyenne du vent à la hauteur  $z$ ,  $u_*$  est la vitesse de frottement, et  $\Phi_\epsilon$  est la fonction adimensionnée de dissipation d'énergie cinétique turbulente (ECT) en chaleur, qui est

une fonction de  $z/L$  (Eqn. II.29), où  $L$  est la longueur de Monin et Obukhov. Deux autres hypothèses sont nécessaires : (3) la vitesse mesurée par l'anémomètre soit égale à la composante horizontale de la vitesse moyenne du vent  $U$ , et (4)  $\sigma_v^2 = 4/3 \sigma_u^2$  (Kaimal et Finnigan, 1994; p37). Après avoir rappelé que la variance d'un signal est égale à l'intégrale sur toutes les fréquences de son spectre de puissance, la correction s'exprime comme l'intégrale de  $S_u(f)$  sur les fréquences supérieures à 1/3 Hz :

$$C\sigma_u^2 = \int_{1/3}^{\infty} S_u(f) df = 0.3 u_*^2 \Phi_\epsilon^{2/3} (z/U)^{-2/3} \int_{1/3}^{\infty} f^{-5/3} df \quad (IV.4)$$

$$C\sigma_u^2 = 0.2 u_*^2 \Phi_\epsilon^{2/3} (z/U)^{-2/3} 3^{2/3} \quad (IV.5)$$

où  $C\sigma_u^2$  est la correction à apporter à  $\sigma_u^2$  mesurée. Cette méthode de correction peut amener à surestimer  $\sigma_u^2$  dans le couvert, car la décroissance du spectre de puissance est plus rapide que la loi en  $-5/3$  utilisée ici et qui découle de l'hypothèse d'isotropie locale. En effet, l'action de la traînée de pression et de frottement sur les éléments du feuillage, entraîne un transfert rapide de l'énergie des grosses structures vers les petites (cf. §II.2.4- II.2.5). L'erreur commise est typiquement de 11% (Nemitz *et al.*, 1998). La correction n'a été appliquée qu'au-dessus du couvert, c'est à dire dans les conditions où l'hypothèse de couche de surface est justifiée.

La température de l'air était mesurée aux mêmes hauteurs que la vitesse du vent, mais sur le mât micrométéorologique uniquement. Les mesures étaient réalisées avec des thermocouples cuivre-constantan, ventilés et protégés du rayonnement direct, afin d'éviter le réchauffement radiatif des capteurs. Etant donné la puissance requise par cette dernière, elle était coupée la nuit lorsque le groupe électrogène était arrêté. Comme les thermocouples sont protégés par une plaque en aluminium, et que le flux radiatif de nuit était bien moins important que de jour (~15%), les mesures de nuit ont tout de même été utilisées telles quelles. Deux thermocouples cuivre-constantan 0.1 mm non ventilés étaient également placés sur le mât bilan de masse (Tableau IV.2).

La température des feuilles est essentielle pour connaître l'évolution journalière du point de compensation. Elle était également mesurée en continu à l'aide de 16 thermocouples fins, cuivre-constantan de 0.1 mm de diamètre, placés au contact des feuilles à l'aide de sparadrap blanc poreux, par-dessous, afin d'éviter tout réchauffement par rayonnement solaire direct. Les 16 thermocouples étaient partagés en 4 groupes de 4 capteurs placés sur des feuilles exposées est, sud, ouest, et nord à des hauteurs variées, afin de donner une température moyenne représentative de l'ensemble du couvert. Aucune différence significative entre chacune des orientations n'ayant été trouvée, la température du couvert est donc exprimée comme la moyenne de ces 16 capteurs, l'écart-type donne quant à lui une indication sur les variations liées à l'orientation et à la hauteur de la feuille.

### IV.2.3.3 Flux estimés par la méthode aérodynamique simplifiée

Tous les flux de scalaires étaient estimés à partir d'une mesure de gradient en deux points  $z_1$  et  $z_2$  au-dessus du couvert (hauteur par rapport au plan de référence  $d$ ), à l'aide de la méthode aérodynamique simplifiée décrite en détail dans Itier (1981), et que nous exposerons brièvement ici. Cette méthode est une simplification de la méthode des gradients et ne requiert la mesure de la vitesse moyenne du vent  $\bar{u}$  et la température de l'air  $T_a$  qu'à deux hauteurs (en toute rigueur le gradient d'humidité de l'air également). Cette méthode qui a été comparée à la méthode des gradients avec succès, permet d'obtenir directement la diffusivité turbulente pour la chaleur  $K_h(z_m)$  à la hauteur moyenne de mesure  $z_m = \sqrt{z_1 z_2}$ , et par extension pour tous les scalaires. A partir de  $K_h$  et du nombre de Richardson de flux  $Ri$ , on retrouve la longueur de Monin et Obukhov  $L$  et la vitesse de frottement  $u_*$  :

$$L = \frac{\Phi_H(R_i) z_m}{R_i \Phi_m^2(R_i)} \quad (IV.6)$$

$$u_* = \frac{K_h \Phi_H(R_i)}{k z_m} \quad (IV.7)$$

$$R_i = \frac{g}{T_a} \ln(z_2/z_1) \frac{\Delta T}{\Delta \bar{u}^2} \quad (IV.8)$$

où  $g$  est l'accélération de la pesanteur,  $\Phi_H(R_i)$  et  $\Phi_m(R_i)$  sont les gradients adimensionnés respectivement de chaleur et de quantité de mouvement, exprimés en fonction de  $Ri$  (voir par exemple Kaimal et Finnigan, 1994 ; Chapitre 1),  $T_a$  est la température de l'air,  $\Delta T$  et  $\Delta \bar{u}$  sont respectivement les différences de température de l'air et de vitesse du vent entre les hauteurs  $z_2$  et  $z_1$  :

$$\begin{cases} \Phi_H = \Phi_m = (1 + 5 Ri)^{-1} & Ri \geq 0 \\ \Phi_H = \Phi_m^2 = (1 - 16 Ri)^{-1/2} & Ri \leq 0 \end{cases} \quad (IV.9)$$

Les flux verticaux de chaleur sensible  $H$  et les flux d' $\text{NH}_3$   $F_{\text{NH}_3}$  sont alors calculés à partir de l'expression classique de diffusion turbulente :

$$H = -K_h(z_m) z_m \frac{\Delta T}{\ln(z_2/z_1)} \quad (IV.10)$$

$$F_{\text{NH}_3} = -K_h(z_m) z_m \frac{\Delta C}{\ln(z_2/z_1)} \quad (IV.11)$$

où  $\Delta C$  est la différence de concentration entre la hauteur  $z_2$  et la hauteur  $z_1$ . Comme la méthode des gradients, cette méthode requiert que les capteurs soient placés suffisamment haut au-dessus du couvert pour être en dehors de la sous-couche de rugosité (SCR) (Cellier et Brunet, 1992), les deux niveaux de hauteur les plus hauts étaient donc utilisés pour calculer les flux de chaleur sensible. Ces niveaux étaient 2.44 m et 3.26 m avant le 21/07 et 3.26 m et 5.0 m après. Les gradients d' $\text{NH}_3$  étaient mesurés entre 0.72 m et 1.65 m le 24/06 puis 1.65 m

et 2.44 m entre le 08/06 et le 10/06, puis 2.44 m et 3.26 m après, ce qui reste un peu faible pour être en dehors de la SCR, mais nécessaire étant donné le faible fetch ( $\leq 200$  m).

#### IV.2.4 Mesure continue des gradients de concentration en $\text{NH}_3$

Le gradient de concentration était mesuré au-dessus du couvert à l'aide d'un système constitué de deux "denuders" rotatifs et de deux analyseurs d' $\text{NH}_4^+$  par conductimétrie, décrits par Wyers *et al.* (1993), aux hauteurs indiquées dans le Tableau IV.2. Les "denuders" sont constitués de deux tubes en verre placés l'un dans l'autre de telle sorte qu'ils laissent un espace annulaire à travers lequel l'air, dont la concentration est à mesurer, est aspiré, et une solution circule en sens inverse. L'ensemble est légèrement incliné pour que la solution s'écoule par gravité dans le tube, et est mis en rotation à l'aide d'un moteur afin de bien répartir la solution de captage sur les parois des tubes. L'efficacité de captage des denuders est de l'ordre de 98% (Wyers *et al.*, 1993).

L'ammoniac une fois piégé, est pompé ( $1-2 \text{ ml min}^{-1}$ ) vers l'analyseur, qui consiste en un mélangeur / débulleur dans lequel la solution est mélangée avec une solution concentrée de soude (0.5 M), dans le rapport de volume soude/solution 1 : 25. Le mélange qui contient alors la plupart de  $\text{NH}_x$  sous forme  $\text{NH}_3$  passe sur une membrane semi-perméable au gaz, à travers laquelle  $\text{NH}_3$  diffuse. De l'autre côté de la membrane circule de l'eau purifiée dans une colonne échangeuse d'ion, qui ne contient donc comme ions que l'ammoniac qui a diffusé à travers la membrane. La conductivité de la solution mesurée en continu donne donc accès, moyennant calibrage, à la concentration en  $\text{NH}_4^+$ .

Plusieurs modifications ont été apportées au système décrit par Wyers *et al.* (1993) afin d'affiner la mesure du gradient. Une électrovanne permutait toutes les dix minutes les tubes transportant la solution depuis le denuder vers l'analyseur, de telle sorte que successivement chacun des denuders était connecté à chacun des analyseurs. Ce système permet d'obtenir en continu la mesure du gradient sur chaque analyseur et de minimiser ainsi l'erreur due à l'analyse de la solution.

Étant donné les différences de pressions dans les tubes venant de hauteurs différentes (environ 0.1 bar), les débits liquides étaient mesurés en continu avec un débitmètre massique à 0.2% de précision (INSTRUTECH). L'écart entre les débits liquides aux deux hauteurs était de l'ordre de 15%. Les débits d'air étaient également mesurés continuellement avec un débitmètre massique à 0.2% de précision (INSTRUTECH), et ceux-ci étaient très comparables dans chaque denuder.

Le système n'était mis en route que les jours où la source d' $\text{NH}_3$  fonctionnait, et il était calibré à la fin de chaque journée avec des solutions étalons de 0, 50 et  $500 \mu\text{g NH}_4^+ \text{ l}^{-1}$ , passant dans tout le système, denuder inclus. Cette précaution a été prise pour éviter un biais éventuel lié aux effets des différences de pression entre les deux voies sur l'analyseur,

notamment sur la membrane semi-perméable. Les résultats montrent que la permutation des voies n'entraîne que de faibles variations de la conductivité ; environ 1% pour la solution étalon de concentration 0, et 0.5% pour les deux autres.

La conductivité des deux analyseurs, la température et le débit des solutions, les débits d'air, ainsi que la position de l'électrovanne étaient enregistrés toutes les minutes sur une acquisition de données (Campbell 21X). Ces données ont été utilisées pour calculer la concentration moyenne en  $\text{NH}_3$  toutes les 10 min. Le délai entre le moment où la solution passait dans le denuder et le moment où elle était mesurée de façon stable dans l'analyseur était d'environ 2 min. Il était recalculé en ligne, pour tenir compte des débits effectivement mesurés.

L'utilisation de deux analyseurs couplés à deux denuders a permis d'estimer l'incertitude sur la mesure. L'écart-type de la concentration sur 10 minutes à chaque niveau n'est pas un bon estimateur, car il reflète la variabilité temporelle de la concentration atmosphérique. En revanche, la différence relative entre les concentrations moyennes mesurées par chaque analyseur, sur chaque niveau, donne une estimation plus satisfaisante de l'incertitude. Les incertitudes ainsi estimées sont reportées dans le Tableau IV.4.

Tableau IV.4. Ecart relatif de concentration entre les deux analyseurs. Cette estimation de l'incertitude de mesure ne tient pas compte de l'efficacité de captation du denuder qui peut varier.

Série	Niveau bas	Niveau haut
1	0.2%	0.2%
6	7%	5%
8	2%	2%
10	2%	16%

Les incertitudes estimées par ce biais, varient entre 0.2% et 16% selon les cas. Nous avons retenu la valeur moyenne de 10% comme incertitude. Il faut remarquer que ce critère d'estimation de l'incertitude ne tient pas compte de l'efficacité de captation des denuders, qui peut entraîner des erreurs supplémentaires.

#### IV.2.5 Mesure de la concentration moyenne en $\text{NH}_3$

##### IV.2.5.1 Principe des tubes à diffusion

Des "tubes à diffusion" préparés selon les descriptions de Ferm (1979) ont été utilisés pour mesurer la concentration moyenne en  $\text{NH}_3$  sur les mâts ③ et ④ de la Figure IV.3. Le principe de ces capteurs est de faire passer l'air dans un tube en verre dont la paroi interne est enduite d'un acide cristallisé. L'ammoniac est piégé sur le dépôt acide, puis on extrait le tout dans de l'eau qui est ensuite analysée. Les tubes sont positionnés verticalement, et une portion du tube n'est pas enduite d'acide, afin de laisser l'écoulement s'établir dans le tube. Ceci permet de limiter le dépôt d'aérosols par diffusion brownienne et sédimentation, pour ne capter que l'ammoniac gazeux (Ferm, 1979). Ce type de capteur peut être adapté à d'autres gaz en utilisant

un enduit différent (Ferm, 1986), et peut être adapté pour estimer les flux horizontaux (Schjørring *et al.*, 1992). Les "tubes à diffusion" ont été développés à l'occasion de cette expérimentation, et font donc l'objet d'une description plus détaillée que les autres instruments de mesure.

#### IV.2.5.2 Détail des tubes à diffusion

Les tubes de verre sont de 0.5 m de longueur, et 3 mm de diamètre interne, et les parois internes sont recouvertes d'un dépôt d'acide oxalique (acide éthanedioïque) cristallisé et monohydraté ( $C_2H_2O_4.H_2O$ ). L'acide est déposé sur une fraction du tube, préalablement rincé et séché, de 0.35 m. Le dépôt s'effectue par contact pendant 10 s avec une solution d'acide oxalique à 4% en masse dans de l'acétone pur à 99,9%. Le tube est ensuite séché à fort débit ( $50 \text{ l min}^{-1}$ ) avec de l'air séché à travers une cartouche de silicagel et filtré avec du charbon actif et un coton imbibé d'acide oxalique à 13%. Des tests préalables ont montré que l'air ainsi filtré était exempt d'ammoniac. Chaque tube était alors fermé aux deux bouts par un capuchon en verre maintenu par un tube en EXACANAL<sup>®</sup>, puis placé dans une chambre froide avant utilisation.

Afin d'éviter toute contamination des tubes, ils étaient manipulés avec des gants jetables en caoutchouc, le bout des tubes n'étant jamais touché. De plus, le dispositif de séchage maintenait une faible pression d'air filtré y compris pendant le rebouchage des tubes. Par ailleurs, les tubes étaient préparés par série de 35, et n'étaient pas stockés plus d'une semaine dans la chambre froide. Cinq tubes par série étaient gardés comme témoins. L'acide oxalique a été préféré à l'acide phosphorique ou citrique, d'une part pour sa plus grande capacité d'absorption de l'ammoniac (Perinno et Guerardi, 1999), et d'autre part parce que les tubes étant exposés pendant une très courte période, le problème de la volatilisation de l'acide oxalique en conditions chaudes n'était pas limitant.

Sur le mât, les denuders étaient reliés par série de 3 à une pompe et un compteur à gaz (Schlumberger, Gallus 2000), préalablement contrôlé par rapport aux autres. Les tubes souples en PVC étaient de même longueur pour les 3 denuders, et 3 capillaires en verre de 1 mm de diamètre et 10 cm de longueur, placés entre le denuder et le compteur à gaz, permettaient d'obtenir des débits égaux dans chaque tube. Les capillaires ont été coupés dans les mêmes cannes de 1 m afin d'avoir parfaitement le même diamètre avec une précision de 1%. La pompe de 12 V était placée en amont du compteur à gaz, après la jonction des trois tubes. Le débit dans chaque tube variait de  $0.7 \text{ l min}^{-1}$  à  $1.4 \text{ l min}^{-1}$ , suivant le type de pompe utilisé.

Quelques minutes avant de mettre en route la source d' $NH_3$ , les denuders étaient placés verticalement sur chaque mât et débouchés, sans que la pompe soit mise en route. Puis les pompes étaient mises en route simultanément sur tous les mâts. Après chaque essai, les pompes étaient arrêtées, les denuders rebouchés, puis transportés au laboratoire où ils étaient stockés dans la chambre froide pour une durée inférieure à 1 semaine. Les hauteurs des

capteurs sont indiquées dans le Tableau IV.2.

#### IV.2.5.3 Analyse de l'ammonium en solution

L'extraction de l'ammoniac capturé était réalisée en rinçant 3 fois le tubes avec 10 ml d'eau déminéralisée et filtrée milli-Q (Millipore). La solution obtenue était stockée en chambre froide, puis analysée par conductimétrie en utilisant la même cellule d'analyse que celle utilisée pour les gradients d' $\text{NH}_3$  au champ. Chaque échantillon était "passé" dans l'analyseur jusqu'à ce que l'équilibre soit atteint, ce qui prenait en général 1 à 3 minutes, soit 2 à 4 ml de solution.

L'analyseur était étalonné avant et après chaque série, et en tout, trois séries d'analyses ont été nécessaires pour passer les 300 échantillons collectés. Les solutions étalons étaient préparées avec de l'eau milli-Q, à laquelle était ajouté de l'acide oxalique dans les mêmes proportions que celles contenues dans les échantillons (voir ci-après). Du chlorure d'ammonium  $\text{NH}_4\text{Cl}$  (99.5%) était ajouté en proportions variables, de façon à obtenir des solutions de concentrations 0, 50, 500, 1000, 5000, et 10000  $\mu\text{g NH}_4^+ \text{kg}^{-1}$ .

Le pH des échantillons de tubes exposés et non exposés (témoins) a été déterminé avec un pH-mètre avec électrode KCl (C425, Consort). Le pH des échantillons témoins et exposés était respectivement,  $\text{pH } 2.6 \pm 0.14$  et  $\text{pH } 2.7 \pm 0.13$  (moyenne basée sur 6 échantillons). A partir de ces valeurs, la quantité moyenne d'acide oxalique a été estimée entre 8 et 20 mmol par denuder, ce qui correspond à une capacité d'absorption de l'ammoniac comprise entre 260 et 720  $\mu\text{g NH}_3$ . Pour un débit d'air de  $1.4 \text{ l min}^{-1}$ , qui est le débit maximal obtenu au cours de l'expérimentation, et une durée d'exposition de 3 heures (durée maximale), cela correspond à une concentration atmosphérique comprise entre 860 et 2400  $\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ . Cette gamme est bien supérieure aux concentrations maximales mesurées au cours de l'expérimentation, ce qui démontre que les capteurs n'ont jamais été saturés.

#### IV.2.5.4 Contrôle des tubes et incertitude sur la mesure

Afin d'estimer la contamination potentielle des tubes durant leur stockage, 2 tubes par série d'expérimentation n'étaient pas exposés afin de servir de contrôle. L'analyse de la concentration en  $\text{NH}_4^+$  de ces tubes (Tableau IV.5) révèle que la contamination n'a pas été très importante comparée aux concentrations en  $\text{NH}_4^+$  dans les tubes exposés. Globalement, la contamination était inférieure à 10% des concentrations les doses les plus faibles (de 2 à 10  $\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$  pendant 2 heures).

Tableau IV.5. Contamination des tubes à diffusion au cours de leur stockage, estimée à partir des concentrations en  $\text{NH}_4^+$  mesurées dans 2 tubes non exposés. A titre de comparaison, la concentration minimale trouvée dans les tubes exposés est de  $21 \mu\text{g NH}_4^+ \text{kg}^{-1}$ , et elle était le plus souvent supérieure à  $100 \mu\text{g NH}_4^+ \text{kg}^{-1}$ , ce qui correspond à  $2 \mu\text{g NH}_3 \text{m}^{-3}$  dans l'air.

Série	Concentration des contrôles $\mu\text{g NH}_4^+ \text{kg}^{-1}$
1	$1.1 \pm 3.0$
2	-
3	$19 \pm 6.4$
5	$3.7 \pm 2.9$
6	2.8
7	$1.1 \pm 10$
8	$14 \pm 5.5$
10	$10 \pm 0$

Etant donné la très large gamme de concentrations dans la solution,  $20 - 10000 \mu\text{g NH}_4^+ \text{kg}^{-1}$ , deux fonctions d'étalonnage ont été choisies. La première dans la gamme  $0 - 500 \mu\text{g NH}_4^+ \text{kg}^{-1}$ , et la deuxième dans la gamme  $500 - 10000 \mu\text{g NH}_4^+ \text{kg}^{-1}$ . Les fonctions d'étalonnage utilisées sont des polynômes de degré 2 ;  $f(x) = ax^2 + bx + c$ .

L'incertitude sur la mesure de la concentration en  $\text{NH}_3$  a été considérée comme la somme quadratique des erreurs relatives sur le débit d'air dans les tubes (estimé à 5%), la mesure de la conductivité corrigée dans l'analyseur (1%), et l'erreur sur les paramètres des courbes d'étalonnage (1% sur chaque paramètre  $a$ ,  $b$ ,  $c$ ). L'incertitude totale sur la mesure varie de 5 à 6 %.

#### IV.2.5.5 Contrôle de la source avec le mât de bilan de masse

Afin de contrôler le débit effectivement émis par la source, le mât situé à 12 m de la source (BM) a été équipé d'anémomètres, comme cela a été décrit ci-dessus. La combinaison du profil de vitesse moyenne du vent et de la concentration moyenne a permis d'estimer le flux horizontal moyen à travers ce mât par la méthode du bilan de masse.

Pour cela, les vitesses moyennes du vent sur la période d'émission ont été estimées à partir des valeurs moyennes quart-horaire. Le profil de vitesse de vent dans et au-dessus du couvert, tel qu'il est donné par l'Eqn. III.50, a été calé sur les profils de vent moyens de la manière suivante : les valeurs de  $u_*$  et  $L$  calculées par la méthode aérodynamique simplifiée ont été conservées, tandis que  $z_0$ ,  $d$  et  $\zeta$  ont été modifiées de façon à minimiser visuellement l'écart entre profil mesuré et profil de l'Eqn. III.50. Les valeurs de  $z_0$  obtenues ainsi sont d'environ 0.07 m, celles de  $d$  varient entre 1 m et 1.6 m et augmentent avec la hauteur du couvert, et celles de  $\zeta$  varient entre 5 et 7.

La densité de flux horizontal  $F_x$  ( $\mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ ) à chaque niveau, était calculé comme le produit de la concentration à cette hauteur par la vitesse du vent. La masse d' $\text{NH}_3$  passant entre 0 et 5 m était estimée comme la somme des produits de cette densité par la hauteur de la couche  $\Delta z$  située entre chaque niveau de mesure. La fraction du flux passant au-dessus du mât

a été estimée en prolongeant le profil de flux horizontal par une fonction exponentielle  $f(z) = a \exp^{-bz}$ , dont les paramètres  $a$  et  $b$  ont été calés en forçant la fonction à passer par les deux points les plus hauts du profil. Littéralement, cette fraction vaut :

$$\frac{F_1 \exp\{-\ln(F_1/F_2) z_2 / (z_2 - z_1)\} (z_2 - z_1)}{\ln(F_1/F_2)} \exp\{-\ln(F_1/F_2) z_2 / (z_2 - z_1)\} \quad (IV.12)$$

où  $F_1$  et  $F_2$  sont les flux horizontaux aux hauteurs respectives  $z_1$  et  $z_2$ . L'incertitude sur le débit de source dépend de l'incertitude sur la mesure des concentrations, des vitesses du vent, et de la régression du profil de vent, et de flux passant au-dessus du mât. Il faut y ajouter l'incertitude sur la méthode elle-même, c'est à dire l'erreur potentielle commise en omettant la composante turbulente du flux (Denmead, 1995).

Ces différentes incertitudes ne relèvent pas du tout des mêmes méthodes d'estimation. L'incertitude sur la concentration moyenne est d'environ 6% par capteur dans la gamme de concentration du mât (voir ci-dessus). L'incertitude sur la vitesse du vent peut-être estimée comme la somme quadratique de l'incertitude de l'anémomètre et l'écart-type de la vitesse de frottement moyenne sur la période. Sur l'ensemble des séries, cette incertitude est comprise entre 7% et 27%. L'incertitude sur l'estimation de la fraction de flux passant au-dessus du mât varie entre 8% et 30% du flux total. Quant à la composante turbulente du flux, en se basant sur les travaux de Wilson et Shum (1992), elle est sans doute inférieure à 20%.

Si l'on somme les incertitudes, on aboutit, à une incertitude sur le débit de source comprise entre 41% et 83%. Cette incertitude est très grande, et elle illustre la difficulté de travailler avec des mâts de bilan de masse sur des pas de temps horaires, même s'il s'agit d'un maximum.

#### IV.2.6 Mesures de la turbulence dans le couvert

Trois anémomètres soniques ont été utilisés pour mesurer les caractéristiques turbulentes dans le couvert. Deux des capteurs étaient placés à 0.5 m au-dessus du sol dans le couvert, respectivement près du mât micrométéorologique et près du mât bilan de masse, et le troisième sonique était placé au-dessus du couvert, à 2.5 m du sol près du mât micrométéorologique, à la verticale de l'anémomètre placé dans le couvert. Seuls quatre jours de données sont disponibles, et le dispositif d'enregistrement a dû être éteint la nuit.

Les données ont été échantillonnées à 10 Hz, avec une acquisition de données Campbell 21X (Campbell Scientific). Elles ont été ensuite traitées pour corriger la verticalité du capteur selon la procédure décrite par Kaimal et Finnigan (1994; p. 236), et les valeurs moyennes ont été calculées sur 15 min.

Les variables mesurées sont : la vitesse moyenne du vent  $\bar{u}$ , sa direction dans le plan horizontal  $\theta$ , l'écart-type des composantes de la vitesse du vent  $\sigma_u$ ,  $\sigma_v$  et  $\sigma_w$ . Les flux de quantité de mouvement  $\tau$  et de chaleur  $H$  ont également été calculés par la méthode des

corrélations. Les valeurs de  $u_*$  et  $L$  au-dessus du couvert ont été estimées à partir des relations suivantes :

$$u_* = \sqrt{\tau/\rho} \quad (IV.13)$$

$$L = - \frac{u_*^3/k}{(g/T)(H/\rho C_p)} \quad (IV.14)$$

où  $\rho$  est la densité de l'air,  $g$  est l'accélération de la pesanteur,  $T$  est la température de l'air, et  $C_p$  est la capacité calorifique de l'air à pression constante. En conditions de forte évaporation, le flux de vapeur d'eau devrait également être pris en compte dans l'expression de  $L$ , mais un rapide calcul montre que l'erreur commise est toujours inférieure à 8% de la valeur de  $L$ , et en général inférieure à 2%.

Les échelles de temps et de longueurs associées aux mouvements turbulents sont des paramètres utiles pour décrire et comprendre la structure de la turbulence. Ce sont aussi des paramètres d'entrée du modèle. L'échelle de temps eulérienne  $\Gamma_{ui}$  a été déduite de la fonction d'autocorrélation  $R_{ui}$  (Kaimal et Finnigan, 1994) :

$$R_{ui}(\tau) = \overline{u_i(t) u_i(t + \tau)} / \sigma_{u_i}^2 \quad (IV.15)$$

$$\Gamma_{ui} = \int_0^{\infty} R_{ui}(\tau) d\tau \quad (IV.16)$$

où  $u_i$  est la composante selon l'axe  $x_i$  de la vitesse instantanée, la sommation tensorielle n'est pas utilisée, et la barre dénote une moyenne temporelle sur 15 min.

#### IV.2.7 Hauteur du couvert, surface foliaire, et résistance stomatique

La hauteur du couvert  $h$ , a été mesurée à six reprises au cours de l'expérimentation, et la densité de surface foliaire ( $LAI$ ) trois fois. Elle était estimée comme la hauteur maximale de la feuille la plus haute, et était obtenue par la moyenne de 100 mesures réalisées sur trois transects le long des rangs. Le  $LAI$  était estimé à partir de trois fois 1 m linéaire de plantes. Les plantes étaient séparées en deux couches, en dessous et au-dessus de 0.4 m, et les surfaces des feuilles vertes et jaunes étaient mesurées séparément.

La résistance stomatique par unité de surface de feuille  $r_s$ , a été mesurée à 5 reprises durant l'expérimentation à l'aide de poromètres (Mk3, Delta-T Devices). Sur chaque feuille, la résistance des deux faces était mesurée, et la procédure était répétée 20 fois dans une rangée, et deux rangées étaient sélectionnées. Le poromètre était calibré avant et après chaque série de mesure qui durait 30 minutes environ. L'objectif n'était pas de mesurer l'évolution de la résistance stomatique avec cette méthode, mais de s'assurer que la plante n'était pas en condition de stress.

La résistance stomatique du couvert  $R_s$  a également été estimée à partir du flux de

chaleur latente  $\lambda E$ , de l'humidité spécifique de l'air  $q$  et de la température du couvert  $T_c$ , à partir de l'expression (Monteith et Unsworth, 1990) :

$$E = \rho \frac{q(z) - q_{sat}(T_c)}{R_a(z) + R_b + R_s} \quad (IV.17)$$

$$R_{s\ H_2O} = \rho \frac{q(z) - q_{sat}(T_c)}{E} - R_a(z) - R_b\ H_2O \quad (IV.18)$$

où  $z$  est la hauteur de référence, à la quelle ont été mesurés les flux de chaleur et l'humidité spécifique  $q(z)$ ,  $E$  est le flux de vapeur d'eau, ( $\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ ),  $q_{sat}(T_c)$  est l'humidité spécifique à saturation, à la température du couvert, supposée être la concentration de vapeur d'eau dans la cavité sous-stomatique,  $R_a(z)$  est la résistance aérodynamique entre  $z_0$  et  $z$ , et  $R_b$  est la résistance pour la vapeur d'eau entre  $z_0'$  et  $z_0$ , où  $z_0'$  est la hauteur de référence pour la vapeur d'eau. Les résistances sont formulées simplement par :

$$R_a(z) = \frac{\ln(z) - \psi_m(z/L)}{k u_*} \quad (IV.19)$$

$$R_b\ H_2O = 1.45 Re_*^{0.24} Sc^{0.8} u_*^{-1} \quad (IV.20)$$

$$R_b\ H_2O = 2 (k u_*)^{-1} (\kappa / D_{H_2O})^{0.67} \quad (IV.21)$$

où  $\ln$  est la fonction logarithme népérien,  $\psi_m$  est la fonction de correction de Dyers (1974; Voir aussi chapitre II),  $Re_*$  est le nombre de Reynolds de rugosité, parfois noté  $z_0^+$ ,  $Re_* = u_* z_0 / \nu$ ,  $Sc$  est le nombre de Schmidt,  $Sc = \nu / D_{H_2O}$ ,  $\kappa$  est la conductivité thermique de l'air ( $22.2 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ , à  $20^\circ\text{C}$ ),  $\nu$  est la viscosité cinématique de l'air ( $15.5 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ , à  $20^\circ\text{C}$ ), et  $D_{H_2O}$  la diffusivité de la vapeur d'eau dans l'air ( $24.9 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ , à  $20^\circ\text{C}$ ). Les deux expressions de  $R_b$  (Eqns. IV.19 et IV.20) sont comparées par la suite. L'Eqn. IV.20 a été obtenue par mesure de flux de chaleur dans un tunnel de ventilation (Garland, 1977), tandis que l'Eqn. IV.21, est proposée par Wesely et Hicks (1977), et est plus adaptée aux couverts développés tels que le maïs.

Etant donné que le flux de vapeur d'eau  $E$  n'a pu être, pour des raisons techniques, directement mesuré, il a été indirectement obtenu par inversion du bilan d'énergie du couvert. Ce bilan exprime la conservation de l'énergie du couvert par unité de surface du sol, où les flux entrants, c'est à dire le rayonnement net  $R_n$ , et le flux de chaleur dans le sol  $G$ , balance les flux sortant de chaleur, sensibles  $H$  et latent  $\lambda E$  et le stockage d'énergie dans le couvert  $St$  (voir par exemple Monteith et Unsworth, 1990) :

$$R_n + G = H + \lambda E \quad (IV.22)$$

où, par convention,  $R_n$  et  $G$  sont positifs lorsqu'ils sont dirigés vers le couvert, et  $H$  et  $\lambda E$  sont positifs lorsqu'ils quittent le couvert. Noter qu'ici  $G$  est de signe inverse à la nomenclature habituelle qui le compte positif lorsqu'il est dirigé vers le sol. Le flux de vapeur d'eau a donc été estimé par inversion de l'Eqn. IV.22, les autres termes étant soit directement mesurés, i.e.

$R_n$  et  $G$ , soit indirectement estimés pour  $H$  qui est obtenu par l'Eqn. IV.10. Le stockage d'énergie dans les feuilles  $St$ , a été obtenu en utilisant l'évolution de la température des feuilles  $T_c$  au cours du temps, à l'aide de l'expression suivante :

$$St = m_c C_p^c dT_c/dt \quad (IV.23)$$

où  $m_c$  est la masse de plante par unité de surface de sol, et  $C_p^c$  est la capacité calorifique du couvert à pression constante, qui a été supposée égale à celle de l'eau ( $1400 \text{ J kg}^{-1} \text{ K}^{-1}$ ). La masse de plante par unité de surface du sol est basée sur une densité de feuille de  $280 \text{ g m}^{-2}$  (de surface de feuille), et d'une densité de tige de  $1000 \text{ g l}^{-1}$ .

Les valeurs de résistance de couche limite estimées ont été utilisées pour caler un modèle de résistance stomatique simple ne prenant en compte aucun stress. Pour cela, 4 journées de beau temps ont été sélectionnées, pour lesquelles  $R_s$  était minimale à midi solaire, et les paramètres du modèle de  $R_s$  (Jarvis, 1976) ont été déterminés par régression linéaire entre  $R_s$  et  $1/PAR$ , où  $PAR$  est le rayonnement photosynthétiquement actif moyen dans le couvert. Le modèle et l'expression du  $PAR$  dans le couvert sont :

$$R_{s, H_2O} = r_{s, H_2O} / LAI = \frac{r_{s, min}}{LAI} \left\{ 1 + \frac{p}{PAR} \right\} \quad (IV.24)$$

$$PAR = PAR_0 \exp \left\{ 1/2 \frac{LAI}{\sin \beta} \right\} \quad (IV.25)$$

où  $r_{s, min}$  et  $p$  sont les paramètres du modèle de résistance stomatique,  $PAR_0$  est le rayonnement photosynthétiquement actif au-dessus du couvert, et  $\beta$  est l'angle azimutal des rayons incidents du soleil.  $PAR_0$  est le flux d'énergie correspondant aux longueurs d'ondes 400-700 nm, dans le visible, qui peut avec une bonne approximation être estimé comme une fraction du rayonnement solaire incident  $R_g$  :  $PAR_0 = 0.48 R_g$  (Varlet-Granchet *et al.*, 1982). L'angle  $\beta$  est quant à lui déterminé par l'équation :

$$\beta = \arccos \{ \sin(\phi) \sin(\alpha) + \cos(\phi) \cos(\alpha) \cos(h) \} \quad (IV.26)$$

où  $\phi$  est la latitude,  $\alpha$  est la déclinaison du soleil qui évolue au cours de l'année avec la rotation de la terre autour du soleil, et  $h$  est l'heure solaire en radian.

Les autres paramètres pouvant agir sur la résistance stomatique n'ont pas été mesurés (potentiel hydrique du sol, potentiel foliaire), car (1) l'étude fine du comportement stomatique du couvert n'était pas l'objectif de cette expérimentation, et (2) la résistance stomatique était estimée par inversion de bilan d'énergie.

### IV.3 Résultats

#### IV.3.1 Conditions micrométéorologiques générales

La direction du vent était une donnée importante, puisqu'elle a conditionné la réalisation des journées de mesures. Elle n'a malheureusement pas été souvent dans la direction souhaitée,

c'est à dire perpendiculaire à la source (Figure IV.4). En effet, une série de mesure a été réalisée avec l'axe des mâts selon le segment ① (Figure IV.4 ; Tableau IV.6), et tous les autres l'ont été selon le segment ②. Il est dommage que le vent n'ait quasiment jamais été dirigé perpendiculairement à la source ②. La topographie du lieu, notamment la présence du bois au nord, le fait que la parcelle soit sur un plateau, et l'orientation des vallons environnants, donnent une explication potentielle à cette orientation (Figure IV.2).

**Tableau IV.6.** Direction moyenne du vent par rapport à l'axe des mâts durant chaque série de mesure, et distance maximale en aval de la source.

Série	Direction moyenne du vent par rapport aux mâts (°)	Fluctuation moyenne de la direction du vent sur 15 min. <sup>1</sup> (°)	Somme quadratique des fluctuations sur 15 min. et 1 h. <sup>2</sup> (°)	Distance maximale <sup>3</sup> (m)
1	+5	+5 ± 16	21	1143
2	+29	+29 ± 25	42	180
3	+31	+31 ± 19	36	166
5	+18	+18 ± 17	101	308
6	-10	-10 ± 54	115	567
7	-47	-47 ± 13	83	93
8	-47	-47 ± 15	113	93
10	+34	+34 ± 43	84	148

<sup>1</sup> Moyenne de l'écart-type de la direction du vent sur 15 min. pondérée de la vitesse moyenne (Campbell Scientific). <sup>2</sup> Somme quadratique de la moyenne des fluctuations calculées selon <sup>1</sup> et des écart-types des directions moyennes sur la durée de la série. <sup>3</sup> Egale à  $100 \times \tan(\theta)$ .

La période d'expérimentation s'est située à la fin d'une période pluvieuse relativement soutenue au cours de laquelle sont tombés 70 mm d'eau (Figure IV.5). Au total, 53 mm d'eau sont tombés au cours de l'expérimentation, dont 48 mm entre le 24/06 et le 03/07, donc 7 séries de mesures sur les 8 se sont déroulées pendant une période non pluvieuse (03/07 au 24/07).

Cette période est caractérisée par un rayonnement global cumulé supérieur à  $20 \text{ MJ m}^{-2} \text{ jour}^{-1}$ , avec un maximum le 10/07 à  $26 \text{ MJ m}^{-2} \text{ jour}^{-1}$ . La température moyenne journalière de l'air au cours de cette période varie entre 17 et 20°C, alors qu'elle était d'environ 14°C le 24/06. De même l'humidité relative décroît entre presque 100% le 30/06 et 65% le 24/07, mais reste la plupart du temps autours de 80%.

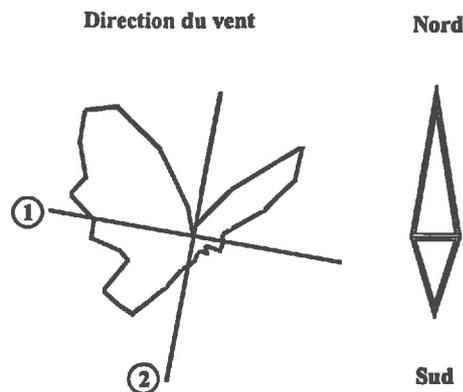


Figure IV.4. Fréquence des directions du vent pendant toute la période de l'expérimentation, telle qu'elle a été mesurée avec la girouette. Les deux segments ① et ② représentent les axes selon lesquels les mâts étaient alignés respectivement le 24/06 et après. Le Tableau IV.6 détaille ces résultats.

La vitesse du vent mesurée à 3.35 m au-dessus du sol, était supérieure à  $1 \text{ m s}^{-1}$  pendant 53% du temps, et supérieure à  $2 \text{ m s}^{-1}$  pendant 14% du temps, au cours de la période expérimentale. Environ 16% des données ne sont pas exploitables car la vitesse de l'air était inférieure au seuil de  $0.3 \text{ m s}^{-1}$ . Les moyennes journalières de vitesse du vent mesurées sur le mât météo situé à 2 km du site expérimental suivent les mêmes tendances.

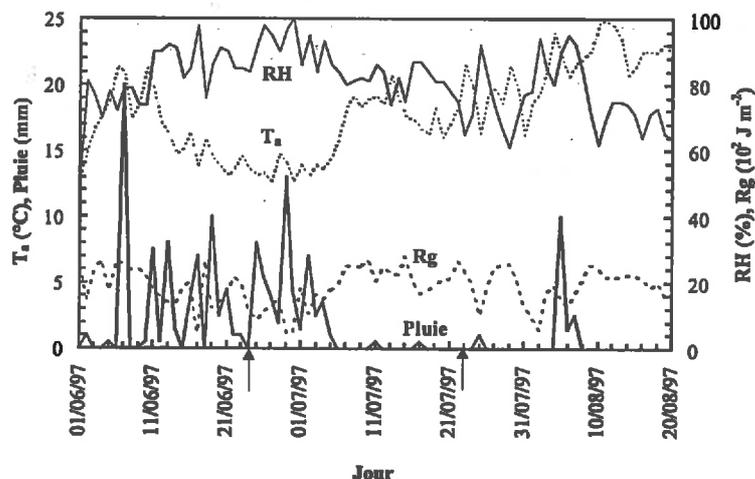
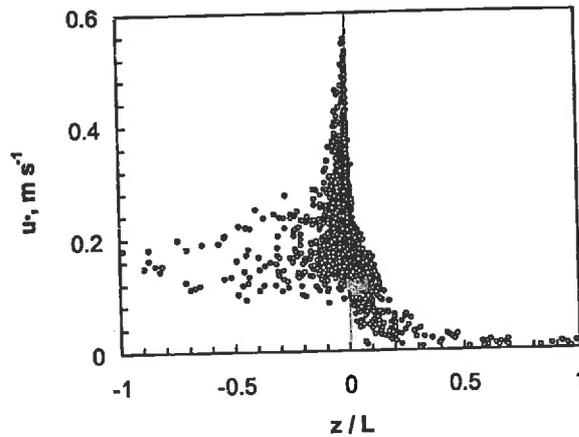


Figure IV.5. Précipitations, température de l'air  $T_a$ , Rayonnement global cumulé  $R_g$ , et humidité relative de l'air  $RH$ , en Juin / Juillet et Août 1997. Les flèches délimitent la période expérimentale.

Globalement, pendant environ 50% du temps,  $u_*$  était inférieur à  $0.4 \text{ m s}^{-1}$ , et seulement 10% du temps  $u_*$  était supérieur à  $0.8 \text{ m s}^{-1}$ . L'atmosphère était globalement proche de la neutralité, avec autant d'épisodes stables qu'instables, et seulement 4% des situations où le paramètre de stabilité  $z_m/L$  était supérieur à 0.5 en valeur absolue (stable ou instable).

La Figure IV.6 permet de représenter  $u_*$  et  $z_m/L$  sur le même graphique. Elle montre que les périodes de forte stabilité ou forte instabilité correspondent globalement à des vitesses de frottement inférieures à  $0.3 \text{ m s}^{-1}$ , et que  $u_*$  tend vers 0 lorsque la stratification thermique devient stable, et semble tendre vers une valeur constante d'environ  $0.2 \text{ m s}^{-1}$  en conditions très

instables.



**Figure IV.6.** Vitesse de frottement estimée avec la méthode aérodynamique simplifiée, en fonction du paramètre de stabilité  $z_m/L$ , où  $z_m$  est la hauteur moyenne de mesure. Données quart-horaire entre le 01/07 et le 22/07.  $z_m/L \leq 0$  indique une situation instable, et  $z_m/L \geq 0$  une situation stable. Le nombre de points par unité de surface indique la fréquence d'occurrence. Noter notamment l'enveloppe de la courbe qui donne les valeurs limites de  $u_*$  pour un  $z_m/L$  donné.

#### IV.3.2 Température du couvert

La température du couvert  $T_c$  à midi était d'environ  $17^\circ\text{C}$  pendant la période de pluie, et de  $25$  à  $30^\circ\text{C}$  ensuite. A minuit, elle variait entre  $10$  et  $16^\circ\text{C}$ . La différence maximale entre les 16 thermocouples mesurant  $T_c$  était en général inférieure à  $1^\circ\text{C}$  de nuit comme de jour, mais des écarts allant jusqu'à  $5^\circ\text{C}$  ont été observés ponctuellement entre le 09/07 et le 12/07, en milieu de journée. Cette variabilité est de l'ordre de la variation de température des feuilles en 15 min en milieu de journée. Globalement, la température du couvert était supérieure à celle de l'air en milieu de journée, et inférieure de nuit. C'est ce que l'on observe sur les distributions de  $T_c - T_a$  (Figure IV.7b) mesurées de jour et de nuit. Très nettement de nuit la température du couvert est de  $0$  à  $2^\circ\text{C}$  plus froide que celle de l'air, ce qui traduit l'inversion thermique liée aux déperditions de chaleurs en condition de ciel dégagé. De jour, les écarts entre  $T_c$  et  $T_a$  s'échelonnent entre  $-2$  et  $+4^\circ\text{C}$ , avec le maximum en milieu de journée, lorsque le rayonnement solaire est le plus intense.

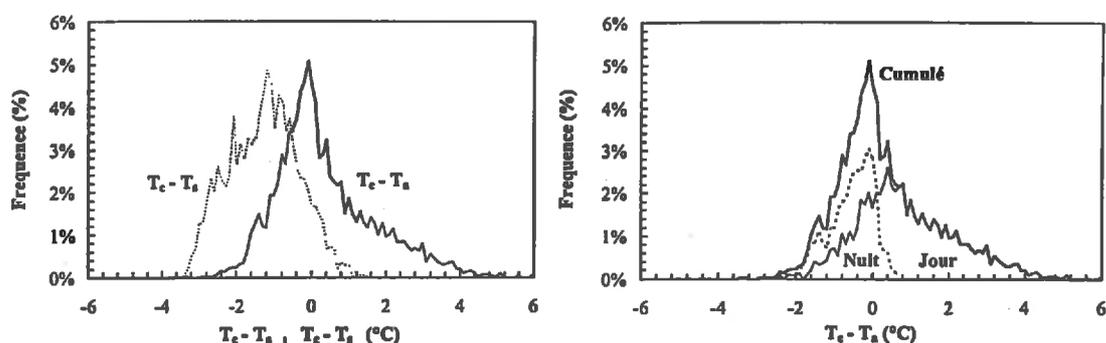


Figure IV.7. Distribution des différences de température entre les feuilles et l'air  $T_c - T_a$  et les feuilles et le sol  $T_c - T_s$ , mesurés sur le mât météo. (a) Comparaison des distributions de  $T_c - T_a$  et  $T_c - T_s$ . (b) Répartition de la fréquence de  $T_c - T_a$  entre nuit ( $R_g \leq 10 \text{ W m}^{-2}$ ) et jour ( $R_g \geq 10 \text{ W m}^{-2}$ ).

La température du couvert était quasiment toujours inférieure à la température de surface du sol (Figure IV.7a), sauf pendant les périodes transitoires (7h et 18h) où la différence observée s'explique par la différence des dynamiques des températures de feuilles et du sol, du fait de la masse thermique de ces derniers. De nuit  $T_c - T_s$  variait entre -1 et -5°C, et de jour entre -2 et +1°C maximum. L'écart négatif de jour, s'explique par la faible absorption radiative du couvert, puisque de 10% à 30% du rayonnement global atteint le sol dans un couvert de maïs (Monteith et Unsworth, 1990; Uchijima, 1976). De nuit, les flux radiatifs plus faibles, et la capacité calorifique du sol peuvent expliquer l'écart observé. Cela indique quoi qu'il en soit, qu'en dehors des périodes de transition, le couvert est en situation d'instabilité thermique avec une température du sol supérieure à celle du couvert, comme l'ont montré Jacobs *et al.* (1994).

#### IV.3.3 Croissance du couvert

La hauteur du couvert est passée de 1 m en début d'expérimentation à 2.2 m en fin, alors que le LAI (une face) augmentait d'environ 1.5 à 4.1  $\text{m}^2 \text{m}^{-2}$  au cours de la même période. Le 24/06, la fraction de LAI située en dessous de 0.4 m constituait 40% de la surface foliaire totale, et seulement 10% après le 10/07.

#### IV.3.4 Bilan d'énergie et résistances $R_a$ , $R_b$ et $R_s$

Le but du calcul du bilan d'énergie est d'estimer avec un certain degré de précision la résistance stomatique du couvert,  $R_s$ , et celle par unité de surface de feuille,  $r_s$ . Toutes les journées du 03/07 au 22/07 soit 20 journées ont été retenues pour estimer la résistance stomatique et caler le modèle de résistance décrit dans l'Eqn. IV.24. Par ailleurs, une estimation de  $R_s$  a été faite pour chaque série s1 à s10, sans utiliser le modèle de l'équation l'Eqn. IV.24.

Le rayonnement net incident sur le couvert était maximum en milieu de journée où il atteignait  $600 \text{ W m}^{-2}$ , et minimum de nuit où il ne dépassait pas en général  $-70 \text{ W m}^{-2}$  (Figure IV.8). Le maximum de flux de chaleur sensible  $H$  était généralement observé en milieu de

matinée, et atteignait  $200 \text{ W m}^{-2}$  (pertes pour le couvert), soit 1/3 du flux radiatif reçu par le couvert tandis que la nuit, il pouvait atteindre  $-20 \text{ W m}^{-2}$ , soit 1/3 du flux radiatif perdu par le couvert. Le flux de chaleur dans le sol avait une dynamique inverse, avec un flux de jour atteignant  $-70 \text{ W m}^{-2}$  (pertes pour le couvert) soit 10% environ du flux radiatif net, et de  $30 \text{ W m}^{-2}$  de nuit, soit 50% du flux radiatif. L'énergie stockée par le couvert était négligeable de nuit comme de jour.

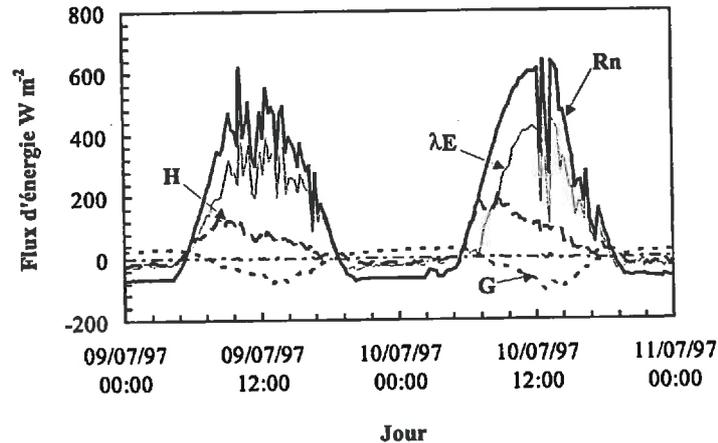


Figure IV.8. Les différents termes du bilan d'énergie:  $R_n$ ,  $H$ ,  $G$ ,  $St$ , et le flux de chaleur latente  $\lambda E$  estimé par défaut de bilan. Deux journées de ciel relativement bien dégagé, et de nuit claire, avec du vent ( $0.4 \geq u_* \geq 0.1$ ).  $G$ ,  $H$  et  $\lambda E$  sont positifs lorsqu'ils sont dirigés vers le haut,  $R_n$  est positif lorsqu'il est dirigé vers le bas.

Le flux de chaleur latente déduit de l'inversion du bilan d'énergie est nul la nuit (de l'ordre de  $H$ ), et il suit la même dynamique diurne que le flux radiatif. Ils sont maximums en milieu de journée où ils atteignent  $400 \text{ W m}^{-2}$ , soit 60% de l'énergie radiative incidente. Cette partition des pertes d'énergie est cohérente avec les données bibliographiques, et caractérisent un couvert de maïs en forte évaporation, sans stress hydrique (Uchijima, 1976).

La résistance stomatique du couvert  $R_s$ , pour la vapeur d'eau, estimée à partir du flux de chaleur latente (Figure IV.9), possède souvent un minimum en milieu de journée situé entre 50 et  $100 \text{ s m}^{-1}$ , ce qui, compte tenu de la surface foliaire, correspond à une résistance par unité de surface de feuille,  $r_s$ , variant entre 100 et  $250 \text{ s m}^{-1}$ . En terme de conductance stomatique du couvert, cela correspond à une conductance comprise entre 1 et  $2 \text{ cm s}^{-1}$ , ce qui est dans la gamme classique des conductances maximales de couvert pour la vapeur d'eau (Saugier et Katerji, 1991).

La représentation des distributions de fréquence des différentes résistances  $R_a(1 \text{ m})$ ,  $R_b$  et  $R_s$  montre bien que dans les processus de transfert de masse au-dessus d'un couvert,  $R_s$  est limitante, c'est à dire nettement supérieure aux deux autres, pendant à peu près 90% du temps (Figure IV.9). En revanche, les valeurs très faibles de  $R_s$ , indiquent vraisemblablement que le flux de vapeur d'eau a été surestimé, ou que cela correspond à de l'évaporation d'eau de pluie ou de rosée. La deuxième résistance en valeur est  $R_a(1 \text{ m})$ . Si la hauteur de référence était 5 m

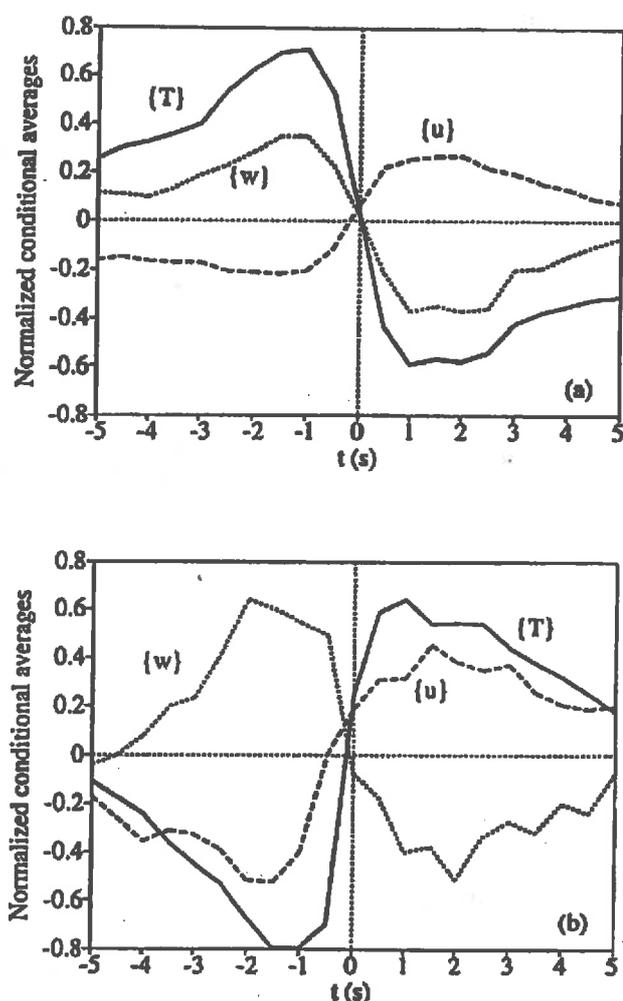


Figure II.20. Visualisation d'une rampe par filtrage du signal turbulent à l'aide de transformées en ondelettes. Données mesurées au-dessus d'un couvert de maïs (a) de jour, et (b) de nuit. Le jour une incursion d'air venant d'au-dessus s'accompagne d'une baisse de température (gradient thermique négatif), et de nuit c'est l'inverse (gradient thermique positif). On note que les signaux ne passent pas exactement par 0 au même instant, entraînant parfois des corrélations de signe inverse à la normale. Repris de Brunet et Collineau (1994).

### II.2.5.2 Caractérisation de l'intermittence

Ces phénomènes de balayage et d'éjection sont mis en évidence par les méthodes d'analyse conditionnelles qui consistent à détecter ces événements en observant l'évolution des signaux turbulents (Raupach *et al.*, 1996). Plusieurs méthodes existent :

(i) l'analyse par quadrants (Wallace *et al.*, 1972), qui consiste à représenter le signal turbulent dans l'espace des phases  $(u, w)$ , et à déterminer les flux conditionnés par leur position dans un des 4 "quadrants" constituant cette espace ( $u > 0, w > 0$  ;  $u > 0, w < 0$  ;  $u < 0, w < 0$  ;  $u < 0, w > 0$ ). On définit ainsi des fractions du temps  $S_i$  et les flux associés  $\bar{u}\bar{w}_i$  dans chaque quadrant, que l'on peut pondérer de la distance au centre, et donc de l'intensité de la rafale.

(ii) les méthodes basées sur la détection des "rampes" (Collineau et Brunet, 1993) dans le signal turbulent, qui comprennent les méthodes visuelles, de moyennes conditionnées

dépendant d'un paramètre seuil, et la méthode basée sur les transformées en ondelettes qui fait aujourd'hui l'unanimité, car elle ne requiert aucun paramètre (Collineau, 1993; Collineau et Brunet, 1993 ; Brunet et Collineau, 1994). Le principe de cette dernière repose sur l'utilisation successive de deux ondelettes, l'une (MHAT) permettant la détection du nombre de rampes  $N_r$  dans un signal, et l'autre (RAMP) permettant de calculer les caractéristiques moyennes de ces rampes (durée, intensité, ...), en connaissant  $N_r$  préalablement établi. Les Figures II.20a et II.20b, montrent quel type d'information est obtenue par moyenne conditionnelle à l'aide de ces rampes.

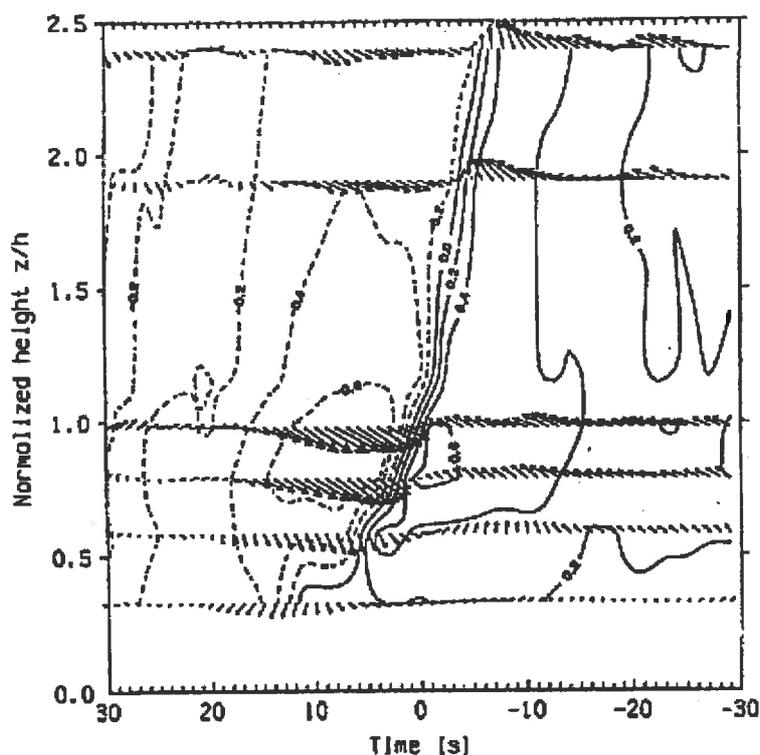


Figure II.21. Visualisation d'une période de Balayage dans une forêt. Les traits indiquent les isothermes en dessous (pointillés) et au-dessus (trait plein) de la température moyenne, et les flèches représentent les vecteurs vitesse de l'air. De l'air froid pénètre dans le couvert, et chasse l'air chaud présent. Noter que l'axe des temps est inversé. Repris de Kaimal et Finnigan (1994).

Les spectres d'énergie apportent également des informations intéressantes sur l'intermittence : (i) le pic spectral des cospectres d'énergie des flux (Figure II.22), correspond aux tourbillons porteurs d'énergie, ainsi la fréquence, et donc la période qui caractérise ces pics est représentative des rampes, comme l'a montré Brunet et Collineau (1994) ; (ii) la variabilité du spectre dans les basses fréquences, est également un indicateur de l'intermittence des échanges, ainsi sur la Figure II.22, on isole bien plusieurs pics autour de 30 s à 1 mn, qui correspondent au passage de structures cohérentes. L'information est toutefois beaucoup moins riche que celle obtenue avec par transformées d'ondelettes.

et non pas 1 m,  $R_a$  serait multiplié par 2, et la différence entre  $R_a$  et  $R_s$  serait moins marquée. La résistance additionnelle  $R_b$  est généralement inférieure à 20, et souvent égale à  $10 \text{ s m}^{-1}$ .

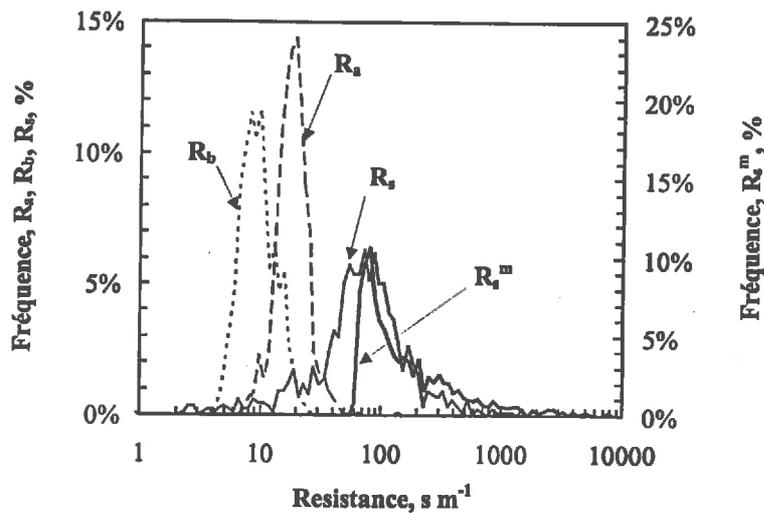


Figure IV.9. Distribution des résistances aérodynamique  $R_a(1 \text{ m})$ , de pseudo-couche limite de couvert  $R_b$ , et stomatique  $R_s$ , telles qu'elles ont été estimées à partir des flux mesurés.  $R_s^m$  est la résistance stomatique estimée sur la même période à partir du modèle de  $R_s$  (Eqn. IV.24), avec  $p = 25 \text{ W m}^{-2}$  et  $r_{\text{min}} = 157 \text{ s m}^{-1}$ .

On a également porté sur la Figure IV.9 la valeur de  $R_s$  calculée avec l'Eqn. IV.24. Les paramètres du modèle qui obtenus par régression linéaire sont  $p = 25 \text{ W m}^{-2}$  et  $r_{\text{min}} = 157 \text{ s m}^{-1}$ . Le coefficient de corrélation linéaire  $R^2 = 0.11$  dénote d'une forte dispersion des données liée à l'incertitude de la méthode d'inversion du bilan d'énergie. Toutefois, les données ont été prétraitées, afin de ne garder que les conditions où le modèle de couche de surface utilisé est "pleinement" justifié, et les erreurs de mesure faibles ;  $u_* \geq 0.2 \text{ m s}^{-1}$ ,  $|z_m / L| \leq 0.1$ ,  $r_{sH_2O} \leq 5000 \text{ s m}^{-1}$ , et  $PAR \geq 10 \text{ W m}^{-2}$ . L'estimation de  $r_{\text{min}}$  est légèrement plus faible que celle proposée par Baldocchi *et al.* (1987). Quant à la pente  $p$ , elle est également plus faible, et correspond à ce que Baldocchi *et al.* (1987) proposent pour du sapin ou du chêne. La valeur est toutefois réaliste quand on voit les incertitudes liées aux estimations de ces paramètres (Oliosio *et al.*, 1995). Toutefois, étant donné que les mesures ont été faites près du couvert, dans la couche limite de rugosité, le flux de chaleur sensible a pu être sous estimé, Cellier et Brunet (1992). En conséquence le flux de vapeur d'eau a pu être surestimé, ce qui entraînerait la sous-estimation de  $R_s$ .

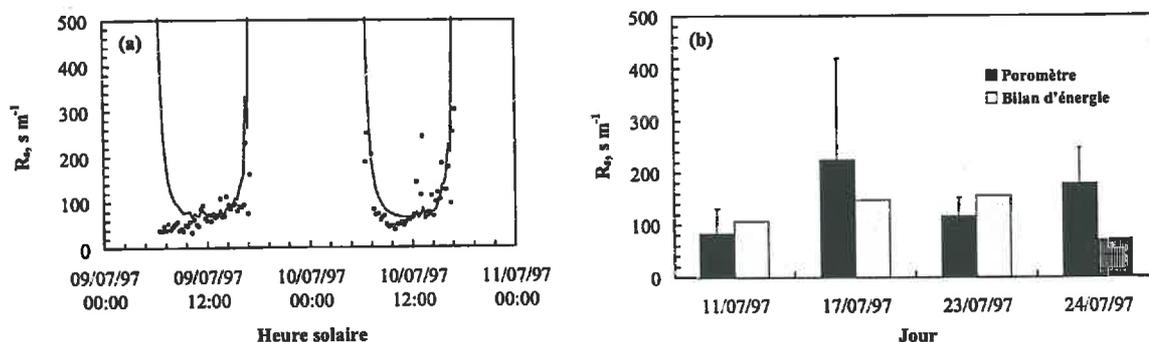


Figure IV.10. (a) Résistance stomatique estimée par inversion du bilan d'énergie (points), et modélisée avec le modèle de l'Eqn. IV.24 et les paramètres avec  $p = 25\ W\ m^{-2}$  et  $r_{smin} = 157\ s\ m^{-1}$ , au cours des deux même journées que sur la Figure IV.8. (b) Comparaison entre valeurs estimées avec le poromètre et par inversion du bilan d'énergie, sauf le 24/07 où le modèle de l'Eqn. IV.24 est utilisé dans la comparaison.

La distribution de résistance stomatique,  $R_s^m$ , obtenue en appliquant le modèle, avec les paramètres  $p$  et  $r_{smin}$  calés sur les mesures, est nettement différente de celle estimée directement (Figure IV.9). Cette différence provient du filtrage des données, réalisé lors de l'estimation des paramètres du modèle, mais aussi de la simplification entraînée par l'utilisation de ce modèle qui ne prend pas en compte des facteurs susceptibles de diminuer la résistance apparente, telles l'évaporation après la pluie et la rosée etc. En effet, la partie droite de la distribution de  $R_s^m$  est comparable à celle de  $R_s$ , mais la partie gauche, correspondant à des fortes valeurs de  $H$  et qui pourrait donc correspondre à une surestimation de  $H$ , est tronquée.

La Figure IV.10a donne la comparaison entre modèle et estimation par inversion de bilan d'énergie. La différence observée, le matin du 09/07, pourrait être due à une sous estimation du flux de chaleur sensible  $H$ , ou bien à l'évaporation du sol, qui pouvait potentiellement être importante 3 jours après un épisode pluvieux important de (120 mm de pluie en 3 semaines).

Globalement, les écarts entre  $R_s$  estimés par inversion de bilan d'énergie et mesurés au champ avec les poromètres sont du même ordre que les incertitudes de mesure (Figure IV.10b). Aucune différence systématique n'est observable.

#### IV.3.5 Gradients d' $NH_3$ au-dessus du couvert

Les mesures de gradient qui ont été réalisées au-dessus du couvert, à 160 m en aval de la source ont permis d'estimer le flux vertical moyen d' $NH_3$  à la hauteur de mesure  $z_m$ . Ce flux n'est pas égal au dépôt d' $NH_3$  sur la végétation, étant donné les conditions d'advection intense qui règnent si près de la source (Fowler et Duyzer, 1989; Loubet *et al.*, 1999b). En revanche, l'intensité du flux permet de contraindre d'avantage le modèle de dépôt et sa variation au cours du temps constitue par ailleurs une information intéressante. Sur l'ensemble des séries de mesures seules quatre ont été exploitées pour estimer un flux d' $NH_3$ , les autres présentant des anomalies soit de l'analyseur en flux continu, soit d'autres mesures micrométéorologiques

(Figures IV.11, IV.12, IV.13).

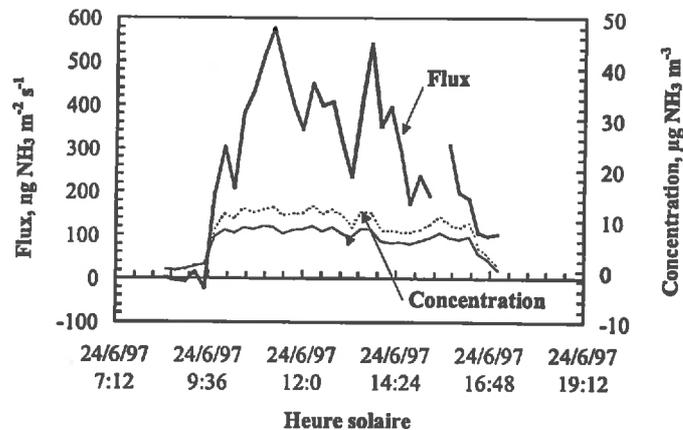


Figure IV.11. Flux et concentration d' $\text{NH}_3$  mesurés lors de la série  $S_1$ , le 24/06, avec le denuder à flux continu, à la hauteur  $z_m = 0.10$  m (au-dessus de  $d$ ). La densité de source était de  $1514 \mu\text{g m}^{-1} \text{s}^{-1}$  (Tableau IV.3).

La concentration aux deux niveaux variait entre 4 et  $30 \mu\text{g NH}_3 \text{m}^{-3}$ , selon les séries de mesure, et elle est toujours plus élevée sur le niveau inférieur que sur le niveau supérieur, indiquant une émission apparente (flux positif). Les différences de concentration et de gradient de concentration entre les séries peuvent s'expliquer par des changements de direction du vent, et de hauteur de la source, mais aussi par la position des capteurs relativement au couvert (voir dans la suite du texte, et la légende sur les Figures).

Les flux observés sont très variables, et dépendent notamment de l'intensité de la source, comme le montre le changement de flux observé le 08/07 lorsque le débit de source a été réduit environ de moitié. Tous les flux mesurés sont positifs, c'est à dire dirigés vers le haut, alors qu'il est probable vu les concentrations atmosphériques qu'il y ait eu du dépôt sur la végétation. Les flux mesurés variaient entre 40 et plus de  $1000 \text{ng NH}_3 \text{m}^{-2} \text{s}^{-1}$ , pour des intensités de source allant de 1200 à  $1500 \mu\text{g NH}_3 \text{m}^{-1} \text{s}^{-1}$ . Le flux surfacique à cette distance de la source ne représente donc que de 0.004 % à 0.1% du débit linéaire de la source.

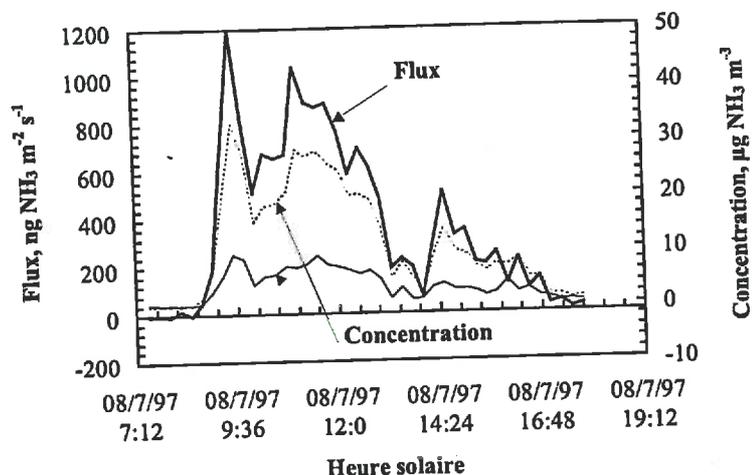


Figure IV.12. Flux et concentration d' $\text{NH}_3$  mesurés lors des séries  $S_2$  et  $S_3$  le 08/07, avec le denuder à flux continu. À la hauteur  $z_m = 0.55$  m (au-dessus de  $d$ ). La densité de source était de  $1493 \mu\text{g m}^{-1} \text{s}^{-1}$  pour la série  $S_2$ , et  $829 \mu\text{g m}^{-1} \text{s}^{-1}$  pour  $S_3$  (Tableau IV.3). L'intensité de la source a été changée à 12h30.

L'arrivée du panache au niveau du mât est très nettement visible sur les trois Figures, avec une brusque augmentation des concentrations et des flux. Au cours de la période d'émission, la concentration et le flux peuvent doubler en l'espace de 15 minutes. Cette variabilité pourrait en partie être due aux changements de direction du vent. Mais les fluctuations de la direction du vent semblent également avoir un effet sur le flux.

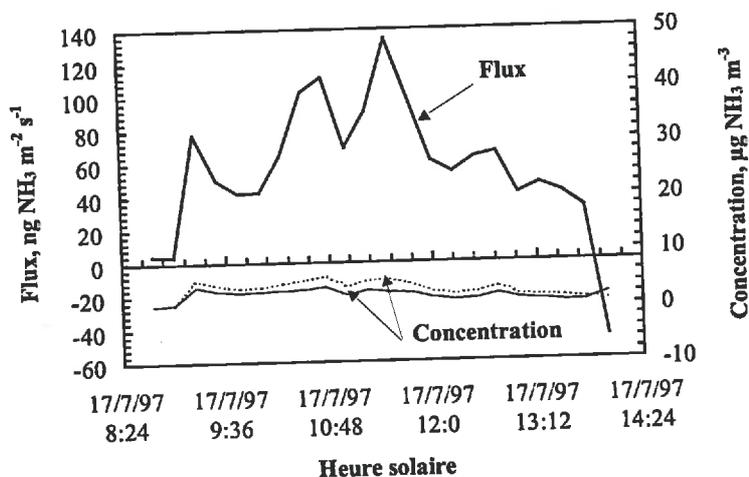


Figure IV.13. Flux et concentration d' $\text{NH}_3$  mesurés lors des séries  $S_7$  et  $S_8$ , le 17/07, avec le denuder à flux continu. À la hauteur  $z_m = 0.70$  m (au-dessus de  $d$ ). Les densités de source étaient de  $1362 \mu\text{g m}^{-1} \text{s}^{-1}$  et  $1235 \mu\text{g m}^{-1} \text{s}^{-1}$  (Tableau IV.3).

Les flux mesurés le 08/07 dans la matinée sont à peu près 2 fois supérieurs à ceux du 24/06, et ceux mesurés le 17/07 sont 8 fois inférieurs aux premiers, alors que les intensités de sources étaient équivalentes. Plusieurs facteurs climatiques peuvent être avancés pour expliquer ces différences : (i) le couvert était bien plus humide le 24/06 que le 08/07 et le 17/07, comme l'indiquent les précipitations le jour même, et l'humidité relative de l'air plus forte ce jour là. Ceci a put entraîner des dépôts plus importants qui pourraient expliquer le

rapport 2 entre flux mesurés le 24/06 et 08/07. (ii) La direction moyenne du vent était très éloignée de l'axe des mâts le 17/07, ce qui a pour conséquence de placer le mât de mesure partiellement en dehors du panache, et donc de diminuer la concentration moyenne et le flux de façon importante (Tableau IV.6). (iii) Enfin, la source était au-dessus du couvert ( $h_s/h \geq 1$ ) pour les séries S<sub>1</sub>, S<sub>7</sub> et S<sub>8</sub>, (24/06 et 08/07), alors qu'elle était dans le couvert ( $h_s/h \leq 1$ ) pour les séries S<sub>2</sub> et S<sub>3</sub> (17/07), ce qui aurait pour effet d'augmenter la quantité d'NH<sub>3</sub> absorbée par le couvert. Mais pour analyser ces différences, en tenant compte des nombreux facteurs entrant en jeu, il est nécessaire d'utiliser un modèle (cf. Chapitre V).

### IV.3.6 Conditions d'échange dans le couvert

#### IV.3.6.1 Profils de vitesse du vent

Les profils de vitesse du vent dans le couvert, à 12 m (mât BM) et 162 m de la source (mât MM), normalisés par la vitesse de frottement  $u_*$ , sont représentés en fonction de la hauteur normalisée  $z/h$  (Figure IV.14). Tous les profils ont la même forme, avec un point d'inflexion située souvent légèrement en dessous du sommet du couvert, et une décroissance très forte dans le couvert.

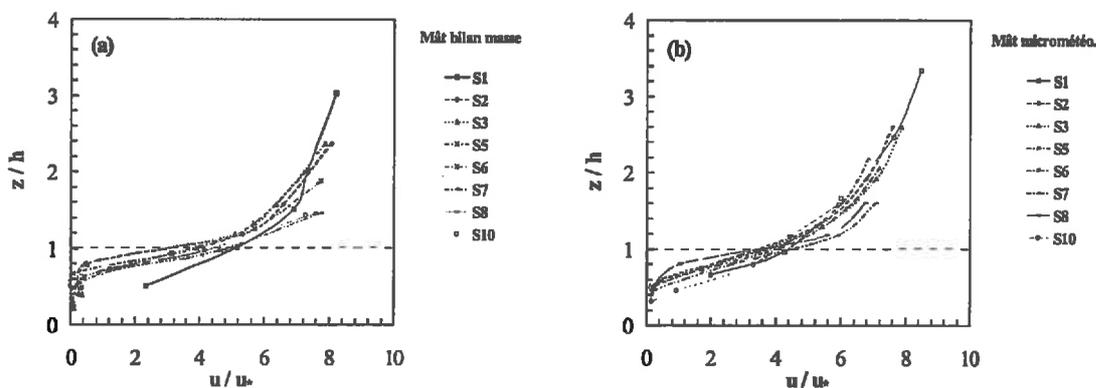


Figure IV.14. Profils de vitesse moyenne du vent dans le couvert, normalisés par la vitesse de frottement,  $u_*$ , mesurée sur le mât MM. (a) Mât bilan de masse à 12 m en aval de la source. (b) Mât micrométéorologique à 162 m en aval de la source.

On note en particulier que les profils au niveau du mât MM ont tous les mêmes caractéristiques (Figure IV.14b), alors que le profil S<sub>1</sub> au niveau du mât bilan de masse est différent des autres (Figure IV.14a). Ceci peut être attribué à la position du mât BM; lors de la série S<sub>1</sub>, le mât BM était situé en milieu du champ (axe ① sur la Figure IV.4), alors que pour toutes les autres séries, il était situé en bordure nord du champ (voir Figure IV.2). De plus, l'orientation du vent par rapport aux rangs était différente dans les deux situations. Le point d'inflexion observé sur la Figure IV.14a, pourrait être dû à la présence d'arbres à 150 m en amont.

Sur la Figure IV.14b (MM), les pentes des profils de vent au-dessus du couvert sont toutes relativement semblables, ce qui est normal puisque la pente du profil est

proportionnelle à  $u_*$  (proche de la neutralité thermique) et que le profil est normalisé par  $u_*$ . En revanche sur la IV.14a (BM), ces pentes changent légèrement entre séries. Ceci indique que d'autres paramètres interviennent dans la détermination du profil de vent près du bord du champ, et notamment la hauteur du couvert et la direction du vent.

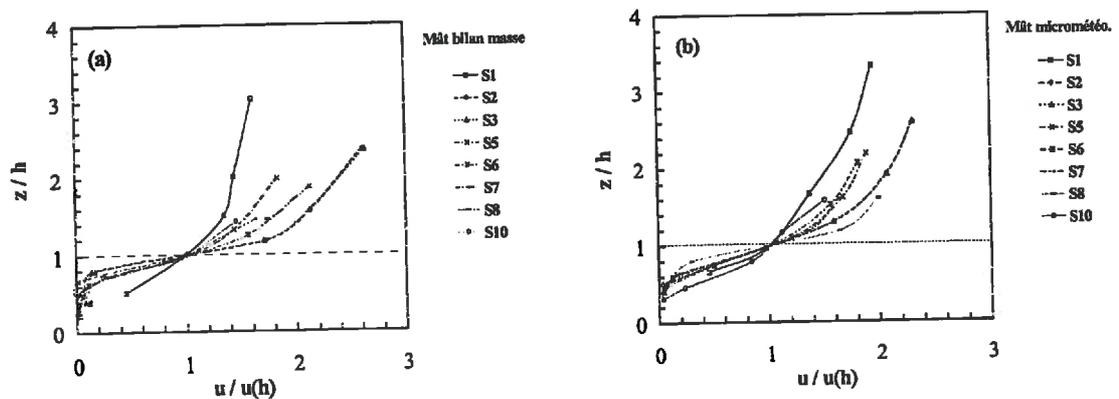


Figure IV.15. Profils de vitesse moyenne du vent dans le couvert, normalisés par la vitesse du vent à la hauteur du couvert  $u(h)$ . (a) Mât bilan de masse à 12 m en aval de la source. (b) Mât micrométéorologique à 162 m en aval de la source.

La normalisation du profil de vitesse du vent par  $u_*$  permet de comparer les profils au-dessus du couvert, car  $u_*$  est l'échelle de vitesse caractéristique dans la CLS. La normalisation par  $u(h)$  (Figure IV.15) permet de comparer les profils dans le couvert (Raupach *et al.*, 1996). Sur le mât MM (Figure IV.15b), les profils ainsi normalisés sont tous très voisins dans le couvert. C'est aussi le cas sur le mât BM (Figure IV.15a), sauf pour la série S<sub>1</sub>, pour les raisons évoquées ci-dessus.

On remarque que la vitesse du vent s'amortit plus rapidement sur le mât BM que sur le mât MM. Le coefficient d'extinction  $\zeta$  de la vitesse du vent dans le couvert est plus grand sur BM que sur MM. Ceci est très certainement dû à la présence d'une série de 2 à 5 rangs plus serrés lié à la réalisation du semis en bords de champ, située juste en amont du mât BM.

#### IV.3.6.2 Profils de température de l'air

Le profil de température moyenne de l'air normalisé par la température au sommet du couvert, en fonction de la hauteur normalisée (Figure IV.16a), correspond toujours à un gradient négatif au-dessus du couvert. Cela illustre bien la stratification instable de l'air (air chaud en bas), due au réchauffement du couvert par l'action du rayonnement solaire.

Dans le couvert, un maximum de température de l'air  $T_{max}$  est observé. Son amplitude semble être proportionnelle au gradient de température au-dessus du couvert, et sa hauteur  $z_{Tmax}$  également. Comme le gradient au-dessus du couvert est proportionnel au flux de chaleur sensible, qui trouve son origine dans le rayonnement net  $R_n$ , il est probable que  $T_{max}$  et  $z_{Tmax}$  sont reliés à  $R_n$ .

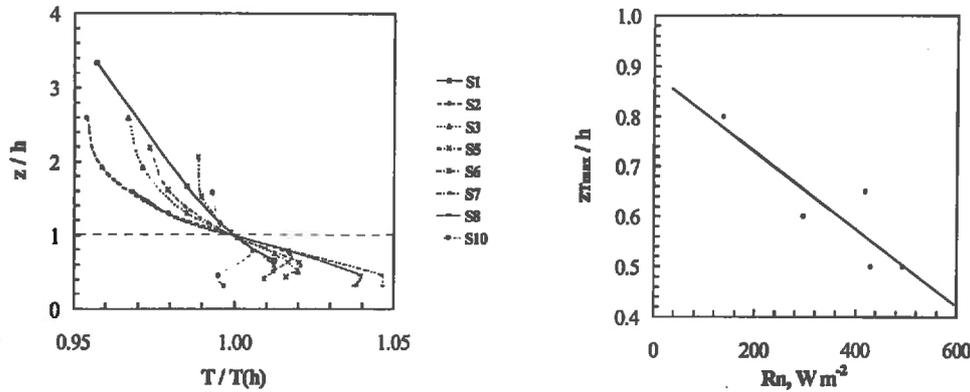


Figure IV.16. (a) Profils de température moyenne du vent dans le couvert, normalisés par la température moyenne à la hauteur du couvert  $T(h)$ . (b) Hauteur du maximum de température dans le couvert en fonction du rayonnement net.

La Figure IV.16b montre en effet que  $z_{max}$  est d'autant plus faible que le rayonnement est fort. Il est évident que d'autres facteurs interviennent dans cette relation, comme l'inclinaison du soleil, l'orientation des rangs, ou le stade de développement.

La présence de  $T_{max}$  indique que cette zone du couvert agit comme une source de chaleur pour l'atmosphère. Mais cela ne renseigne en rien sur le sens du flux en dessous du maximum, car d'une part le flux net est la somme de tous les flux et que le sol est une source de chaleur puisque la température de surface de sol est supérieure à celle du couvert (Figure IV.7), et d'autre part, il existe des situations de flux à contre-gradient dans le couvert (cf. Chapitre II ; Thurtell, 1989).

#### IV.3.6.3 Caractéristiques de la turbulence

Les écart-types des composantes de la vitesse du vent  $\sigma_u$ ,  $\sigma_v$  et  $\sigma_w$  mesurés pendant trois jours sont donnés sous forme adimensionnée dans le Tableau IV.7, avec les autres moments des distributions de vitesses du vent. On constate que les  $\sigma_w / u_*$  ne varie que de 14% entre les trois séries, tandis que  $\sigma_u / u_*$  varie de 24%, et  $\sigma_v / u_*$  varie de 46%.

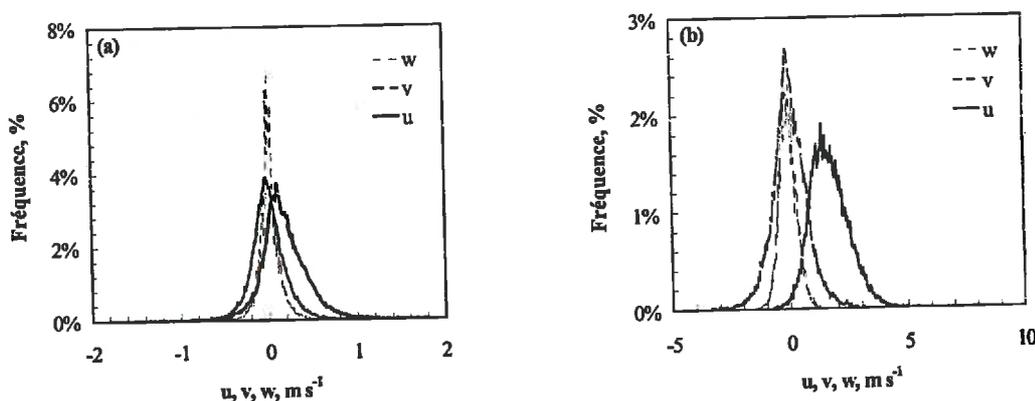
Les coefficients d'asymétrie  $Sk_u$  et  $Sk_w$  mesurés à 2.5 m de hauteur se situent dans les gammes citées dans la bibliographie pour des couverts développés (Raupach *et al.*, 1996).  $Sk_u$  est relativement éloigné la distribution gaussienne ( $Sk = 0$ , distribution symétrique), et est légèrement supérieure aux valeurs courantes à cette hauteur.  $Sk_w$  est plus proche des valeurs gaussiennes, sauf lorsque la hauteur de mesure se rapproche du sommet du couvert, où il devient négatif. La combinaison de  $Sk_u$  positif et  $Sk_w$  négatif indique l'existence de périodes de balayage ( $u' \geq 0$  et  $w' \leq 0$ ) et d'éjection ( $u' \leq 0$  et  $w' \geq 0$ ) (Collineau, 1993), qui sont beaucoup plus présents dans le couvert qu'au-dessus.

**Tableau IV.7.** Caractéristiques des distributions de vitesse du vent mesurées à (1)  $z = 0.5$  m et  $x = 25$  m, (2)  $z = 0.5$  m et  $x = 150$  m, et (3)  $z = 2.5$  m et  $x = 150$  m, à trois dates. La hauteur du couvert ainsi que la longueur de Monin et Obukhov sont également donnés. Les vitesses de frottement utilisées sont  $u_* = 0.37$  m s<sup>-1</sup> (24/06),  $u_* = 0.29$  m s<sup>-1</sup> (03/07),  $u_* = 0.22$  m s<sup>-1</sup> (30/07).

sonique	Jour	$\sigma_u / u_*$	$\sigma_v / u_*$	$\sigma_w / u_*$	$Sk_u$	$Sk_w$	$Ku_u$	$Ku_w$	$h$ (m)	$z_m / h$	$u_*$ (m s <sup>-1</sup> )	$L$ (m)
3	24/06/97	2.37	2.09	1.25	0.36	0.15	3.0	3.9	0.95	2.6		-50
	03/07/97	3.01	2.93	1.42	0.34	0.07	3.2	3.9	1.05	2.4		-44
	30/07/97	2.58	1.42	1.12	0.33	-1.03	4.4	4.9	2.06	1.2		-22
2	24/06/97	1.09	0.56	0.66	0.9	-1.6	4.3	6.3	0.95	0.53		-50
	03/07/97	0.74	0.66	0.43	-0.06	-0.54	4.4	6.1	1.05	0.48		-44
	30/07/97	1.67	0.24	0.22	-0.55	-0.42	5.8	6.2	2.06	0.25		-22
1	24/06/97	1.13	0.73	0.65	1.0	-1.4	5.4	7.5	0.95	0.53		-50
	03/07/97	0.94	0.78	0.53	0.23	-0.38	5.7	7.2	1.05	0.48		-44
	30/07/97	1.72	0.23	0.23	0.31	-0.22	6.1	7.2	2.06	0.25		-22

Le coefficient d'aplatissement  $Ku_u$  est proche de la valeur gaussienne ( $Ku = 3$ ).  $Ku_w$  est quant à lui proche de la normalité lorsque  $z_m / h$  est élevé puisqu'il augmente de façon importante quant  $z_m / h$  se rapproche de 1.  $Ku_w$  près du couvert est proche de la valeur des distributions extrêmes de Gumbel ( $Ku = 5.4$ ) qui caractérise le haut d'un couvert de prairie (Aylor *et al.*, 1993).

Les distributions de vitesse dans le couvert et au-dessus sont très différentes, comme le montre la Figure IV.17. Les composantes verticales et transversales de la vitesse ont des distributions bien symétriques au-dessus du couvert. Le coefficient d'asymétrie pour la composante verticale reste faible pour les deux niveaux (Tableau IV.7). L'asymétrie de la composante horizontale est plus nette. Elle est visible au-dessus comme en dessous. Le coefficient d'aplatissement est plus difficile à observer directement. On distingue pourtant que l'aplatissement de la distribution de  $w$  semble plus important dans le couvert qu'au-dessus (Figure IV.17).



**Figure IV.17.** Distribution 1D des trois composantes de la vitesse du vent (a) dans le couvert (sonique 1) et (b) au-dessus (sonique 3). Distribution calculée sur 600x60x4 données avec correction de verticalité le 03/07 entre 9h et 13h. Noter que les axes sont différents sur les Figures (a) et (b).

Le spectre de puissance des composantes de la vitesse du vent des trois anémomètres, le

24/06 et le 30/07, donne d'autres informations intéressantes, car entre ces deux dates la hauteur du couvert passe de 0.95 m à 2.1 m, et le vent vient de deux directions différentes avec des obstacles différents en amont ; des arbres à l'Ouest (24/06), et le bord du champ au Nord (30/07) (Figure IV.18).

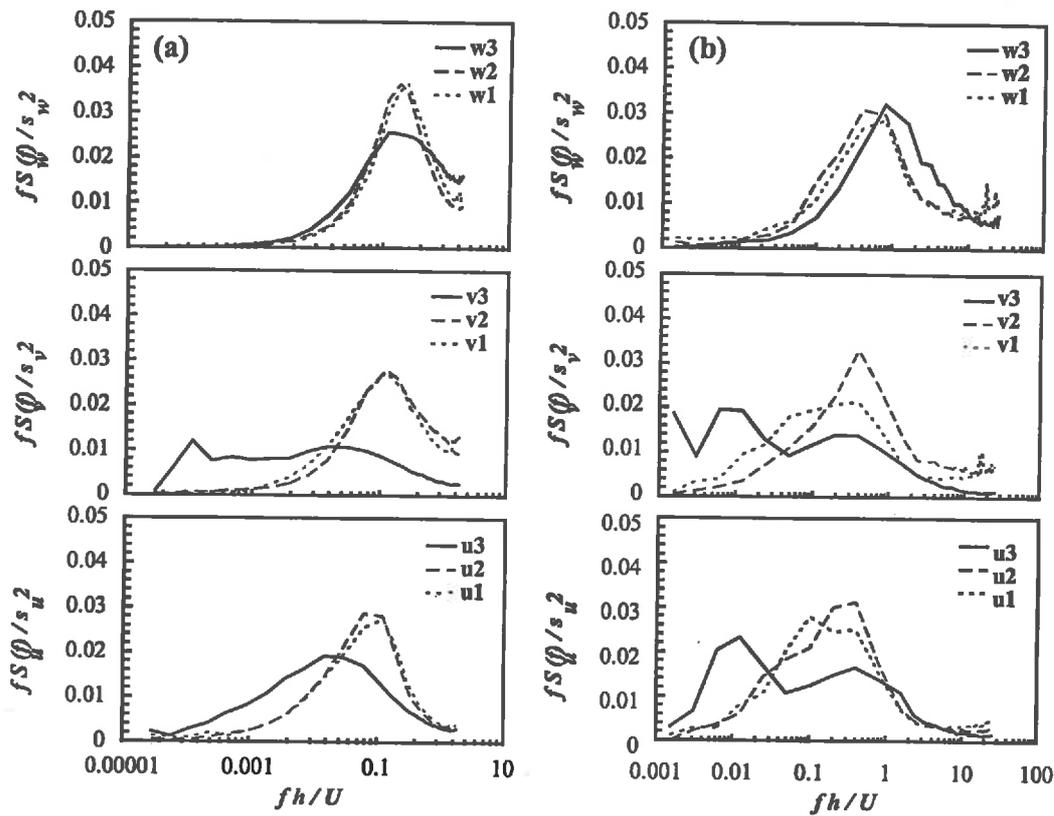


Figure IV.18. Spectre de puissance des composantes  $u$ ,  $v$ ,  $w$  de la vitesse du vent sur chaque sonique. Le sonique 3 est à 2.5 m, tandis que les deux autres sont à 0.5 m, au-dessus du sol. (a) le 24/06 à 9h30 et 10h30, sur un couvert de 1.0 m de hauteur,  $u_* = 0.37 \text{ m s}^{-1}$ ,  $L = -50 \text{ m}$ . (b) le 30/07 entre 9h00 et 12h00, sur un couvert de 2.06 m de hauteur,  $u_* = 0.22 \text{ m s}^{-1}$ ,  $L = -22 \text{ m}$ .  $U$  est la vitesse moyenne sur le sonique n°3. Noter l'erreur de repliement de bande qui engendre une remontée du spectre aux hautes fréquences.

Si l'on compare tout d'abord les spectres des différentes composantes entre eux pour une même situation (Figure IV.18a et b), il apparaît que (i) tous les  $S_w(f)$  (composante verticale  $w$ ) ont une forme quasiment identique, (ii) les  $S_w(f)$  n'ont pas de composante basse fréquence, contrairement aux  $S_u(f)$  et  $S_v(f)$ , dont une grande partie de l'énergie est contenue dans les basses fréquences. On remarque seulement des translations ou des modulations d'amplitude du spectre, qui traduisent des différences d'échelle de temps de la turbulence. On note dans les hautes fréquences, que dans le couvert,  $S_w(f)$  possède une pente plus forte qu'en dehors, ce qui pourrait traduire l'augmentation du transfert d'énergie vers les petites structures par l'action du feuillage.

En revanche,  $u$  et  $v$  ont une très forte composante basse fréquence, pour les mesures hors du couvert, qui est plus forte encore le 30/07, mais les soniques 1 et 2 situés dans le couvert

végétal ne présentent pas cette composante, ce qui montre que l'écoulement dans le couvert est moins influencé par la topographie du lieu que l'écoulement externe. Le pic en basse fréquence, observé le 30/07, et qui n'est pas aussi fort le 24/06, pourrait être lié soit à la direction du vent (bord du champ en amont), soit à des conditions plus instables entraînant une plus grande variabilité basse fréquence qui se retrouve dans les écart-types de la direction du vent.

Le 30/07, on note que  $S_v(f)$  sur le sonique 1 situé à 25 m du bord du champ est relativement différente de celle du sonique 2 situé au milieu du champ. Cet écart peut s'expliquer par la présence du bord du champ, étant donné que le vent étant orienté de biais par rapport au bord et à l'axe des rangs, et de direction très variable au cours du temps.

Par ailleurs, la mesure continue de  $\sigma_u$  et de  $u_*$  sur le mât MM à permis d'obtenir une estimation de la variation de  $\sigma_u / u_*$  en fonction du paramètre de stabilité  $z/L$  (Figure IV.19). Le calcul du rapport  $\sigma_u / u_*$  en condition neutre, stable, instable donne respectivement  $\sigma_u / u_* = 2.69 \pm 0.6$ ,  $4.10 \pm 0.6$ , et  $3.05 \pm 0.86$ . Le rapport est plus faible en condition neutre, car  $u_*$  est le plus grand. En conditions stables il augmente quand  $u_*$  tend vers 0 (ou quand  $z/L$  tend vers 1, cf. Figure IV.6). En conditions instables il augmente légèrement. Qualitativement, Yee *et al.* (1995) ont trouvé le même type de résultats.

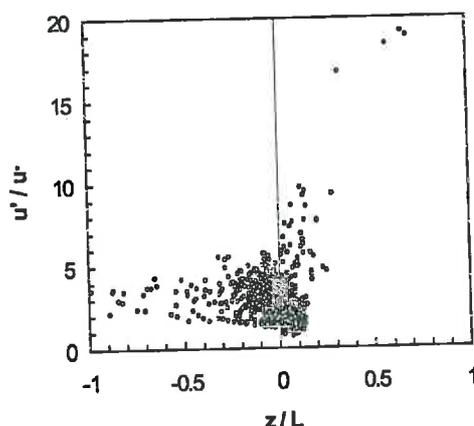


Figure IV.19. Variation du rapport  $\sigma_u / u_*$  en fonction du paramètre de stabilité  $z_m / L$ . Données quart horaires entre le 05/07 et le 24/07, mesurés avec l'anémomètre sonique.

### IV.3.7 Concentrations moyennes dans le couvert

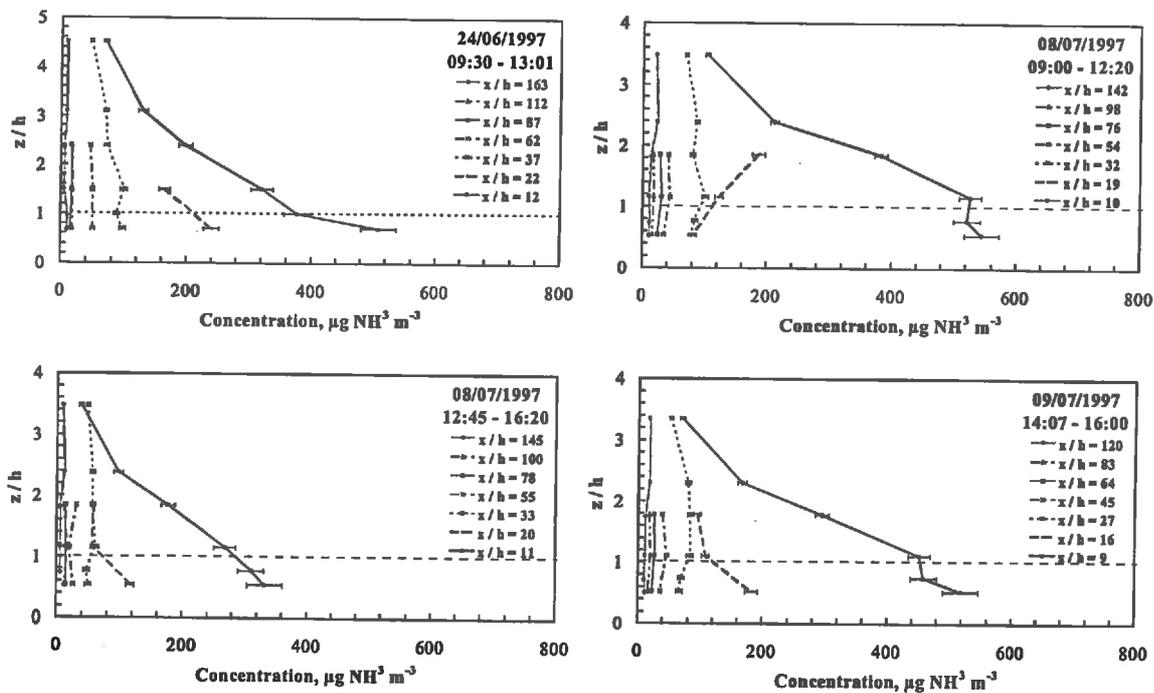
#### IV.3.7.1 Profils verticaux

Les concentrations mesurées sur les trente "tubes à diffusion" au champ sont représentés sous formes de profils verticaux sur la Figure IV.20. La source était placée à 1.2 m au-dessus du sol jusqu'au 11/07, puis 2.5 m ensuite. Les concentrations mesurées varient entre environ 2 et  $800 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ , globalement, la concentration à 12 m de la source varie entre 250 et  $800 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$  dans le couvert, et de 2 à  $20 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$  à 150 m.

Au-dessus du niveau de la source, la concentration décroît avec l'altitude sur le mât BM (le plus proche de la source). Sur le mât situé à 37 m de la source, la concentration au-dessus du couvert décroît jusqu'à la série S<sub>6</sub>, après cette date, elle croît entre les deux niveaux les plus haut. La même remarque peut être faite pour le mât MM (situé à 162 m de la source). Cette observation est à rapprocher de la hauteur de la source qui change lors de la série S<sub>6</sub>.

Globalement, sauf quelques exceptions qui peuvent être liées aux incertitudes de mesure, la concentration décroît quand la distance à la source augmente, et ce à chaque niveau de mesure, mais la différence est plus prononcée au sommet du couvert, où se situe la source. Plus haut, les concentrations à 12 m (mât BM) et 37 m, sont comparables (séries S<sub>1</sub> à S<sub>5</sub>). Cela est moins net pour les séries suivantes, car la source était placée plus haut, et le couvert ayant poussé, la hauteur maximale des mâts  $z/h$  diminue.

Les profils à 12 m présentent des similitudes pour une hauteur de source donnée. Lorsque la source est à 1.2 m (S<sub>1</sub>-S<sub>5</sub>), la concentration maximale se situe dans le couvert, où elle semble parfois relativement constante (S<sub>2</sub>, S<sub>4</sub>, S<sub>5</sub>), et elle décroît fortement au-dessus. Lorsque la source est à 2.5 m, la concentration maximale est localisée au sommet du couvert (S<sub>6</sub>-S<sub>8</sub>), voire au-dessus (S<sub>8</sub>-S<sub>9</sub>), et elle décroît dans le couvert et au-dessus. Malgré ces points communs, il existe une variabilité assez forte, notamment dans le couvert, dont l'origine, qui peut être recherchée dans les conditions micrométéorologiques et la structure du couvert, reste à déterminer.



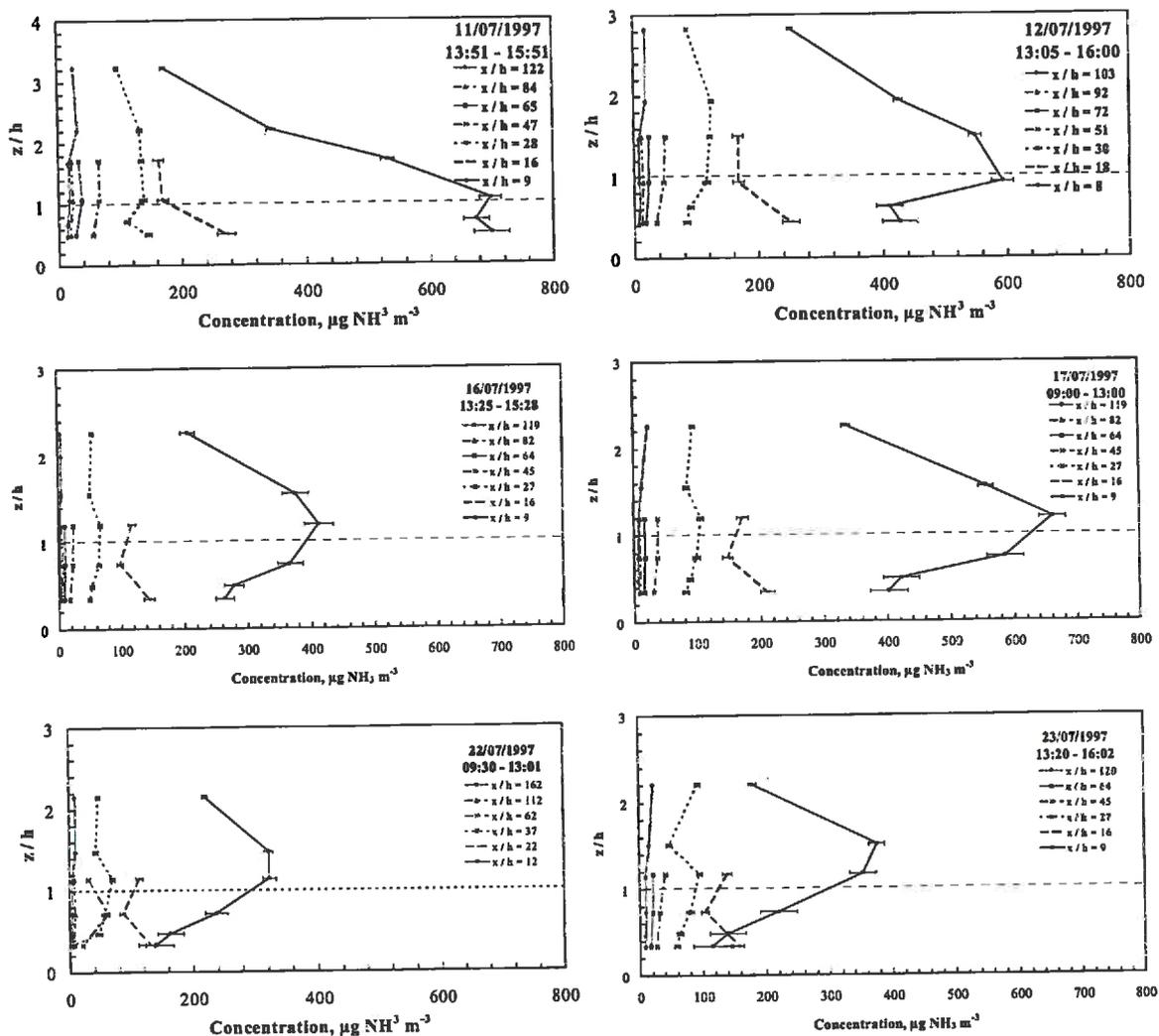


Figure IV.20. Profils verticaux de concentration moyenne mesurés lors des séries  $S_1$  à  $S_{10}$ . Les barres d'erreur représentent les incertitudes calculées comme indiqué dans le texte, de l'ordre de 5.5%.

Les profils de concentration à 37 m en aval de la source possèdent certaines des caractéristiques remarquées sur les profils à 12 m, notamment que la concentration est maximale dans le couvert lorsque la source est à 1.2 m et qu'elle est maximale au sommet de celui-ci lorsque la source est à 2.5 m. La forme du profil au-dessus du couvert est plus complexe à partir de la série  $S_7$ , et l'on observe sur les séries un point d'inflexion au-dessus du couvert. Ce point d'inflexion suggère l'existence d'un écoulement complexe en aval de la source, seul capable de générer un tel profil. La complexité de l'écoulement pourrait provenir du changement de rugosité, de la direction du vent par rapport au rangs, de la faible pente du terrain ( $\leq 0.5\%$ ), ou de la présence d'une zone de densité de semis plus élevée entre environ 8 et 12 m en aval de la source.

Les profils de concentration sur le mât MM présentent également un point d'inflexion, dans toutes les séries. C'est à dire que la concentration est plus grande au-dessus du couvert en dessous. Ces observations semblent corroborer l'hypothèse d'un panache qui s'élève

rapidement, mais le processus qui conduit à cette élévation n'est pas clair.

#### IV.3.7.2 Estimation des flux horizontaux – contrôle de la source

Le flux horizontal passant à travers le mât BM, situé à 12 m de la source ont permis de vérifier le débit de cette dernière. Le Tableau IV.8 reprend l'ensemble des estimations. Le flux estimé sur le mât bilan de masse,  $S_{BM}$ , est toujours supérieur au débit de source  $S_{srce}$ , d'au moins 54% et d'au plus 460%. L'incertitude sur  $S_{BM}$  ayant été estimée supérieure à 83%, cette comparaison démontre, dans certains cas au moins, l'existence d'un flux horizontal (par  $m^2$ ) plus important (de l'ordre de 2 à 5 fois) au niveau du mât bilan de masse que celui émis en moyenne par la source.

Tableau IV.8. Comparaison entre débits de source mesurés sur le dispositif d'émission  $S_{srce}$  et estimés sur le mât bilan de masse  $S_{BM}$ . L'estimation du flux passant au-dessus du mât BM est faite par extrapolation d'une fonction exponentielle à partir des deux points les plus hauts du profil de flux (cf. IV.2.5.5).  $F_{BM}$  est le flux horizontal pour une hauteur inférieure à 5 m (sur le mât bilan de masse). L'incertitude sur  $S_{BM}$  est comprise entre 41 et 83%.

Série	$S_{srce}$ $\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-1} \text{ s}^{-1}$	$S_{BM}$ $\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-1} \text{ s}^{-1}$	$F_{BM} (\leq 5 \text{ m})$ $\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-1} \text{ s}^{-1}$	Différence entre $S_{BM}$ et $S_{srce}$ %	Rapport de $F_{BM} (\leq 5 \text{ m})$ sur $S_{BM}$ %
S1	1514	2588	1952	71%	75%
S2	1493	2593	1906	74%	74%
S3	829	1276	1061	54%	83%
S5	1358	2750	1925	103%*	70%
S6 #	1099	3470	1859	216%*	54%
S7	1362	3191	1685	134%*	53%
S8	1235	6940	3003	462%*	43%
S10	1326	2473	1483	86%*	60%

\* Différence supérieure à l'incertitude sur l'estimation de  $F_{BM}$ . # Changement de hauteur de la source.

Ce flux horizontal plus élevé peut avoir plusieurs causes : (i) la source n'est pas homogène, et certaines sections émettent plus que d'autres, entraînant des variations en fonction de la direction du vent, (ii) l'orientation non perpendiculaire du vent par rapport à la source entraîne un enrichissement de l'air en  $\text{NH}_3$  supérieur à celui escompté, c'est à dire que l'on ne peut pas diviser le débit total de source par la longueur du tube pour calculer le débit linéaire. Ce biais dépend de la direction du vent et peut entraîner un accroissement de la concentration d'environ 15% à 100 m en aval de la source (Esplin, 1995), ce qui n'est pas suffisant pour rendre compte de l'écart observé. (iii) la topographie du lieu et la structure de la végétation, ainsi que l'orientation des rangs provoquent d'importants flux turbulents, dirigés à contre gradient. En reprenant les mesures sur maquette de Legg *et al.* (1986), on estime en effet que le flux turbulent de scalaire à  $x/h = 10$  est d'environ 15% du débit de source, ce qui est encore insuffisant.

Sans analyser en détails ces hypothèses, ce qui sera fait dans la partie discussion, il apparaît que la différence relative dépend en effet de la direction du vent, mais dépend peu d'autres paramètres tels que la hauteur du couvert. Le coefficient de corrélation linéaire entre la différence relative entre  $S_{srce}$  et  $S_{BM}$  et la direction du vent est de 0.53, tandis qu'avec la hauteur du couvert, il n'est que de 0.28. Ces coefficients sont toutefois peu représentatifs, vu le

faible nombre de données

Le rapport du flux horizontal en dessous de 5 m sur le flux horizontal total (Tableau IV.8, dernière colonne) décroît globalement au cours de la période. Cette décroissance peut-être attribuée (i) au changement de hauteur de la source, et (ii) à l'accroissement de la végétation qui entraîne une diminution de la hauteur au-dessus du couvert  $(5 - h) / h$ .

Par ailleurs, il apparaît également que la différence relative entre  $S_{BM}$  et  $S_{srce}$ , ainsi que la fraction du flux passant en dessous de 5 m (Tableau IV.8), est liée aux fluctuations de direction de vent. En effet, lorsque les fluctuations de direction du vent augmentent,  $F_{BM} / S_{BM}$  diminue, et la différence entre  $S_{BM}$  et  $S_{srce}$  augmente. Ce dernier point pourrait souligner l'existence d'une composante turbulente du flux importante. Toutefois, les fluctuations de direction de vent et la hauteur du couvert sont corrélées de telle sorte que ce résultat pourrait être un artefact, et il est donc difficile de conclure sur ce point, si ce n'est en faisant remarquer que les plus grandes fluctuations de direction du vent correspondent aux plus grandes valeurs de  $S_{BM}$ .

Enfin, il faut évoquer la possibilité que la source ait été endommagée au cours des séries de mesures, de sorte que la partie située à l'Ouest, c'est à dire dans la direction des  $\theta$  négatifs, ait une densité supérieure à l'autre moitié. Il est en effet notable que les trois séries durant lesquelles  $S_{BM}$  est maximal ( $S_6, S_7, S_8$ ) correspondent à une orientation du vent vers les Nord-Ouest, alors que dans toutes les autres le vent est dirigé vers la moitié Ouest de la source.

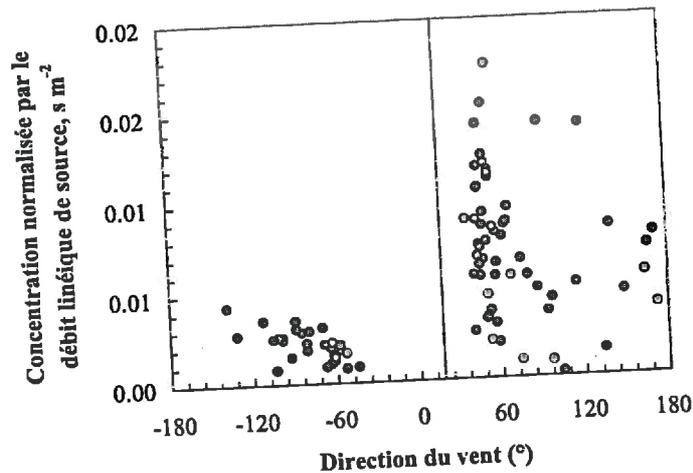


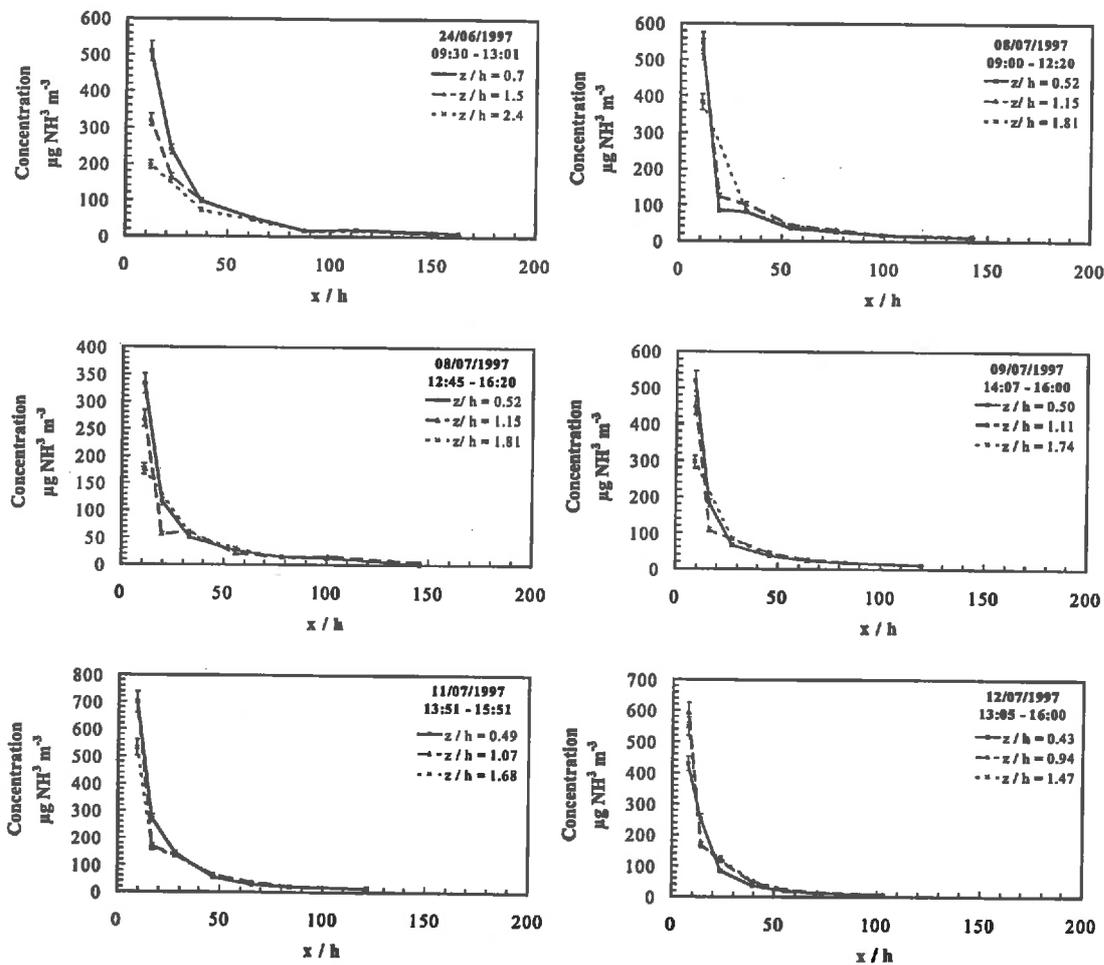
Figure IV.21. Concentration moyennes du mât MM, divisée par le débit de source  $Q_{src}$  en fonction de la direction moyenne du vent sur 15 min. La direction du milieu de la source est matérialisée par le droite (+17°).

La concentration mesurée sur les analyseurs à flux continu sur le mât micrométéorologique ne confirme pas cette observation (Figure IV.21). La concentration est plus élevée lorsque le vent est orienté vers l'Est. On ne peut donc pas conclure définitivement, car la zone où la concentration est la plus élevée correspond aussi aux directions du vent les mieux orientées, et il n'y a pas de points avec  $\theta \leq 0$  dans la gamme  $|\theta| \leq 60^\circ$ .

### IV.3.7.3 Gradients horizontaux dans le couvert

Les concentrations moyennes en  $\text{NH}_3$  sont représentées en fonction de la distance à la source. Afin de tenir compte de la direction du vent, et malgré les réserves exprimées concernant son effet (Esplin, 1995), la distance à la source est considérée comme la distance suivant la direction moyenne du vent  $X_{corr} = X / \cos(\theta)$ , où  $\theta$  est la direction du vent par rapport à l'axe des mâts. Afin de comparer les situations, la distance est également adimensionnée par la hauteur du couvert.

Globalement, les concentrations décroissent très rapidement ; de plusieurs ordres de grandeur sur des distances de l'ordre de  $x/h = 100$ . Seuls les profils des séries  $S_9$  et  $S_{10}$  présentent des caractéristiques différentes des autres, et il y a tout lieu de penser que la direction du vent par rapport à la source pourrait être à l'origine de cette différence, car c'est lors de ces séries, que la direction du vent était la plus éloignée de celle de l'axe des mâts.



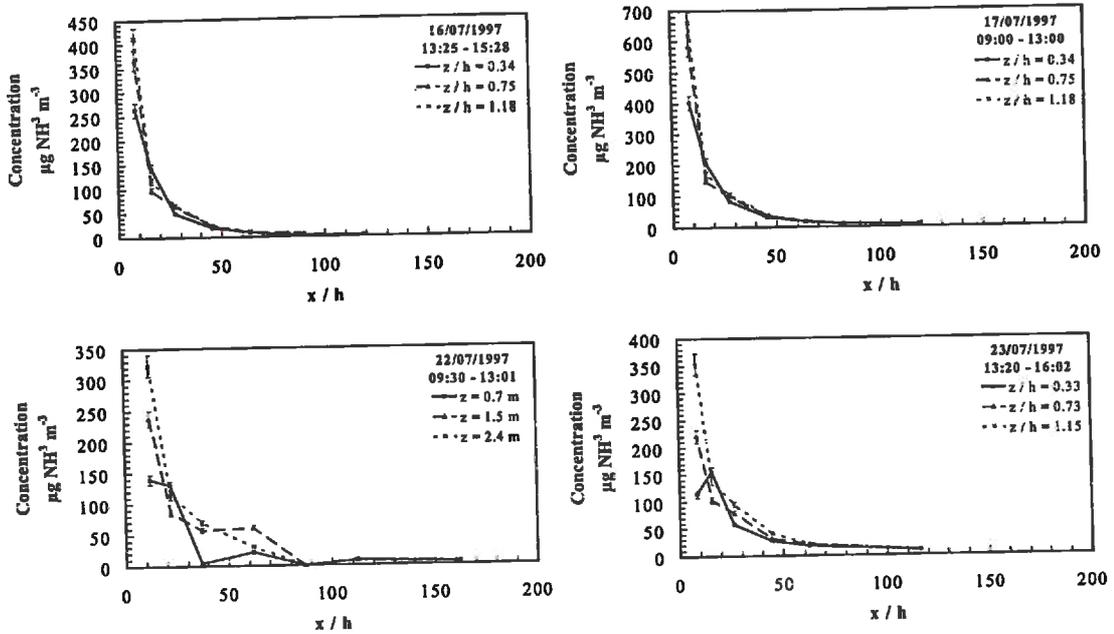


Figure IV.22. Concentration en  $\text{NH}_3$  en fonction de la distance en aval de la source, corrigée de la direction du vent, et normalisée par la hauteur du couvert, pour les séries  $S_1$  à  $S_{10}$ . Les trois hauteurs de mesure correspondent aux hauteurs des petits mâts de Ferm (4 sur la Figure IV.3).

IV.3.7.4 Concentrations adimensionnées

Afin d'aller plus loin dans la comparaison des concentrations d' $\text{NH}_3$ , celles-ci ont été adimensionnées. Pour construire cet adimensionnement, trois échelles les plus représentatives des conditions de dispersion ont été utilisées ; (i) comme échelle de longueur, la hauteur du couvert  $h$ , (ii) comme échelle de vitesse, la vitesse de frottement  $u_*$ , et (iii) comme échelle de "source", le débit linéaire de source  $S_{srce}$  (ou  $S_{BM}$ ). L'échelle de concentration proposée  $C_*$  est définie par :

$$C_* = S_{srce} u_* / h \tag{IV.27}$$

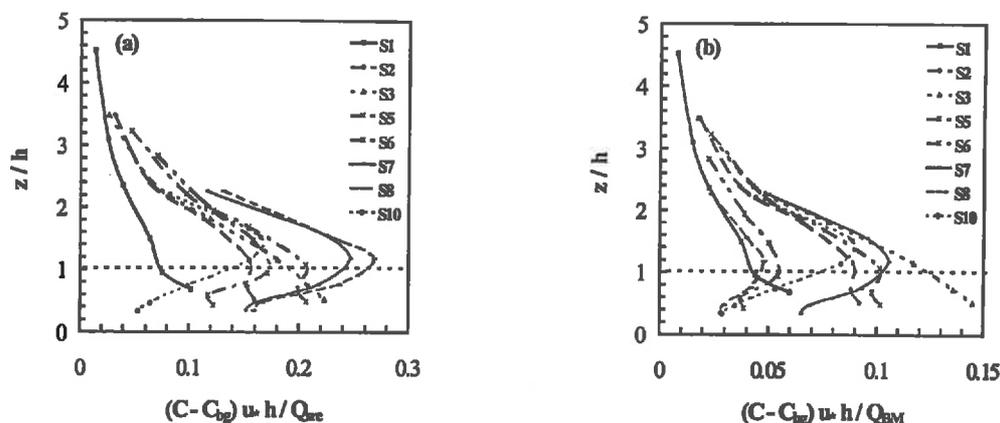


Figure IV.23. Profil vertical de concentration adimensionné  $C/C_0$  en fonction de la hauteur adimensionnée sur le mât BM. (a) Adimensionnement utilisant le débit de source  $S_{src}$ . (b) Adimensionnement utilisant le débit de source estimé sur le mât bilan de masse  $S_{BM}$ . Les barres d'erreur ont été omises par souci de clarté.

Les Figures IV.23a,b représentent les profils verticaux de concentration adimensionnée sur le mât BM, en utilisant  $S_{src}$  et  $S_{BM}$  comme débit source de référence. Par rapport aux profils non adimensionnés (Figure IV.20), l'adimensionnement permet de regrouper quelque peu les profils.

Sur la Figure IV.23b, les profils  $S_2$ ,  $S_3$ ,  $S_5$ ,  $S_7$ ,  $S_{10}$ , sont similaires dans la tranche de hauteur  $1 \leq z/h$ . De la même façon, les profils  $S_1$ ,  $S_6$ ,  $S_8$ , sont semblables entre eux. Les seules variables qui pourraient discriminer ces deux groupes de courbes sont la température du couvert  $T_c$  et du sol  $T_s$ , qui sont plus élevées pour le premier groupe, et l'humidité relative qui est plus grande pour le second. Pour le premier groupe de courbes, la température du couvert est généralement plus de deux degrés supérieure à celle de l'air au sommet du couvert, sauf pour la série  $S_{10}$ . Cela pourrait indiquer un effet de stabilité, mais le paramètre de stabilité ne présente pas de différence flagrante entre les séries.

Les profils de concentration normalisés sur les deux autres mâts de mesure (Figure IV.24a,b), ne se regroupent pas de la même façon. En particulier, les concentrations du mât situé à 37 m en aval de la source (Figure IV.24a) présentent une variabilité relativement importante.

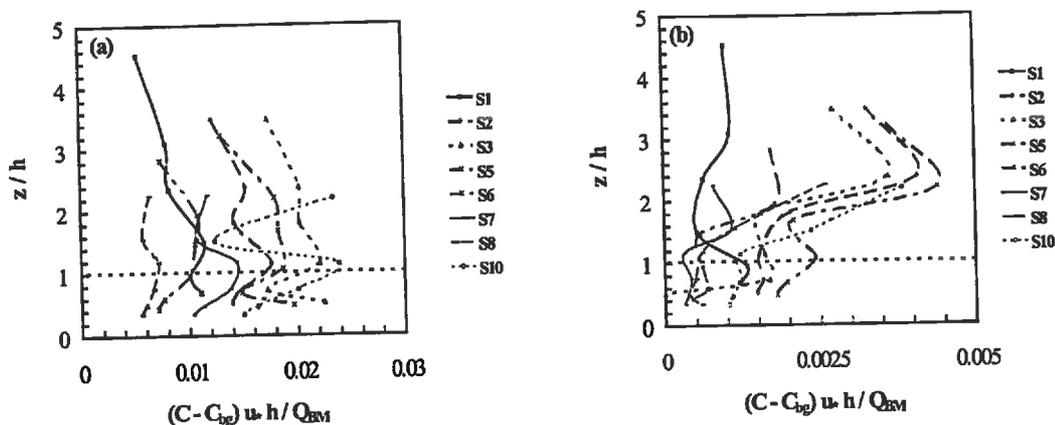


Figure IV.24. Profils verticaux de concentration adimensionnée en fonction de la hauteur adimensionnée sur les mâts situés à (a) 37 m, et (b) 162 m en aval de la source.  $C_{bg}$  est la concentration de fond. Les adimensionnement utilisent le débit de source estimé sur le mât bilan de masse  $S_{BM}$ .

Le même adimensionnement permet d'étudier l'évolution de la concentration dans le couvert en aval de la source. La concentration moyenne dans le couvert a été estimée comme la moyenne des concentrations mesurées sur chacun des denuders situé en dessous du sommet du couvert. Ainsi le nombre de denuders utilisé dans le calcul de la moyenne a augmenté au cours de l'expérimentation, de 1 au début, à 3 à la fin, puisque le couvert s'est développé alors que les hauteurs de mesures sont restées fixes.

La concentration moyenne dans le couvert, normalisée par le débit de source est représenté sur les Figures IV.25a,b en fonction de la distance normalisée à la source. Les mesures obtenues avec les analyseurs en flux continu (Amanda) sont également représentés. Les deux figures représentent les mêmes données sur un graphique log-log (Figure IV.25a) et avec une échelle normale (Figure IV.25b).

Sur cette Figure, les 8 séries de mesures se regroupent en une courbe unique de type fonction puissance (une droite sur le graphique log-log), alors qu'ils correspondent à des structures de couvert, et des écoulements différents (vitesse du vent, stabilité). L'intervalle de confiance à 68.3% (correspondant à un écart-type) montre que la loi est toutefois sujette à une forte incertitude.

Cette incertitude peut être également représentée par les écart-types des paramètres de la fonction de régression. Celle-ci est de la forme  $\ln(y) = a \ln(x) + b$ . En réalisant une régression linéaire avec cette fonction, on obtient pour  $a$  et  $b$  les écart-types suivants :  $\sigma_a = 0.15$  et  $\sigma_b = 0.55$ , avec  $a = -1.5$  et  $b = 1.4$ . L'incertitude relative est donc d'environ 10% sur la pente  $a$  de la fonction dans la représentation log-log, donc sur l'exposant de la fonction puissance dans la représentation normale (Figure IV.25b). L'incertitude sur  $b$  entraîne une variation dans le coefficient multiplicateur  $c$  de la fonction puissance (Figure IV.25b). En effectuant la transformation exponentielle, on trouve comme gamme (entre crochets) pour  $c$ ,  $c = 4.2 [2.4 ; 7.3]$ .

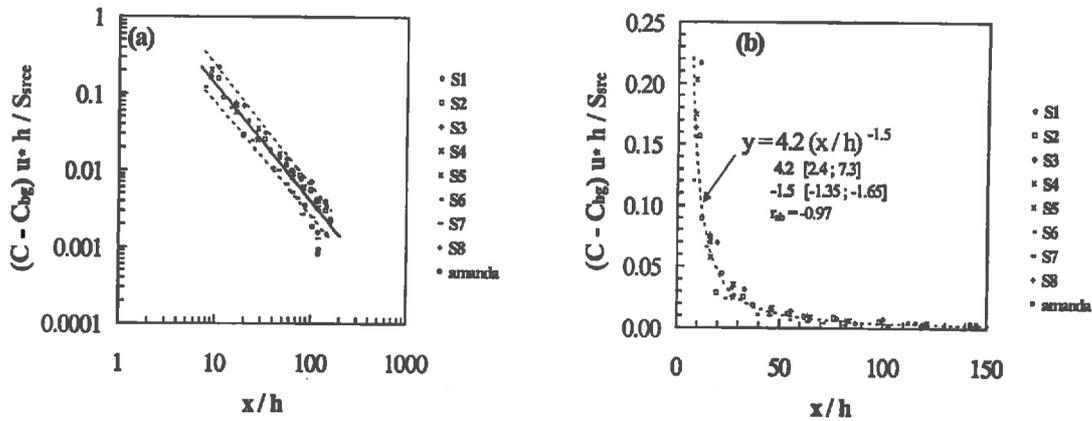


Figure IV.25. Concentration moyenne dans le couvert, adimensionnée par  $S_{source}$ , en fonction de la distance à la source corrigée de la direction du vent et adimensionnée par la hauteur du couvert  $h$ . (a) Représentation log-log. L'intervalle de confiance à 68.3% est représenté par les traits en pointillés. (b) Echelle normale. La fonction puissance obtenue par régression linéaire sur les coordonnées log-log est représentée en pointillée. La gamme d'incertitude sur les paramètres de cette fonction est donnée entre crochets.

Noter également que le coefficient de corrélation  $r_{ab}$  entre les deux paramètres a et b est presque égal à -1 ( $r_{ab} = -0.97$ ). Ce coefficient est calculé comme indiqué dans Press *et al.* (1994). Ce résultat signifie que  $a$  et  $b$  sont anticorrélés. Comme la transformation exponentielle est monotone, la plus grande valeur de  $b$  (7.3) dans la gamme d'incertitude correspond donc à la plus petite valeur de  $a$  (-1.65).

#### IV.3.8 Bilan des données moyennes sur chaque série

Afin de constituer une base de donnée aussi complète que possible pour la validation du modèle de dépôt sec, mais aussi pour l'analyse des résultats expérimentaux, les valeurs moyennes des variables d'intérêt sur les périodes expérimentales correspondant aux séries S<sub>1</sub>, S<sub>2</sub>-S<sub>3</sub>, S<sub>5</sub>-S<sub>8</sub> et S<sub>10</sub>, sont récapitulées dans les Tableaux IV.9 à IV.12. Ces tableaux ne sont pas commentés ici, mais la légende est détaillée sur chacun d'eux.

Tableau IV.9. Hauteur de mesure, du couvert, et de la source ; débit de la source estimée par différentes méthodes, direction moyenne du vent et son écart-type, et surface foliaire par unité de surface du sol.

Série	Hauteur moyenne de mesure <sup>4</sup> m	Hauteur de la source m	Hauteur du couvert m	Débit de source <sup>1</sup> $\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-1} \text{ s}^{-1}$	Débit de source <sup>2</sup> $\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-1} \text{ s}^{-1}$	Direction moyenne du vent ° / axe mâts	Ecart type de la direction du vent <sup>3</sup> °	Indice foliaire $\text{m}^2 \text{ m}^{-2}$
S1	1.6	1.2	1.0	1514	2588	5	21	1.5
S2	1.3	1.2	1.3	1493	2593	29	42	3.0
S3	1.2	1.2	1.3	829	1276	31	36	3.0
S5	1.1	1.2	1.5	1358	2750	18	101	3.2
S6	1.0	2.5	1.6	1099	3470	-10	115	3.3
S7	0.5	2.5	2.1	1362	3191	-47	83	3.9
S8	0.5	2.5	2.1	1235	6940	-47	113	4.0
S10	1.8	2.5	2.1	1326	2473	34	84	4.6

<sup>1</sup> Mesuré sur le dispositif d'émission, avec une incertitude de 7 à 9%. <sup>2</sup> Estimé à partir des mesures de concentration sur le mât bilan de masse, avec une incertitude allant de 40 à 90%. <sup>3</sup> Estimé comme la somme quadratique de la moyenne des écart-types de  $\theta$  sur 15 mn., et de l'écart-type des moyennes sur 15 mn. <sup>4</sup> Calculée comme la moyenne géométrique des deux niveaux de mesure, rapportés à la hauteur de déplacement  $d$ .

**Tableau IV.10.** Caractéristiques turbulentes moyennes : vitesse de frottement  $u_*$ , hauteur de déplacement  $d$ , longueur de rugosité  $z_0$ , longueur de Monin et Obukhov  $L$ . Termes du bilan d'énergie : Rayonnement net  $R_n$ , flux de chaleur dans le sol  $G$  (compté positivement vers le haut), flux de chaleur sensible  $H$ , et latente  $\lambda E$ .

Série	$u_*^*$ m s <sup>-1</sup>	$d$ m	$z_0$ m	$L$ m	$R_n$ W m <sup>-2</sup>	$G$ W m <sup>-2</sup>	$H$ W m <sup>-2</sup>	$\lambda E$ W m <sup>-2</sup>
S1	0.36 ± 0.10	0.74	0.10	-31 ± 31	201 ± 91	-8 ± 10	101 ± 44	92 ± 70
S2	0.30 ± 0.02	0.95	0.13	-33 ± 9	477 ± 105	-50 ± 12	86 ± 20	341 ± 100
S3	0.36 ± 0.03	0.95	0.13	-68 ± 22	470 ± 98	-87 ± 17	75 ± 26	308 ± 70
S5	0.23 ± 0.02	1.13	0.15	-24 ± 14	401 ± 142	-78 ± 22	57 ± 28	267 ± 100
S6	0.19 ± 0.06	1.20	0.16	-65 ± 216	269 ± 240	-55 ± 35	22 ± 25	170 ± 180
S7	0.25 ± 0.03	1.55	0.21	-66 ± 16	487 ± 88	-64 ± 12	55 ± 11	369 ± 80
S8	0.29 ± 0.02	1.55	0.21	-95 ± 25	444 ± 112	-44 ± 15	61 ± 15	337 ± 100
S10	0.25 ± 0.05	1.57	0.21	-34 ± 43	96 ± 139	-44 ± 67	50 ± 67	1 ± 150

**Tableau IV.11.** Température du couvert  $T_c$ , de la surface du sol  $T_s$ , et de l'air à 1 m au-dessus du couvert  $T_a$ , humidité relative de l'air  $HR$ , déficit de pression de vapeur  $DPV$ , rayonnement photosynthétiquement actif au-dessus ( $PAR_o$ ) et dans le couvert ( $PAR_c$ ).

Série	$T_c^*$ °C	$T_s^*$ °C	$T_a$ °C	$HR^*$ %	$DPV$ Pa	$PAR_o$ W m <sup>-2</sup>	$PAR_c$ W m <sup>-2</sup>
S1	16.0 ± 1.4	17.3 ± 1.7	15.1 ± 1.0	72 ± 8	576 ± 170	140 ± 62	60 ± 17
S2	24.6 ± 1.5	24.9 ± 2.2	22.4 ± 0.9	65 ± 4	911 ± 160	333 ± 66	59 ± 15
S3	26.3 ± 0.9	26.7 ± 1.0	24.1 ± 0.5	54 ± 2	1329 ± 70	335 ± 60	45 ± 21
S5	26.7 ± 1.5	26.9 ± 1.4	25.1 ± 0.4	53 ± 2	1466 ± 80	294 ± 90	32 ± 18
S6	24.8 ± 3.7	26.7 ± 3.0	24.2 ± 2.8	59 ± 12	1289 ± 470	196 ± 164	25 ± 24
S7	25.0 ± 0.8	25.6 ± 0.9	22.5 ± 0.3	66 ± 2	909 ± 70	350 ± 56	28 ± 10
S8	23.1 ± 1.7	24.2 ± 2.0	21.0 ± 1.1	62 ± 3	947 ± 140	318 ± 73	34 ± 10
S10	26.3 ± 1.1	27.3 ± 1.2	26.8 ± 0.9	41 ± 3	2082 ± 170	262 ± 103	11 ± 7

**Tableau IV.12.** Résistances aux échanges de gaz dans et au-dessus du couvert pour la vapeur d'eau : résistance atmosphérique à 1 m  $R_a(1\text{ m})$ , résistance d'excès du couvert  $R_b$ , résistance totale du couvert  $R_c$ , résistance stomatique du couvert  $R_s$ . La résistance stomatique modélisée par l'Eqn. IV.24 est également donnée  $R_s$  (modèle), ainsi que la résistance stomatique par unité de surface foliaire  $r_s$ . Médiane ± écart-type.

Série	$R_a(1\text{ m})$ s m <sup>-1</sup>	$R_b(H_2O)$ s m <sup>-1</sup>	$R_c(H_2O)$ s m <sup>-1</sup>	$R_s(H_2O)$ s m <sup>-1</sup>	$R_s(H_2O)$ modèle s m <sup>-1</sup>	$r_s(H_2O)$ s m <sup>-1</sup>
S1	16.1 ± 4.8	6.9 ± 2.1	176 ± 92	159 ± 93	119 ± 17	309 ± 181
S2	15.7 ± 1.0	7.8 ± 0.5	79 ± 17	56 ± 18	169 ± 54	75 ± 6
S3	13.4 ± 1.1	6.5 ± 0.5	113 ± 18	94 ± 18	284 ± 54	89 ± 22
S5	19.0 ± 2.0	10.2 ± 1.3	138 ± 32	110 ± 34	358 ± 109	101 ± 33
S6	28.1 ± 30.8	13.9 ± 12	181 ± 124	131 ± 108	438 ± 360	624 ± 900
S7	15.1 ± 1.7	9.2 ± 1.0	71 ± 14	54 ± 14	208 ± 52	83 ± 19
S8	13.0 ± 0.9	7.8 ± 0.6	77 ± 17	62 ± 17	245 ± 69	72 ± 9
S10	15.9 ± 3.6	9.8 ± 2.5	199 ± 115	179 ± 115	820 ± 530	171 ± 153

#### IV.4 Discussion

Les mesures réalisées au cours de cette expérimentation ont servi à la validation du modèle de dépôt sec local présenté dans le chapitre III. Les résultats obtenus sont d'abord discutés, pour (i) essayer d'identifier les paramètres climatiques et physiologiques qui influent le plus sur les processus de dispersion et de dépôt local, et (ii) proposer des estimations de dépôts locaux, et leurs incertitudes, en utilisant les données mesurées ou déduites des mesures, et des modèles extrêmement simples.

#### IV.4.1 Dispersion en aval de la source

L'évolution de la concentration de surface  $C_c$  à proximité d'une source d' $\text{NH}_3$  est l'une des variables déterminantes dans le processus de dépôt sec, car le dépôt sec est directement proportionnel à  $C_c$  (Asman, 1998). Les autres facteurs essentiels sont la résistance du couvert à l'absorption d' $\text{NH}_3$ ,  $R_{c\text{NH}_3}$  (Flécharde *et al.*, 1998) et le point de compensation stomatique "du couvert"  $C_s$  (Sutton *et al.*, 1998). L'une des questions clés dans l'étude du dépôt sec, est de savoir lequel de ces facteurs est dominant, s'il en est un, et dans quel cas il l'est.

Plusieurs études de modélisation, semblent montrer que l'évolution de la concentration atmosphérique en aval d'une source de surface est déterminée par la dilution (Asman *et al.*, 1989; Asman *et al.*, 1998; Sutton *et al.*, 1998). Les données recueillies dans cette étude apportent une base expérimentale pour discuter cette question, en introduisant en plus la structure du couvert comme facteur de la dispersion en aval de la source.

Il existe peu de données expérimentales relatives à la dispersion d' $\text{NH}_3$  à proximité d'une source, et plus généralement relative à la dispersion d'un gaz quelconque à proximité d'une source dans la couche limite de surface. On peut citer les études suivantes : Project Prairie Grass (Barad, 1958), couche limite planétaire (Gryning *et al.*, 1987), en soufflerie (Snyder, 1992) et récemment, (Yee *et al.*, 1995). Pour l'ammoniac, les études existantes sont : concentration en aval d'un épandage (Sutton *et al.*, 1997,1998; Milford *et al.*, 1997; Glorennec *et al.*, 1999), concentration moyenne autour d'un bâtiment d'élevage (Sommer et Jensen, 1991; Fowler *et al.*, 1998), concentration moyenne en aval d'une zone agricole (Asman *et al.*, 1989). Des données de dispersion de scalaire passif dans le couvert sont également disponibles: en soufflerie (Legg *et al.*, 1986), sur couvert de luzerne (Leclerc *et al.*, 1988).

##### IV.4.1.1 Profils verticaux de concentration

Les profils verticaux de concentration mesurés en aval de la source (Figure IV.20; Figure IV.23a,b; Figure IV.24a,b) présentent des caractéristiques identiques à celles présentées par Legg *et al.* (1986) et Leclerc *et al.* (1988) qui avaient placé la source juste en dessous du sommet du couvert, donc dans des conditions comparables aux séries  $S_2$ -  $S_5$  et  $S_7$ -  $S_{10}$ . En particulier, il apparaît que les différences de formes de profils observées entre les séries  $S_2$ -  $S_5$  et  $S_7$ -  $S_{10}$  sont liées au fait que la distance adimensionnée  $x/h$  varie parce que  $h$  varie, et aussi parce que la direction moyenne du vent change. La Figure IV.26, qui reprend les données publiées par Leclerc *et al.* (1988), montre clairement que très près de la source, le maximum de concentration se situe à la hauteur de la source, et plus loin, la concentration au niveau du sol augmente : le maximum du profil se déplace vers le bas quand le panache se disperse. C'est aussi ce que montrent les données de Legg *et al.* (1986).

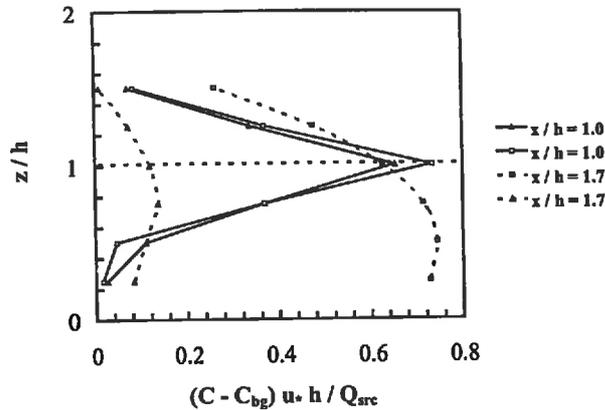


Figure IV.26. Profil de concentration en  $\text{CO}_2$  normalisée par  $C^*$ , à deux distances en aval de la source, pour une source située à  $h_s / h = 1$ . Données tirées de Leclerc *et al.* (1988).

Il est également intéressant de constater que Legg *et al.* (1986) obtiennent en soufflerie des valeurs de température, normalisée de façon identique à la notre, équivalente à celles de la Figure IV.23b. La distance à laquelle ils font leur mesure ( $x/h = 13$  ;  $x_L = 0.079$  m) est comparable à celle du mât BM ( $5 \leq x/h \leq 12$ ). La valeur adimensionnée de Legg *et al.* (1986) doit être multipliée par  $k = 0.4$  pour obtenir le même adimensionnement que nous ( $u_s \rightarrow u_s^*$ ).

Si l'on pousse la comparaison aux profils mesurés à plus grande distance de la source (Figure IV.24), c'est à dire environ  $x/h = 20$  à  $40$  (Figure IV.24a), et  $x/h = 80$  à  $160$  (Figure IV.24b), on trouve que globalement, les profils mesurés sont environ 2 fois plus faibles à  $x/h = 20-40$  et 10 fois plus faibles à  $x/h = 80-160$ , que ceux de Legg *et al.* (1986). Par ailleurs, les profils à  $x/h = 20-40$  présentent une forte variabilité, mais ont globalement les mêmes caractéristiques que Legg *et al.* (1986), avec une concentration qui décroît avec l'altitude. Pour ce qui est donc de la Figure IV.24a, les résultats sont encore comparables, dans les limites des incertitudes de mesure et de la variabilité des conditions extérieures comparées aux mesures en soufflerie.

En revanche, à  $x/h = 80-160$  (Figure IV.24b), le profil est résolument différent des mesures de Legg *et al.* (1986), car il est inversé. En effet, on observe sur la Figure IV.24b un maximum de concentration au-dessus du couvert, alors que l'on s'attend à un maximum au niveau du sol. Deux raisons peuvent expliquer ces différences de forme de profil et d'ordre de grandeur des concentrations normalisées; (i) le fait que la source ne soit pas de dimension infinie et que la direction du vent ne soit pas perpendiculaire à celle-ci, peut entraîner une concentration moyenne plus faible que celle attendue, et (ii) le dépôt de l'ammoniac sur la végétation pourrait entraîner une concentration plus faible dans le couvert, ainsi qu'une concentration globalement plus faible.

Toutefois, d'autres facteurs pourraient jouer un rôle comme le changement de rugosité, la dispersion latérale du gaz, ou la stabilité. La difficulté pour interpréter les mesures de dispersion en fonction des facteurs microclimatiques et physiologiques justifie l'emploi d'un

modèle comme moyen d'interpréter ces mesures ainsi que de comprendre l'effet de certains de ces facteurs.

#### IV.4.1.2 Profils horizontaux de concentration

Les profils horizontaux de concentration moyenne dans le couvert, des 8 séries de mesures (Figure IV.25) présentent comme nous l'avons vu des similitudes, et peuvent être caractérisés par une fonction puissance du type  $C/C_* = c(x/h)^a$ , avec comme gamme pour  $a$  et  $c$  ;  $a = -1.5 [-1.35 ; -1.65]$  et  $c = 4.2 [2.4 ; 7.3]$ . La Figure IV.27 compare les données de la Figure IV.25 avec celles de Doran et Horst (1985) (DH), Fowler *et al.* (1998) (FO), et Sommer et Jensen (1989) (SJ). Ces données correspondent à des situations extrêmement différentes (voir la légende pour les détails), mais les gradients adimensionnés représentés sur la Figure IV.27, possèdent des caractéristiques semblables.

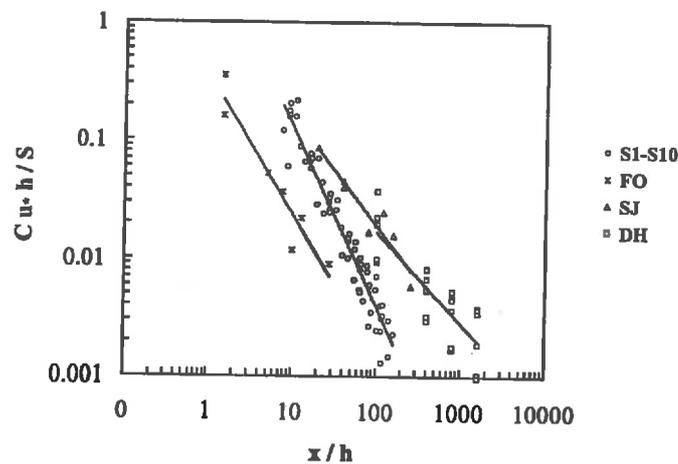


Figure IV.27. Comparaison des gradients horizontaux de concentration normalisée en aval d'une source. S<sub>1</sub>-S<sub>10</sub>: Mesures de la Figure IV.25. DH: concentration en SF<sub>6</sub> mesurées autour d'une source point, sur prairie aride,  $z_0 = 0.03$ , conditions stables (Doran et Horst, 1985). FO: concentration moyenne annuelle en NH<sub>3</sub> mesurés autour d'une batterie de volaille dans un couvert forestier (Fowler *et al.*, 1998). SJ: concentration en NH<sub>3</sub> moyenne sur 6 semaines, mesurée en aval d'un bâtiment d'élevage sur couvert cultivé (Sommer et Jensen, 1991). Pour les deux bâtiments d'élevages le terme source  $S$  a été estimé comme l'émission moyenne divisée par la dimension latérale de la source (20 m).

La Figure IV.27, montre que les coefficients  $c$  des différentes courbes sont relativement comparables, puisque le rapport entre les courbes est inférieur à 10. Il ne faut toutefois pas conclure trop vite que cet adimensionnement permet de rendre compte des différences entre types de source (ligne ou point). En effet, afin d'obtenir un débit linéique  $S$  ( $\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-1} \text{ s}^{-1}$ ) à partir d'une source point (en  $\mu\text{g NH}_3 \text{ s}^{-1}$ ), le débit de source a été divisé par la circonférence de la zone source, qui est prise égale à 1 pour une source réellement ponctuelle (DH). Ainsi pour le bâtiment d'élevage (SJ) et la batterie (FO), le débit de source a été divisé par  $2\pi \times 20$ , en prenant 20 m comme dimension caractéristique du bâtiment. Cet adimensionnement est justifié par le fait que pour une source point continue, le champ de concentration est en  $1/2\pi r$ , où  $r$  est la distance à la source (Csanady, 1980). On peut également justifier ce choix

par le fait que le débit linéique est le débit par unité de longueur de source, longueur qui est égale à la circonférence de la source.

Les pentes des droites sur le graphique log-log (Figure IV.27) sont relativement différentes, et de manière générale, la pente est moins forte pour les trois situations avec des sources ponctuelles. Ce résultat est inverse à ce que prédisent d'autres observations ainsi que les expressions théoriques qui sont reprises dans le Tableau IV.13. En effet, le gradient horizontal est plus fort (exposant  $a$  plus grand en valeur absolue) pour une source point que pour une source ligne, car à la diffusion latérale vient s'ajouter à la diffusion verticale comme facteur de dilution supplémentaire. Pour une source ligne infinie, il n'y a pas de diffusion latérale car il n'y a pas de gradient latéral.

Le Tableau IV.13 montre que le terme  $a$  est globalement plus élevé en valeur absolue que celui prédit pour une source ligne par différentes théories de la dispersion dans la CLS (Gifford, 1968; Huang, 1979), ou les observations expérimentales (Sutton, 1953). Ceci pourrait être le signe d'un dépôt, mais cette hypothèse demande, pour être validée, l'utilisation d'un modèle. On remarque en revanche, que les paramètres  $a$  pour les courbes DH, JS et FO de la Figure IV.27 sont en général plus faibles que ceux prédits par la théorie (Gifford, 1968; Huang, 1979) ou les observations (Sutton, 1953). En ce qui concerne les données de DH, cela pourrait s'expliquer par le fait que dans leur étude l'écoulement est stable.

Tableau IV.13. Paramètre  $a$  de la loi en puissance  $x^a$  selon différents modèles théoriques et observations, pour une source point et une source ligne au niveau du sol. Les paramètres des courbes de la Figure IV.3 sont comparés.

$a$ (loi $x^{-a}$ )	Type de source	Type de donnée	Auteurs
-0.8	point	observation	Figure IV.3 (DH)
-1.2	point	observation	Figure IV.3 (FO)
-1.3	point	observation	Figure IV.3 (JS)
-1.8	point	observation	Sutton (1947)
-1.7	point	modèle diffusif	Huang (1979)
-1.9	point	Lagrangien	Gifford (1968)
-1.5	Ligne	Observation	Figure IV.3 (S <sub>1</sub> -S <sub>10</sub> )
-0.9	Ligne	Observation	Sutton (1953)
-0.9	Ligne	modèle diffusif	Huang (1979)
-1.0	Ligne	Lagrangien	Gifford (1968)

L'étape suivante est d'étudier les variations de la loi  $C / C_* = c (x / h)^a$  entre chaque série, pour déterminer s'il existe une variabilité en fonction des facteurs microclimatiques ou du couvert. Pour cela, pour chaque série prise séparément, les paramètres  $c$  et  $a$  ont été estimés. La meilleure corrélation linéaire qui ait été trouvée est entre l'exposant  $a$  et le paramètre de stabilité  $z / L$ , le terme  $c$  étant alors anticorrélé. Le terme  $a$  diminue en valeur absolue (la pente est moins forte mais négative), lorsque  $z / L$  tend vers 0 (situation neutre). Le coefficient de corrélation linéaire est de 0.5. Cela indique que lorsque la stratification est instable, la concentration dans le couvert décroît moins vite en aval de la source.

Par ailleurs, la variation de concentration de surface en fonction du paramètre de stabilité, prédite par les modèles simplifiés de dispersion (Huang, 1979), est inverse à celle observée ici. Ces modèles prédisent en effet que  $a$  augmente en valeur absolue lorsque l'instabilité augmente, or nous observons le contraire.

Le fait que le coefficient  $c$  soit anticorrélé apporte un élément de réponse plausible à cette observation, qui serait lié au dépôt: en conditions instables, les échanges verticaux à l'interface couvert-atmosphère sont plus forts, ce qui implique qu'une plus faible fraction de l' $\text{NH}_3$  émis pénètre le couvert, entraînant comme l'indiquent les valeurs de  $c$ , une concentration plus faible dans le couvert près de la source, et donc un dépôt plus faible près de la source. Toutefois, la faible gamme de variation de  $z/L$  ( $[-0.05 ; 0]$ ) ne nous permet pas de conclure de façon définitive, même si la variation de  $a$  observée n'est pas négligeable  $[-1.4 ; -1.8]$ .

Le terme  $a$  est également corrélé positivement avec la résistance stomatique  $R_s$ . Le coefficient de corrélation est certes faible (0.228), mais c'est la variable présentant la corrélation est la plus forte, après  $z/L$ . De plus, ce résultat appuie l'hypothèse formulée ci-dessus ;  $a$  augmente (le gradient horizontal est plus faible) lorsque  $R_s$  augmente, car il y a moins de dépôt puisque les échanges stomatiques sont diminués. Toutefois ces hypothèses reposent sur peu de données, sujettes elles-mêmes à de fortes incertitudes, et il n'en faut tirer aucune conclusion définitive. On note simplement qu'elles sont cohérentes avec les données expérimentales.

#### IV.4.2 Estimation des dépôts secs d' $\text{NH}_3$

Après avoir étudié en détail les gradients horizontaux de concentration dans le couvert, nous avons cherché à estimer les quantités d' $\text{NH}_3$  déposées. L'estimation par un bilan de masse est impossible puisqu'il l'incertitude de cette méthode, entre 40 et 80%, ne permet pas d'estimer un dépôt sur 10 m, qui pourrait au grand maximum atteindre 10% du débit de source (Asman, 1998). La forte incertitude provient pour 1/3 de l'extrapolation du profil au-dessus du mât de mesure, qui est nécessaire étant donné la quantité importante d' $\text{NH}_3$  passant au-dessus. Un autre tiers de l'incertitude provient de la composante turbulente du flux horizontal, qui n'est pas mesurable pour l'ammoniac avec la technologie actuelle.

Le dépôt sec a donc été estimé en appliquant un modèle de dépôt simplifié, de type « grande feuille » (Sutton *et al.*, 1995a). Ce modèle permet d'estimer la quantité déposée à partir de la concentration moyenne d' $\text{NH}_3$  dans le couvert  $C_c$ , et de  $R_s$ ,  $R_w$ ,  $R_b$ , et de  $C_s$ . Nous avons une estimation de  $C_c$  (Figure IV.25), de même nous avons estimé  $R_s$  et  $R_b$  (Tableau IV.12). Nous devons donc estimer  $R_w$  et  $C_s$ .  $C_s$  a été estimé à partir d'un travail complémentaire (Loubet *et al.*, 1999c; Annexe B), tandis que  $R_w$  est estimé à partir de l'Eqn. III.74.

La relation entre le flux de dépôt  $F_d$  et la concentration dans le couvert s'écrit simplement (voir par exemple Sutton *et al.*, 1995a) :

$$F_d = -\frac{C_c}{R_b} \left\{ 1 - \frac{R_x}{R_b} \right\} + \frac{C_s R_x}{R_b R_s} \quad (IV.28)$$

$$\text{avec } R_x = \frac{1}{R_b^{-1} + R_s^{-1} + R_w^{-1}} \quad (IV.29)$$

$R_s$  a été estimée et est donné pour chaque série dans le Tableau IV.12, avec  $R_b$ . Noter qu'il s'agit ici de résistances pour l'ammoniac,  $R_{sNH_3}$ , et  $R_{bNH_3}$ , qui sont donc estimées à partir des résistances pour la vapeur d'eau en appliquant un facteur de correction (Tableau II.10 et Eqn. II.66). La résistance  $R_w$  est estimée en fonction de l'humidité relative de l'air mesurée au-dessus du couvert  $HR$ , à partir de la relation suivante (Eqn. III.74 ; Sutton *et al.*, 1995b) :

$$R_w = 2 \frac{100 - HR}{12} \quad (IV.30)$$

où  $R_w$  est en  $s\ m^{-1}$ . Cette paramétrisation empirique est basée sur des mesures en chambres, sur des espèces différentes du maïs, mais elle a été utilisée dans la modélisation de flux sur des couverts et conditions variées (Sutton *et al.*, 1995a; Fléchar *et al.*, 1998; Sutton *et al.*, 1998). Cette paramétrisation constitue donc une estimation non validée pour cette expérimentation.

Le point de compensation stomatique pour  $NH_3$   $C_s$ , est une fonction complexe des conditions microclimatiques (température), de la physiologie de la plante, de son stade de développement et de sa nutrition azotée (Schjørring, 1997; voir Chap. II et III). La relation avec la température est connue et peut être découplée pour obtenir une variable qui ne dépend que de la plante (physiologie, stade) et des apports d'azote (Eqn. III.82, reprise ici) :

$$C_s = 4.79 \cdot 10^{-3} \cdot \exp\left(10396 \frac{T_f - 25}{298 \times (T_f + 273)}\right) \cdot \Gamma \quad (IV.31)$$

où  $C_s$  est en  $\mu g\ NH_3\ m^{-3}$ ,  $T_f$  est la température du feuillage ( $^{\circ}C$ ), et  $\Gamma$  est égal au rapport de la concentration en ion  $NH_4^+$  sur la concentration en proton  $H^+$  dans l'apoplasme,  $[NH_4^+] / [H^+]$ , sans dimensions.  $\Gamma$  est une fonction de l'espèce, du stade de développement, ainsi que de l'âge des feuilles (Schjørring, 1997; Sutton *et al.*, 1993). Il peut être estimé par une méthode basée sur l'extraction de l'apoplasme des feuilles par centrifugation (Husted et Schjørring, 1995). Une étude expérimentale, complémentaire à cette thèse, a été menée à l'Institute of Terrestrial Ecology d'Edinburgh pour déterminer la variabilité de  $\Gamma$  en fonction des apports d'azote, et du stade de développement (Loubet *et al.*, 1999c). Ce travail a permis de déterminer l'évolution de  $\Gamma$  en fonction de l'apport d'azote sous forme de nitrate d'ammonium (Figure IV.28).

D'après la Figure IV.28, on voit que  $\Gamma$  qui correspond aux quantités d'azote apportées sur la parcelle étudiée ici, se situe entre 1000 et 10000. L'incertitude sur les estimations de  $\Gamma$  est importante, et globalement de l'ordre de 100% à 200% (Loubet *et al.*, 1999c), mais l'on

voit que la variation de  $\Gamma$  en fonction de l'apport est exponentielle, et est donc beaucoup plus importante que l'incertitude sur l'estimation de chaque point. Ces valeurs élevées de  $\Gamma$  correspondent bien aux gammes données dans la littérature, pour des cultures intensives (§II, Tableau II.14). Le point de compensation  $C_s$  correspondant aux températures du couvert mesurées (16°C-27°C; Tableau IV.11), varie entre 2 et 40  $\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ . C'est aussi ce que trouvent Sutton *et al.*, (1998) sur une prairie fauchée intensive avec un point de compensation identique.

Noter toutefois que l'estimation de la quantité équivalente d'azote apportée dans la Figure IV.28, est discutable puisqu'il s'agit de rapporter des quantités d'azote par pots à des quantités à l'hectare. De plus, les conditions contrôlées dans lesquelles les valeurs de  $\Gamma$  ont été estimées sont relativement éloignées de la réalité, et il n'est donc pas impossible que les valeurs de  $\Gamma$  proposées soient un peu élevées pour un couvert en fonctionnement normal.

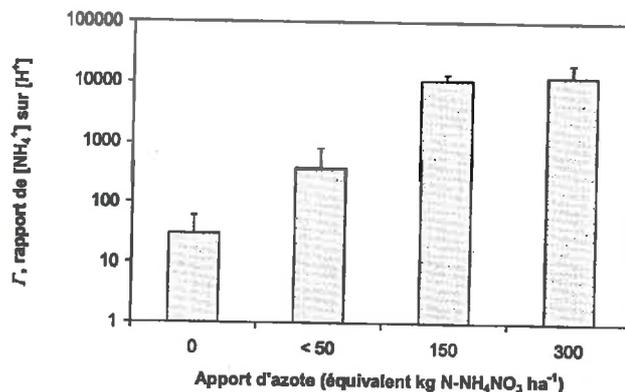


Figure IV.28. Valeur du paramètre  $\Gamma$  en fonction de l'apport d'azote en équivalent kg N ha<sup>-1</sup> sur des pieds de maïs en pots sous serre. La quantité d'azote équivalente a été estimée en calculant la quantité d'azote total apporté par plante, et en multipliant cette valeur par la densité de plantes à l'hectare dans la parcelle expérimentale (75000). Résultats tirés de Loubet *et al.* (1999c).

D'un autre côté, le fait que près de la source, les plantes aient été exposées à des concentrations très élevées au cours des expérimentations (100-800  $\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ ) a pu entraîner un accroissement rapide du point de compensation  $C_s$ .  $C_s$  peut en effet varier en quelques minutes, sous l'effet des variations de pH et de concentration en  $\text{NH}_4^+$  de l'apoplasme (Yin *et al.* 1996, 1997). De la même manière, le dépôt cuticulaire peut rapidement saturer avec de telles concentrations (Flécharde *et al.*, 1998).

Cela entraînerait une baisse des vitesses de dépôts ; hypothèse que semble confirmer les données de Sommer et Jensen (1991). Ainsi, il n'est pas improbable que dans ces conditions,  $\Gamma$  ait été assez élevé près de la source. C'est pourquoi, nous avons choisi de garder une large gamme de  $\Gamma$ , allant de 1000 à 10000, qui permette de couvrir une large gamme de points de compensations possibles.

En se basant donc sur cette gamme de variation de  $\Gamma$  [1000; 10000], la gamme de  $C_s$  au

cours de chaque série a été estimée, et est reportée avec les valeurs de  $R_w$  dans le Tableau IV.14.

**Tableau IV.14.** Estimation de  $C_s$  et  $R_w$  au cours de chaque série de mesure.  $C_s$  est estimé sur la base de valeurs de  $F$  comprises entre 1000 et 10000.  $R_w$  est estimé en utilisant la formulation de Sutton *et al.* (1995b):  $R_w = 2 \exp((100 - HR) / 12)$ . Médiane  $\pm$  écart-types.

Série	$T_c$ °C	HR %	$C_s$ min $\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$	$C_s$ max $\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$	$R_w$ $\text{s m}^{-1}$
S1	16.0 $\pm$ 1.4	72 $\pm$ 8	2.5 $\pm$ 0.4	25 $\pm$ 4	34
S2	24.6 $\pm$ 1.5	65 $\pm$ 4	7.1 $\pm$ 0.4	70 $\pm$ 4	36
S3	26.3 $\pm$ 0.9	54 $\pm$ 2	8.6 $\pm$ 0.3	86 $\pm$ 3	90
S5	26.7 $\pm$ 1.5	53 $\pm$ 2	9.0 $\pm$ 0.4	90 $\pm$ 4	101
S6	24.8 $\pm$ 3.7	59 $\pm$ 12	7.2 $\pm$ 0.5	72 $\pm$ 5	60
S7	25.0 $\pm$ 0.8	66 $\pm$ 2	7.4 $\pm$ 0.3	74 $\pm$ 3	33
S8	23.1 $\pm$ 1.7	62 $\pm$ 3	6.0 $\pm$ 0.4	59 $\pm$ 4	48
S10	26.3 $\pm$ 1.1	41 $\pm$ 3	8.7 $\pm$ 0.4	86 $\pm$ 3	273

En utilisant ces paramétrisations et l'Eqn. IV.28, la quantité d' $\text{NH}_3$  déposée sur le couvert dans les 150 premiers mètres en aval de la source a été estimée pour chaque série. Pour cela, les profils horizontaux de concentration (Figure IV.22) ont été "lissés" par une fonction puissance  $C_c = c x^a$ , qui comme l'a montré la discussion précédente est une bonne paramétrisation de la concentration de surface en aval d'une source ligne. En remplaçant  $C_c$  par  $c x^a$ , dans l'Eqn. IV.32, et en intégrant entre 10 m et 150 m, on obtient le dépôt total  $F_X$ , qui est simplement donné par l'expression :

$$F_{10-150} = \left[ -\frac{c x^{a+1}}{(a+1) R_b} \left\{ 1 - \frac{R_x}{R_b} \right\} + \frac{C_s R_x x}{R_b R_s} \right]_{x=10}^{x=150} \quad (IV.32)$$

où  $x$  est la distance en m, les crochets indiquent une différence de l'expression à l'intérieur entre  $x = 10$  m et  $x = 150$  m, les autres termes ont déjà été définis. L'estimation n'est effectuée que pour des distances supérieures à 10 m, car (i) la concentration n'a été mesurée que jusqu'à 12 m (au mieux) en aval de la source, (ii) la fonction puissance, avec un exposant négatif, n'est pas intégrable en 0. Par ailleurs, la paramétrisation du modèle (Eqn. IV.32) pourrait être mise en défaut par les niveaux de concentration très élevés, notamment avec des effets de saturation qui ont été observés par d'autres auteurs (Sommer et Jensen, 1991).

Etant donné l'incertitude importante qui existe sur chaque variable de l'Eqn. IV.32, il est nécessaire de proposer, avec l'estimation de la quantité déposée, une estimation de l'incertitude sur cette valeur. Les résultats de l'expérimentation indiquent que les résistances  $R_b$  et  $R_s$  semblent être distribuées de façon log-normale (Figure IV.9). De même, étant donné sa dépendance exponentielle à la température du couvert dont la distribution de jour est proche d'une distribution normale,  $C_s$  possède une distribution log-normale. La même remarque peut être faite pour  $R_w$ , qui dépend de façon exponentielle de  $HR$ . Ainsi, la plupart des variables de l'Eqn. IV.32 n'ayant pas une distribution normale, la méthode de calcul d'erreur basée sur l'utilisation des dérivées partielles (Press *et al.*, 1994) ne peut être appliquée telle quelle.

Nous avons donc choisi d'utiliser une méthode de type Monte-Carlo pour estimer l'incertitude sur  $F_{10-150}$ . Le principe consiste à se fixer une distribution de probabilité pour les paramètres de l'Eqn. IV.32, et d'estimer la distribution de la variable de sortie ( $F_{10-150}$ ) par tirage aléatoire dans la distribution des paramètres (Delécolle *et al.*, 1996). Nous avons fait l'hypothèse que les lois de  $R_b$ ,  $R_s$ ,  $R_w$ ,  $C_s$ ,  $a$  et  $c$  étaient indépendantes, ce qui est assurément faux, puisque ces variables dépendent de facteurs microclimatiques communs et sont très certainement couplés, et donc l'erreur sur leur mesure peut l'être également. L'effet escompté de l'omission de ce couplage, est l'étalement de la distribution de  $F_{10-150}$ , c'est à dire la surestimation de l'incertitude.

Pour chaque série  $S_1$ - $S_{10}$ , les distributions de  $R_b$ ,  $R_s$ ,  $R_w$  ont été déterminées à partir de leur moyenne arithmétique, et de leur écart-type (Tableau IV.12), de la façon suivante : pour chaque paramètre le facteur d'incertitude  $f$  a été estimé comme  $f = \max\{1 + \sigma/m ; 1/(1 - \sigma/m)\}$ , où  $\sigma$  est l'écart-type et  $m$  est la médiane, c'est à dire que la valeur du paramètre est égale à sa médiane à un facteur  $f$  près. La distribution log-normale de chaque paramètre est alors fixée par sa moyenne  $Ln(m)$ , et son écart-type normalisé  $Ln(f)$ . Pour  $R_w$ , le facteur d'incertitude a été fixé à  $f=2$ . Le facteur 10 qui existe entre l'estimation du maximum et du minimum pour  $C_s$  (Tableau IV.14) correspond à un facteur d'incertitude  $f=3$ . En l'absence de plus d'information à leur sujet, les distributions de  $a$  et  $c$  ont été considérées comme normales avec un écart-type égal à 10% de la valeur moyenne. 2000 tirages ont été réalisés pour calculer la distribution de  $F_{10-150}$ . Le générateur de nombres aléatoires, suivant une loi normale, était la fonction *gasdev* utilisant le générateur de nombres aléatoires, de loi uniforme, *ran4* de *Numerical Recipes in C* (Press *et al.*, 1994).

Les résultats obtenus par cette méthode d'estimation sont donnés dans le Tableau IV.15. On constate que dans la majorité des cas, la moyenne et la médiane de l'estimation sont négatives, ce qui indique qu'il y a du dépôt. Par ailleurs, la probabilité qu'il y ait eu émission est généralement inférieure à 10%. Seules pour les séries  $S_3$  et  $S_7$ , il est probable qu'il y a eu émission, et il existe une chance sur deux dans le cas de la série  $S_3$ . L'Ecart type pour chaque série est du même ordre de grandeur que la moyenne, sauf pour les deux séries  $S_3$  et  $S_7$ , où il est très nettement supérieur. Toutefois, cet écart-type est peu représentatif de la distribution de  $F_{10-150}$  qui n'est pas gaussienne, comme le montrent les Figures IV.29a,b.

Tableau IV.15. Dépôt sec d' $\text{NH}_3$  entre 10 et 150 m de la source, estimé à partir de l'Eqn. IV.32, par une méthode de Monte-Carlo (voir texte pour les détails). Une valeur négative indique un dépôt, et une valeur positive une émission. La moyenne, la médiane et l'écart-type de l'estimation sont donnés. On donne aussi les probabilités qu'il y ait dépôt, ou émission. Le pourcentage d' $\text{NH}_3$  émis qui est déposé entre 10 et 150 m est estimé comme le rapport de  $F_{10-150}$  sur le débit de source.

Série	Moyenne *	Moyenne	Médiane	Ecart type	Probabilité que $F_{10-150}$ soit < 0	Probabilité que $F_{10-150}$ soit > 0	Pourcentage d' $\text{NH}_3$ émis déposé entre 10 et 150 m #
	$\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-1} \text{ s}^{-1}$						
S1	-217	-277	-216	224	100%	0%	8% - 14%
S2	-443	-515	-430	391	98%	2%	17% - 29%
S3	-6	12	-8	109	57%	43%	1% - 1%
S5	-153	-177	-149	183	93%	7%	5% - 11%
S6	-175	-206	-141	173	97%	3%	4% - 13%
S7	-126	-139	-119	204	86%	14%	4% - 9%
S8	-235	-275	-226	245	96%	4%	3% - 18%
S10	-144	-197	-142	217	96%	4%	6% - 11%

\* estimée par application de l'Eqn. IV.32 avec les valeurs moyennes des paramètres. Toutes les autres données sont estimées par la méthode de Monte-Carlo. # les deux estimations sont obtenues en utilisant respectivement le débit de source estimé avec le mât bilan de masse et celui mesuré sur le système d'émission, et la valeur médiane du dépôt.

On voit en effet sur les Figures IV.29a,b, que la probabilité que les dépôts soient très forts ( $\leq 1000 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-1} \text{ s}^{-1}$ ) est bien plus grande que la probabilité qu'il y ait émission. C'est ce qui ressort également du Tableau IV.15 : la probabilité que  $F_{10-150}$  soit positif est très faible. Ainsi, il est intéressant de constater que même si l'incertitude est très grande, il est possible d'affirmer que pour les séries S<sub>1</sub>, S<sub>2</sub>, S<sub>6</sub>, S<sub>8</sub>, S<sub>10</sub>, il y a eu dépôt avec moins de 5% d'incertitude.

La très grande incertitude sur l'estimation de  $F_{10-150}$  qui apparaît dans le Tableau IV.15 et les Figures IV.29a,b, est dû aux incertitudes fortes sur les résistances et le point de compensation. Il est possible que l'erreur sur la mesure des résistances  $R_s$  et  $R_b$  puisse être réduite, mais l'incertitude sur l'estimation de  $R_w$ , et  $C_s$  restera grande, car il est difficile d'en obtenir une bonne estimation en conditions réelles. Il aurait toutefois été bénéfique d'essayer de contraindre l'estimation de  $C_s$  par des mesures *in situ* de la concentration en  $\text{NH}_4^+$  et du pH des feuilles (Loubet *et al.*, 1999c).

Les quantités déposées  $F_{10-150}$  varient entre 8 et  $430 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-1} \text{ s}^{-1}$  de dépôt (valeurs médianes, Tableau IV.15). En moyenne, cela correspond à des dépôts allant de 50 à  $3000 \text{ ng NH}_3 \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ , avec une majorité des cas où ils sont inférieurs à  $1400 \text{ ng NH}_3 \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ , ce qui correspond aux gammes les plus élevées de dépôts observés sur des couverts semi-naturels, c'est à dire avec des points de compensation faibles, et en atmosphère polluée, où les concentrations atteignent  $40 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$  (Erisman et Wyers, 1993; Duyzer *et al.*, 1992, cités dans Sutton *et al.*, 1994).

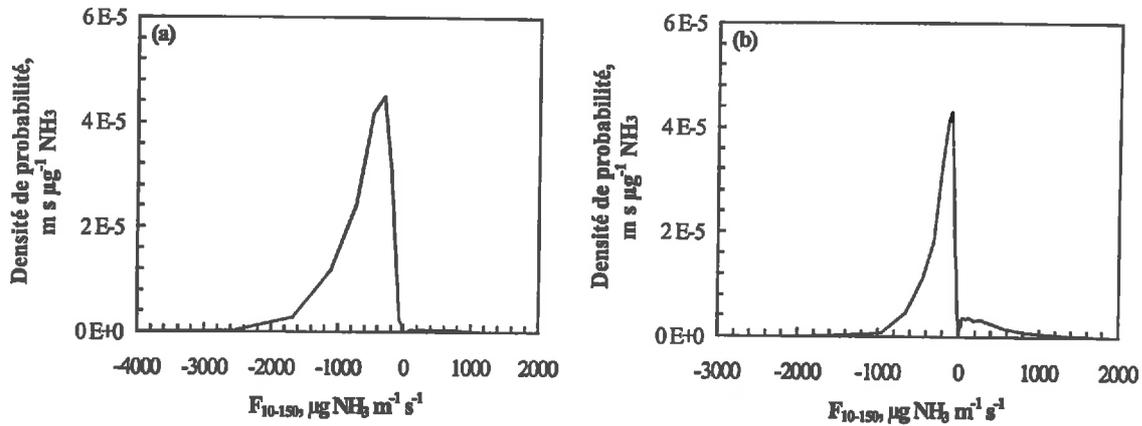


Figure IV.29. Densité de probabilité de la quantité déposée  $F_{10-150}$  pour les séries (a)  $S_2$  et (b)  $S_7$ . En multipliant la densité de probabilité par le support de la distribution, on obtient la probabilité. On note que les deux distributions sont non gaussienne, avec une plus forte densité dans les valeurs négatives que positives.

En comparaison des quantités émises, les dépôts sont importants (Tableau IV.15). Les estimations minimales situent en effet  $F_{10-150}$  entre 1% et 17%, et les maximales entre 1% et 29% de l' $\text{NH}_3$  émis, les valeurs typiques étant respectivement 4% et 10%. L'estimation de 4% est comparable aux dépôts moyens annuels estimés par Fowler *et al.* (1998) sur un couvert de forêt. Ceci aurait tendance à montrer que nous avons surestimé les dépôts, mais les estimations de Fowler *et al.* (1998) représentent une moyenne annuelle ce qui n'exclut pas des variations journalières. Par ailleurs, les estimations de Asman (1998) suggèrent que de telles intensités de dépôt soient possibles.

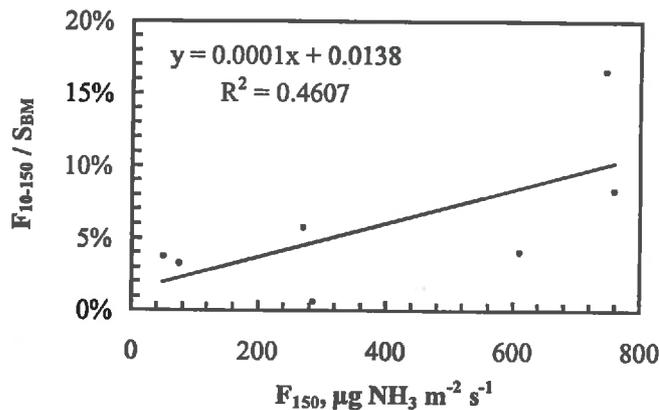


Figure IV.30. Relation entre fraction d' $\text{NH}_3$  déposé entre 10 et 150 m en aval de la source, et flux vertical mesuré à 150 m en aval de la source.

La comparaison des quantités déposées avec les flux d' $\text{NH}_3$  mesurés à 150 m en aval de la source est intéressante. Il existe une corrélation non négligeable entre  $F_{10-150} / S_{BM}$ , et le flux à 150 m ( $R^2 = 0.46$ ) (Figure IV.30). C'est le coefficient de corrélation le plus élevé comparé aux autres variables mesurées. Globalement, plus la fraction déposée est importante, plus le flux à 150 m l'est.

Aux premiers abords, ce résultat pourrait paraître contradictoire, puisqu'il indique que plus il y a des dépôts plus le flux apparent au-dessus du couvert est un flux positif dénotant une émission. Mais cela indique également que lorsque la concentration en  $\text{NH}_3$  dans le couvert est supérieure à la concentration en  $\text{NH}_3$  au-dessus, (quand le flux à 150 m est positif), la fraction déposée est plus grande.

Ceci est cohérent, puisque si la concentration dans le couvert est plus élevée, il y a un potentiel de dépôt plus fort. Ce résultat suggère que l'une des variables clés du dépôt local d' $\text{NH}_3$ , soit la fraction d' $\text{NH}_3$  qui diffuse dans le couvert au niveau de la source.

#### IV.5 Conclusions

(1) Les résultats de cette expérimentation nous ont montrés plusieurs points. Tout d'abord, la température du sol  $T_s$  était la plupart du temps supérieure à celle du couvert  $T_c$  qui elle-même était plus faible la température de l'air  $T_a$  la nuit. De jour,  $T_c - T_a$  pouvait être soit positif soit négatif suivant le rayonnement solaire. Ces résultats indiquent que la stratification dans le couvert était instable.

Les résistances au transfert de vapeur d'eau étaient telles qu'en général  $R_b \leq R_a(1 \text{ m}) \leq R_s$ . La résistance stomatique était donc limitante pour les flux de chaleur latente. L'estimation de  $R_s$  a permis de calculer les paramètres du modèle de résistance stomatique :  $p = 25 \text{ W m}^{-2}$  et  $r_{smin} = 157 \text{ s m}^{-1}$ .  $r_{smin}$  est un peu faible par rapport aux données bibliographiques. Cette sous-estimation pourrait être due à une sous estimation de  $H$ , résultant elle-même du fait que les mesures se situaient dans la sous-couche de rugosité.

Les profils de vitesse moyenne du vent  $\bar{u}$  sont comparables à ceux présentés au chapitre II. La régression des profils paramétrés de  $\bar{u}$  donne des valeurs du coefficient d'extinction  $\zeta$  variant entre 3 et 5.

Les profils de température de l'air, mesurés de jour, indiquent très clairement une stratification instable au-dessus du couvert. Ils montrent également un maximum dans le couvert, dont la hauteur semble proportionnelle au rayonnement net au-dessus du couvert. La différence de température n'excédait pas 0.5% (température exprimée en °C) entre 0 et 5 m.

La turbulence dans le couvert n'était pas gaussienne comme l'indiquent les valeurs des coefficients d'asymétrie  $Sk_u$  et  $Sk_w$  et d'aplatissement  $Ku_u$  et  $Ku_w$ . De manière générale,  $Sk_u$  est maximum au sommet du couvert ( $Sk_u \sim 1$ ), et il est positif au-dessus et dans le couvert.  $Sk_w$  est proche de 0 au-dessus du couvert, il est minimum à  $z = h$  ( $Sk_w(h) \sim -1.5$ ), et il reste négatif dans le couvert. Quant à  $Ku_u$  et  $Ku_w$ , ils sont proches de la valeur gaussienne ( $Ku = 3$ ) au-dessus du couvert, et la dépassent largement dans le couvert ( $Ku_u \sim 5$  et  $Ku_w \sim 6$ ). Ils sont également plus grands près du bord du champ.

Les spectres de puissance  $S_u(f)$ ,  $S_v(f)$  et  $S_w(f)$  montrent que la transition de rugosité (bords du champ) n'a pas d'influence sur  $S_w(f)$  dans et au-dessus du couvert. Dans le couvert,

l'effet sur  $S_u(f)$  est également faible, tandis qu'il est fort sur  $S_v(f)$  qui présente une importante composante basse fréquence. Au-dessus du couvert,  $S_u(f)$  et  $S_v(f)$  présentent tous deux des perturbations importantes lorsque le vent vient du bord du champ. Elles sont caractérisées par un deuxième maximum dans les basses fréquences, de période 100 s. Enfin, dans le cas non perturbé, les échelles de temps eulériennes estimées à partir du maximum du spectre d'énergie indiquent que  $\tau_w$  est constant dans et au-dessus du couvert, jusqu'à  $z/h \sim 2.5$ , alors que  $\tau_u$  augmente au-dessus du couvert.

Les gradients verticaux de concentration en  $\text{NH}_3$  mesurés en continu à 162 m en aval de la source donnent des "flux apparents" positifs, c'est à dire correspondant à des émissions apparentes.

Les profils de concentration verticaux près de la source sont relativement variables suivant les situations. Ils ont permis d'estimer le débit de source. Ce dernier est souvent supérieur à celui imposé par le système d'émission. Les raisons d'une telle surestimation pourraient être (i) un défaut de la source qui n'est pas confirmé par les mesures avec l'analyseur continu, ou (ii) une composante turbulente du flux horizontal importante.

Enfin, les profils horizontaux de concentration dans le couvert sont comparables entre les 8 séries de mesures. Les concentrations adimensionnées par  $c^* = Q_{src} / (u^* h)$  décroissent selon une loi en puissance unique pour l'ensemble des séries

(2) La comparaison de ces profils adimensionnés avec d'autres données indique que le gradient horizontal que nous avons mesuré est plus important que les autres, alors que ce devrait être l'inverse. Ce pourrait être le signe d'un dépôt, mais cette hypothèse nécessite l'utilisation d'un modèle pour être évaluée. Il semble par ailleurs que la concentration moyenne dans le couvert décroisse moins vite en fonction de  $x$  lorsque les conditions sont instables.

Le dépôt d' $\text{NH}_3$  cumulé sur 150 m, estimé à partir des concentrations mesurées et de valeurs de  $C_s$  et  $R_w$  paramétrés, varie entre 1% et 17% des quantités émises. Il est typiquement de 5% des quantités émises. Ces résultats sont toutefois très incertains puisque globalement, l'incertitude sur cette estimation est environ d'un facteur 2. Elle trouve son origine dans les paramètres  $C_s$  et  $R_w$ . Cela montre le rôle prépondérant que jouent ces 2 paramètres dans l'estimation des dépôts secs locaux, et la nécessité qu'il y a de mieux les caractériser en fonction des conditions environnementales et de la nutrition azotée.

(°) Ces résultats expérimentaux vont être utilisés dans le chapitre V pour de valider le modèle, et réaliser une étude de sensibilité.

#### IV.6 Autres résultats expérimentaux

D'autres résultats expérimentaux seront utilisés dans les chapitres V et VI suivants, ils ne sont pas détaillés ici, et les détails les concernant peuvent être trouvés dans la bibliographie.

Ils sont listés ci-après:

- Mesures de concentration atmosphérique en  $\text{NH}_3$  au-dessus d'une prairie intensive fauchée en aval d'une ligne d'épandage de lisier (Milford *et al.*, 1997; Sutton *et al.*, 1997; 1998). Ce jeu de données a été obtenu dans le sud de l'Angleterre sur une prairie recevant à peu près  $300 \text{ kg NH}_3 \text{ ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ , sous forme d'engrais minéraux (Sutton *et al.*, 1997; 1998). L'épandage était réalisé en une bande d'environ 700 m de long et 20 m de large, de sorte que la source pouvait être considérée comme une source ligne infini. La bande présentait un coude permettant d'obtenir un secteur de vent efficace d'environ  $90^\circ$ , entre à peu près  $210^\circ/\text{N}$  et  $310^\circ/\text{N}$ . Cette expérimentation a été le lieu d'une intercomparaison entre 4 méthodes de mesures d' $\text{NH}_3$ , (filtres, tubes à diffusion, Amanda, RBD (Rotating Batch Denuder), qui ont été ensuite comparées pour aboutir à une valeur optimale de la concentration en  $\text{NH}_3$  (Milford *et al.*, 1997). Sept laboratoires ont été impliqués dans cette expérimentation, réalisée dans le cadre du projet national ADEPT (Ammonia Distribution and Effects Project), coordonné par l'Institute of Terrestrial Ecology (ITE).
- Mesures de concentration en aval d'un épandage de lisier sur une prairie intensive fauchée. Données recueillies lors de la confection du rapport de Glorennec *et al.*, (1999).
- Estimation du point de compensation de *Zea mays* L. et *Lolium Perenne* L. Par extraction de l'apoplasme. Application à l'étude de la variabilité saisonnière de  $C_s$  pour la prairie, et de la réponse au niveau de fertilisation pour le maïs (Loubet *et al.*, 1999c).

#### IV.7 Bibliographie

- Asman W.A.H., 1998: Factors influencing local dry deposition of gases with special reference to ammonia. *Atmos. Environ.*, **32**(3): 415-421.
- Asman W.A.H., Pinksterboer E.F., Maas J.F.M, Erisman J.-W., Waijers-Ypelaan 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.
- Aylor D. E., Wang Y., Miller D.R., 1993: Intermittent wind close to the ground within a grass canopy. *Boundary-Layer Meteorol.*, **66**: 427-448.
- Baldocchi D.D., Hicks B.B., Camara P., 1987: A canopy stomatal resistance model for gaseous deposition to vegetated surfaces. *Atmos. Environ.*, **21**(1): 91-101.
- Barad M.L., 1958: Project Prairie Grass. A field program in diffusion. *Geophys Res. Pap.*, **59**, Vols. I et II, AFCRC-TR-58-235, Air Force Cambridge Research Centre, Belford, MA.
- C. Milford, Sutton M.A., Dragosits U., Harisson R., Moss D., Epenhahn S., Lee D.S., Hill J., Wyers J.P., 1997: Measurements of horizontal gradients of  $\text{NH}_3$ , and  $\text{NH}_4^+$ , downwind of slurry spreading. *ADEPT Final Report, Annexes volume 2*.
- Cellier P., Brunet Y., 1992: Flux-Gradient relationships above tall plant canopies. *Agricultural and Forest Meteorology*, **58** : 93-117.
- Csanady G.T., 1980: Turbulent diffusion in the environment. *Geophysics and Astrophysics Monographs*, **D**.

- Reidel Publishing Co., Dordrecht, The Netherland, 248pp.
- Delécolle, R., Loubet B., Tchamitchian M., 1996: Calibration, sensibilité, validation des modèles. In *Actes de l'école chercheurs INRA en Bioclimatologie, Le Croisic, 25-29 mars 1996, Tome 2*, Ed. Dépt. Bioclimatologie INRA, 490 pp.
- Denmead O.T., 1995: Novel micrometeorological methods for measuring trace gas fluxes. *Phil. Trans. R. Soc. Lond.*, A 351: 383-396.
- Domenach A.M., 1995: Approche de l'estimation de la fixation symbiotique des arbres par l'utilisation des abondances isotopiques naturelles de l'azote. Dans *Utilisation des isotopes stables pour l'étude du fonctionnement des plantes*, P. Maillard et R. Bonhomme Eds. Editions INRA, Paris, 360 pp.
- Doran J.C., Horst T.W., 1985: An evaluation of Gaussian plume-depletion models with dual-tracer field measurements. *Atmos. Environ.*, 19: 939-951.
- Duyzer J.H., Verhagen H.L./., Westrate J.H., Bosveld F.C., 1992: Measurement of the dry deposition flux of NH<sub>3</sub> on to coniferous forest. *Environ. Pollut.*, 75: 3-13.
- Dyer A.J., 1974: A review of flux-profile relationships. *Boundary-Layer Meteorol.*, 7: 363-372.
- Erisman J.W., Wyers G.P., 1993: Continuous measurements of surface exchange of SO<sub>2</sub> and NH<sub>3</sub> : implications for their possible interaction in the deposition process. *Atmos. Environ.*, 27A: 1937-1949.
- Esplin G.J., 1995: Approximate explicit solution to the general line source problem. *Atmos. Environ.*, 29(12): 1459-1463.
- Ferm M. 1979: Method for determination of atmospheric ammonia. *Atmos. Environ.*, 13: 1385-1393.
- Ferm M. 1986 :A Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>- Coated denuder and filter for determination of gaseous HNO<sub>3</sub> and particulate NO<sub>3</sub><sup>-</sup> in the atmosphere. *Atmos. Environ.*, 20(6): 1193-1201.
- Flécharde C.R., Fowler D., 1998: Atmospheric ammonia at a moorland site. II: Long-term surface-atmosphere micrometeorological flux measurements. *Quart. J. R. Met. Soc.*, 124: 759-791.
- Fowler D., Duyzer J.H., 1989: Micrometeorological techniques for the measurement of trace gas exchange. In *Exchange of Trace Gases Between Terrestrial Ecosystems and the Atmosphere*. Eds M.O. Andreae and D.S. Schimel, pp. 189-207.
- Fowler D., Pitcairn C.E.R., Sutton M.A., Flécharde 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(S1): 343-348.
- Garland J.A., 1977: The dry deposition of sulphur dioxide to land and water surfaces. *Proc. Roy. Soc. London. A.*, 354: 245-268.
- Gash J.H.C., 1986: A note on estimating the effect of a limited fetch on micrometeorological evaporation measurements. *Boundary-Layer Meteorol.*, 35: 409-413.
- Génermont S., Cellier P., 1997: A mechanistic model for estimating ammonia volatilization from slurry applied to bare soil. *Agricultural and Forest Meteorology*, 88: 145-167.
- Gifford F.A., 1968: An outline of theories of diffusion in the lower layers of the atmosphere. In *Meteorology and Atomic Energy*, Ed. Slade D.H., US Atomic Energy Commission, National Technical Information Service, Springfield, VA.
- Gloennec P., Jouan M., Le Goaster C., Sauvaget G., Morvan T., Cellier P., Génermont S., Masson S., Loubet B., 1999: Evaluation du risque sanitaire lié aux expositions environnementales à l'ammoniac atmosphérique en zone rurale. Rapport de la Cellule Inter Régionale d'Epidémiologie (CIRE).
- Gryning S.E., Holtslag A.A.M., Irwin J.S., Sivertsne B., 1987: Applied dispersion modelling based on meteorological parameters. *Atmos. Env.*, 21(1): 79-89.
- Hatch D.J., Jarvis S.C., Dollard G.J., 1990: Measurement of ammonia emission from grazed grassland. *Environ.*

- Pollut.*, **65**: 333-346.
- Hill R.A., Pain B.F., 1998: Emission transport and deposition of ammonia volatilised from slurry spreading. In *Ammonia Distribution and Effects Project (ADEPT). Distribution, deposition, and environmental impacts of ammonia emitted by the agriculture*. Volume 2: Final Report on WA0613 to MAFF. ITE Edinburgh.
- Huang C.H., 1979: A theory of dispersion in turbulent shear flow. *Atmos. Environ.*, **13**: 453-463.
- Husted S., Schjørring J.K., 1995: Apoplastic pH and Ammonium Concentration in leaves of *Brassica napus* L. *Plant Physiol.*, **109**: 1453-1460
- Itier B., 1981: Une méthode simple pour la mesure de l'évapotranspiration réelle à l'échelle de la parcelle. *Agronomie*, **1**, **10**: 869-876.
- Jacobs A.F.G., van Boxel J.H., El-Kilani R.M., 1994: Night time free convection characteristics within a plant canopy. *Boundary-Layer Meteorol.*, **71**: 375-391.
- Jarvis P.G., 1976: The interpretation of the variation in leaf water potential and stomatal conductance found in canopies in the field. *Phil. Trans. R. Soc. Lond. B.*, **273**: 593-610.
- Jarvis S.C., Hatch D.J., Orr R.J., Reynolds S.E., 1991: Micrometeorological studies of ammonia emission from sheep grazed swards; *Journal of Agricultural Science*, **117**: 101-109.
- Leclerc M.Y., Thurtell G.W., Kidd G.E., 1988: Measurements and Langevin simulation of mean tracer concentration fields downwind from a circular line source inside an alfalfa canopy. *Boundary-Layer Meteorol.*, **43**: 287-308.
- Legg B.J., Raupach M.R., Coppin P.A., 1986: Experiments on scalar dispersion within a model plant canopy, part III: an elevated line source. *Boundary-Layer Meteorol.*, **35**: 277-302.
- Lockyer D.R., 1984: A system for the measurement in the field of losses of ammonia through volatilization. *Journal of Science Food Agricultural*, **35**: 837-848.
- Lockyer D.R., Whitehead D.C., 1986: The uptake of gaseous ammonia by the leaves of Italian ryegrass. *J. of Exp. Bot.*, **37(180)**: 919-927.
- Loubet B., Cellier P., Genermont S., Flura D., 1999a: An assessment of the wind-tunnel technique for estimating ammonia volatilization from land: Part 2. Study of the exchange parameters within the tunnel, *J. Agric. Eng. Res.*, **72**: 83-92.
- Loubet B., Hill P.W., Milford C., Sutton M., Tang Y.S., Cellier P., 1999b: Apoplastic, bulk ammonium and pH in leaves of *Lolium Perenne* L. and *Zea Mays* L. Effects of management practices and fertilisation. *En préparation*, voir annexes B.
- Loubet B., Milford C., Sutton M., Cellier P., 1999a: Landscape interaction of atmospheric ammonia exchange with upland ecosystems. *En préparation* (voir Annexe B).
- Monteith J.L., Unsworth M.H., 1990: Principles of Environmental Physics. *2nd edn.*, E. Arnold ed., 291 pp.
- Nemitz E., Sutton M.A., Gut A., San José R., Husted S., Schjørring J.K., 1997: The analysis of the turbulence structure and sources and sinks of ammonia within an oilseed rape canopy. *Soumis*
- Olioso A. Bethenod O., Rambal S., Tchamitchian M., 1995: Comparison of empirical leaf photosynthesis and stomatal conductance models. In *Photosynthesis: from light to Biosphere*. Proceedings of the 10<sup>th</sup> International Photosynthesis Congress, Montpellier, France, 20-25 August 1995, Ed. Paul Mathis, Kluwer academic publishers.
- Ower E., Pankhurst R.C., 1966: The measurement of air flow. *Pergamon Press*, 4<sup>ème</sup> édition, 367p.
- Perinno C., Guerardi M., 1999: Optimization of the coating layer for the measurement of ammonia by diffusion denuders. *En préparation*.
- Pitcairn C.E.R., Leith I.D., Sheppard L.J., Sutton M.A., Fowler D., Munro R.C., Tang S., Wilson D., 1998. The relationship between nitrogen deposition, species composition and foliar nitrogen concentrations in

- woodland flora in the vicinity of livestock farms. *Environ. Pollut.*, **102(S1)**: 41-48.
- Press W.H., Teukolsky S.A., Vetterling W.T., Flannery B.P., 1994, Numerical recipes in C, Second Edition, Cambridge University Press, 965p.
- Raupach M.R., Finnigan J.J., Brunet Y., 1996: Coherent eddies and turbulence in vegetation canopies: the mixing-layer analogy. *Boundary-Layer Meteorol.*, **78**: 351-382.
- Saugier B., Katerji N., 1991: Some plant factors controlling evapotranspiration. *Agricultural and Forest Meteorology*, **54**: 263-277.
- Schjørring J.K., 1997: Plant-Atmosphere Ammonia Exchange. Quantification, Physiology regulation and interaction with environmental factors. *D.Sc. Degree*, Royal Veterinary and Agricultural University, Copenhagen, Denmark: 55p.
- Schjørring J.K., Ferm M., Sommer S.G., 1992: Measurement of NH<sub>3</sub> emission and deposition by the gradient technique: Can passive flux samplers be used to obtain the net exchange of NH<sub>3</sub> through periods of several days with varying wind speed and atmospheric NH<sub>3</sub> concentration? In *development of analytical techniques for atmospheric pollutants*, Ed. Allegrini I., Rome, 13-15 Avril 1992.
- Snyder W.H., 1992: Wind-tunnel simulation of building downwash from electric-power generating stations. Part I: Boundary layer and concentration measurements. *Fluid Modelling Facility Internat. Dpt. Environ. Prot. Agency*, Research Triangle Park, USA NC.
- Sommer S.G., Friis E., Bach A., Schjørring J.K., 1997: Ammonia volatilization from pig slurry applied with trail hoses or Broadcast to winter wheat: effects of crop developmental stage, microclimate, and leaf ammonia absorption. *J. Env. Qual.*, **26**: 1153-1160
- Sommer S.G., Jensen E.S., 1991: Foliar absorption of atmospheric ammonia by ryegrass in the field. *J. Env. Qual.*, **20(1)**: 153-156.
- Sutton M.A., Asman W.A.H., Schjørring J.K., 1994: Dry deposition of reduced nitrogen. *Tellus*, **46B**: 255-273.
- Sutton M.A., Burkhardt J.K., Guerin D., Fowler D., 1995a: Measurement and modelling of ammonia exchange over arable croplands. In *Acid rain Research: do we have enough answers?* G.J. Heij and J.W. Erisman Eds., Elsevier Science BV, pp71-80.
- 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(S1)**: 349-361.
- Sutton M.A., Milford C., Dragosits U., Singles R., Fowler D., Ross C., Hill R., Jarvis S.C., Pain B.F., Moss D., Webb J., Espenhahn S., Halliwell C., Lee D.S., Wyers G.P., Hill J., ApSimon H.M., 1997 : Gradient of atmospheric ammonia concentrations and deposition downwind of ammonia emissions: first results of the ADEPT Burrington Moor Experiment. In : *Gaseous exchange with grassland systems*. (Eds Pain B.P. and Jarvis S.C.) CAB International.
- Sutton M.A., Pitcairn C.E.R., Fowler D., 1993: The exchange of ammonia between the atmosphere and plant communities. In *Advances in Ecological Research*, **24**. Eds. Begon M., Fitter A.H., Academic Press, London.
- Sutton M.A., Schjørring J.K., Wyers G.P., 1995b: Plant-atmosphere exchange of ammonia. *Phil. Trans. Roy. Soc. Lond. A*, **351**: 261-278.
- Sutton O.G., 1947: The problem of diffusion in the lower atmosphere. *Quart. J. R. Met. Soc.*, **73**: 257-281.
- Sutton O.G., 1953: *Micrometeorology*. McGraw-Hill, New York.
- Thurtell G.W., 1989: Comments on using k-theory within and above the plant canopy to model diffusion processes. In *Proceedings of workshop on Estimation of Aerial Evapotranspiration*, Vancouver, August 1987. IAHS Publ. No. 177.

#### IV.7. Bibliographie

---

- Uchijima Z., 1976: Maize and Rice. *In vegetation and the atmosphere vol. 2*, J.L. Monteith Ed., Academic Press, 439 pp.
- Varlet-Grancher C., Bonhomme G., Chartier M., Artis P., 1982: Efficience de la conversion de l'énergie solaire par un couvert végétal. *Acta Oecol. Plant.*, 17(1): 3-26.
- Vertes F., Soussana J.F., Louault F., 1995: Utilisation de marquages  $^{15}\text{N}$  pour la quantification de flux d'azotes en prairies pâturées. Dans *Utilisation des isotopes stables pour l'étude du fonctionnement des plantes*, P. Maillard et R. Bonhomme Eds. Editions INRA, Paris, 360 pp.
- 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.
- Wilson J.D., Shum W.K.N., 1992: A re-examination of the integrated horizontal flux method for estimating volatilisation from circular plots. *Agricultural and Forest Meteorology*, 57: 281-295.
- Wyers G.P., Otjes R.P., Slanina J., 1993: A continuous-flow denuder for the measurement of ambient concentrations and surface-exchange fluxes of ammonia. *Atmos. Environ.*, 27A: 2085-2090.
- Wyngaard J.C., 1983: Boundary Layer Modelling. Pp. 69-105 in *Atmospheric Turbulence and Air Pollution Modelling*. Ed. F.T.M. Nieuwstadt and H. Van Dop. D Reidel publishing Company, Dordrecht Holland.
- Yee E., Chan R., Kostenuik P.R., Chandler G.M., Biltoft C.A., Bowers J.F., 1995: The vertical structure of concentration fluctuation statistics in plumes dispersing in the atmospheric surface layer. *Boundary-Layer Meteorol.*, 76: 41-67.
- Yee E., Chan P., Kostenuik P.R., Chandler G.M., Biltoft C.A., Bowers J.F., 1995: The vertical structure of concentration fluctuation statistics in plumes dispersing ion the atmospheric surface layer. *Boundary-Layer Meteorol.*, 76: 41-67.
- Yin Z.-H., Kaiser W.M., Heber U., Raven J.A., 1996: Acquisition and assimilation of gaseous ammonia as revealed by intercellular pH changes in leaves of higher plants. *Planta*, 200: 380-387.
- Yin Z.-H., Raven J.A., 1997: A comparison of the impacts of various nitrogen sources on acid-base balance in C3 *Triticum aestivum* L. And C4 *Zea mays* L. *Plants. J. Experimental Botany*, 48(307): 315-324.

## V. VALIDATION ET SENSIBILITE DU MODELE DE DEPOT SEC

### Résumé

Le modèle présenté au chapitre III est validé en comparant les concentrations simulées en aval de la source avec les concentrations mesurées. Il a été validé à l'aide de 3 jeux de données correspondant respectivement à (i) un épandage de lisier de plus de 400 m de longueur en amont d'une prairie intensive fauchée (*Burrington Moor*), (ii) un épandage de moins de 200 m de longueur en amont d'une prairie intensive fauchée (*Bretagne98*), et (iii) une source ligne de 200 m de longueur en amont d'un champ de maïs (données du chapitre IV ; *Davron97*).

Pour les données *Burrington Moor*, 14 séries de mesures sont disponibles. La concentration était mesurée à 1.5 m de hauteur, en 3 points en aval de la source ( $x = 2, 200, 300$  m). Par ailleurs l'ensemble des résistances  $R_s$ ,  $R_w$  ainsi que le point de compensation  $C_s$  sont également disponibles. Globalement, le modèle reproduit bien les concentrations mesurées, et l'erreur est inférieure à 50%. Les simulations sont peu dispersées, et non biaisées, c'est à dire que le modèle simule bien toutes les gammes de concentrations.

En ce qui concerne les données *Bretagne98*, 12 séries de mesures sont disponibles. Chaque série correspond à 2 niveaux de mesures (0.8 et 1.5 m) et 5 distances entre 0 et 250 m en aval de la source. La méthode d'estimation du débit de source et de  $R_s$  sont sujettes à de plus grandes incertitudes que pour *Burrington Moor*, et  $R_w$  est estimée avec les mêmes paramètres que pour *Burrington Moor*. Le modèle donne des résultats satisfaisant pour la gamme de concentration située entre 50 et 2000  $\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ , où l'erreur est globalement inférieure à 50%. En revanche, les faibles concentrations, correspondant aux distances plus importantes sont globalement surestimées par le modèle, d'un facteur allant jusqu'à 2.

Pour ce qui est des données *Davron97*, le modèle sous estime la concentration à 12 m de la source d'un facteur 2. A 37 m de la source, le modèle simule bien la concentration, et à 162 m, il la sous estime d'un facteur 2 également. En revanche, les données sont peu dispersées. Globalement, le modèle est donc très fortement biaisé, et le biais agit dans le même sens que pour *Bretagne98*. La raison la plus probable pour expliquer ce biais est la direction moyenne du vent qui était rarement dans l'axe des mâts pour *Bretagne98* et *Davron97*. Celle-ci est critique parce que les sources ne sont pas assez longues.

La sensibilité du modèle à ses paramètres d'entrée est réalisée en étudiant l'impact d'une variation de ceux-ci, dans leur gamme d'incertitude, sur (i) les profils verticaux de concentration à 10 et 37 m en aval de la source, puis sur (ii) les profils verticaux d'absorption aux mêmes distances, et enfin sur le dépôt cumulé à 40 m en aval de la source. La sensibilité aux variables d'entrée ( $u_s$ ,  $L$ ,  $h$ , ...) n'est pas étudié ici et fait l'objet du chapitre suivant.

Le modèle de dispersion est peu sensible au fait que l'on utilise un modèle 2D ou un modèle 1D de diffusion turbulente. La différence engendrée sur la concentration est inférieure à 10%. De même, un changement de  $\sigma_w / u_s$  possède un faible impact sur les concentrations moyennes à 12 m de la source. En revanche, une variation de  $\sigma_w / u_s$  entre 0.8 et 1.8 entraîne des variations des concentrations et donc des dépôts allant jusqu'à 100%. La modification des profils d'échelle de temps lagrangienne  $T_{Lw}$  dans le couvert entraîne également des variations importantes de la concentration en aval de la source.

Concernant les paramètres du modèle d'échange foliaire, c'est à  $r_{smin}$  que le modèle est le plus sensible. Globalement, les trois paramètres étudiés auquel le modèle est le plus sensible sont par ordre décroissant,  $r_{smin}$ ,  $\sigma_w / u_s$ , et  $T_{Lw}$ . Noter qu'ici la sensibilité à  $C_s$  n'est pas étudié car il est considéré comme une donnée d'entrée du modèle. L'effet de  $C_s$  et des autres variables d'entrées sur le dépôt local est étudié dans le chapitre VI.

## V.1 Introduction

L'une des étapes essentielles du développement d'un modèle en est sa *validation*. C'est l'étape où les variables de sortie du modèle sont comparées avec les variables mesurées en conditions réelles. Tant qu'un modèle n'est pas validé, il n'est pas possible de savoir quelle est sa qualité de prédiction. Un modèle non validé n'a donc qu'un intérêt très limité. Toutefois, il existe plusieurs niveaux de validation, et tant que l'utilisation d'un modèle reste incluse dans sa limite de validité, elle est justifiée.

On peut dire que le premier niveau de validation est celui de l'ordre de grandeur, en le comparant à d'autres modèles ou à des mesures relativement éloignées des conditions que l'on cherche à modéliser. C'est bien souvent la première étape dans le développement d'un modèle. Si l'on souhaite utiliser le modèle à un niveau de détail plus fin, il est nécessaire de le valider sur des données spécifiques. C'est ce que nous avons cherché à faire, en comparant le modèle à des données expérimentales obtenues en plein champ. Comme la structure de la végétation est l'un des points que nous souhaitons étudier en détails, le modèle a été validé pour différents couverts.

Il n'existe pas une méthode unique pour valider un modèle. La validation dépend du critère choisi qui est une fonction des *variables* de sortie, et de la *mesure* utilisée, qui exprime en quelque sorte la *distance* entre variables mesurées et simulées (Delécolle *et al.*, 1997). Le choix du ou des critères dépend des données disponibles, et fait donc souvent l'objet d'un compromis. Idéalement, pour le modèle de dépôt sec, le critère devrait porter sur le dépôt d' $\text{NH}_3$  en fonction de la distance à la source. C'est en effet la variable de sortie qui est la plus intéressante vis-à-vis du sujet qui nous préoccupe. Mais nous avons vu dans l'introduction du Chapitre IV, que la mesure des dépôts locaux était problématique, pour des raisons météorologiques, et nous ne disposons donc que des concentrations en aval de la source.

Dans une première partie du chapitre, le modèle est validé en comparaison avec trois jeux de données : (i) l'expérimentation *Burrington Moor*, en aval d'un épandage de lisier sur prairie intensive dans le sud de l'Angleterre (Sutton *et al.*, 1998), (ii) l'expérimentation *Bretagne98*, en aval d'un épandage de lisier en Bretagne (Glorennec *et al.*, 1999), et (iii) l'expérimentation *Davron97* en aval d'une source ligne d' $\text{NH}_3$  contrôlée et placée au-dessus du couvert (Chapitre IV). Pour chacun des jeux de données, les concentrations mesurées et simulées sont comparées, en fonction de la distance en aval de la source et de la hauteur, afin d'analyser les différences entre mesures et modèle. Ensuite nous cherchons à estimer l'erreur maximale du modèle.

La validation d'un modèle permet d'en justifier l'usage et d'estimer sa qualité de prévision. Mais elle ne permet pas de savoir quel est le paramètre ou la variable d'entrée la plus influente sur les sorties du modèle. C'est l'objet d'une étude de sensibilité d'un modèle. L'information sur la sensibilité du modèle par rapport à tel ou tel paramètre ou variable

d'entrée est très importante car (i) elle permet de déterminer l'incertitude des simulations en relation avec l'incertitude sur les données d'entrées, (ii) elle désigne les paramètres sensibles dont il est important d'améliorer l'estimation, voire de reconsidérer la paramétrisation, et (iii) elle permet de faire sortir le modèle du cadre de sa validation, tout en ayant des clés pour interpréter les résultats obtenus.

La deuxième partie du chapitre est dédiée à l'étude de sensibilité du modèle en fonction des paramètres et variables d'entrée qui sont potentiellement influents, et de ceux dont l'étude de validation a mis en avant l'importance.

## V.2 "Validation" sur prairie

Nous commençons par valider le modèle dans le cas "le plus simple", c'est à dire sur prairie fauchée (5 - 30 cm), sur laquelle la végétation est peu développée, et où les mesures de concentration n'ont été faites qu'au-dessus du couvert. Pour les deux cas sur prairies présentés ci-après, la végétation étant peu développée est modélisée par une seule "couche", c'est à dire un peu comme dans un modèle type « grande feuille ». Toutefois, la différence majeure avec un modèle grande feuille est que le transfert dans la végétation est ici explicitement pris en compte, et c'est la concentration moyenne dans le couvert qui est utilisée, et non la concentration de surface comme dans les modèles de type "grande feuille". Nous présentons d'abord la validation sur les données de *Burrington Moor* puis celles de *Bretagne98*. Un descriptif des données d'entrée est donné en début de chaque partie.

### V.2.1 Données de "Burrington Moor"

L'expérimentation est introduite dans le § IV.6, et nous précisons ici certains points importants à la compréhension de la discussion. La source d' $\text{NH}_3$  était estimée à l'aide de deux mâts de bilan de masse placés de part et d'autre de la bande d'épandage de 20 m de largeur. Le système était doublé pour estimer la qualité des mesures. Les débits de source sont repris de Hill *et al.* (1998). En plus des mesures de concentrations, toutes les données micrométéorologiques nécessaires au modèle ont été collectées, y compris l'estimation directe de la résistance stomatique du couvert  $R_s$ , par mesure des différents termes du bilan d'énergie. L'ensemble des paramètres d'entrée du modèle est repris dans le Tableau V.1.

Tableau V.1. Variables d'entrée du modèle, utilisées pour simuler les 14 séries de validation de *Burrington Moor*. Le coefficient de variation du débit linéique de source (CV) est donné entre parenthèses. Données mesurées par Sutton *et al.* (1998) et Milford *et al.* (1997).

Série	$h$	$d^1$	$z_0^1$	Débit de source (CV) <sup>2</sup>	$u_*$	$L$	$HR_c^3$	$\Gamma_c^4$	$T_c^5$	$C_s$	$R_s^6$ NH <sub>3</sub>	$R_w^7$ NH <sub>3</sub>	$R_b^8$ NH <sub>3</sub>
	m	m	mm	$\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-1} \text{ s}^{-1}$	$\text{m s}^{-1}$	m	%	-	°C	$\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$	$\text{s m}^{-1}$	$\text{s m}^{-1}$	$\text{s m}^{-1}$
R1	0.23	0.15	13	756 (52%)	0.32	-38	65	3780	16.8	13.7	69	4389	12
R2	0.23	0.15	16	100 (66%)	0.24	54	82	4986	9.4	7.1	96	391	15
R3	0.23	0.15	11	100 (44%)	0.33	-143	85	5970	11.9	11.7	73	260	11
R4	0.23	0.15	16	48 (21%)	0.30	-61	70	6065	14.3	16.1	72	2034	13
R5	0.23	0.15	8.5	1668 (22%)	0.21	-19	83	8480	15.4	26.0	73	354	16
R6	0.26	0.18	6	406 (3%)	0.25	-107	97	1719	12.2	3.5	83	45	12
R7	0.26	0.18	6	118 (18%)	0.14	13	92	960	8.7	1.2	390	95	17
R8	0.26	0.18	9	112 (63%)	0.29	-31	88	956	16.2	3.2	71	41	12
R9	0.26	0.18	9	52 (52%)	0.42	-114	77	1235	16.0	4.1	73	181	9
R10	0.26	0.18	14	1114 (2%)	0.43	-237	84	719	14.8	2.1	75	307	10
R11	0.26	0.18	13	108 (17%)	0.38	307	97	783	12.2	1.6	92	47	11
R12	0.26	0.18	12	436 (2%)	0.51	-163	98	600	15.4	1.8	72	41	8
R13	0.26	0.18	15	164 (55%)	0.54	472	99	496	12.9	1.1	82	7	8
R14	0.26	0.18	12	140 (64%)	0.50	-584	98	535	13.6	1.3	76	43	9

<sup>1</sup>  $d = 0.7 h$  et  $z_0$  est estimé par régression du profil de vent. <sup>2</sup> estimé avec deux mâts bilan de masse. <sup>3</sup>  $HR_c$  est estimé par extrapolation du profil d'humidité et de température. <sup>4</sup>  $\Gamma_c$  est estimé à partir de la concentration moyenne dans le couvert. <sup>5</sup>  $T_c$  est estimé par extrapolation du profil de température de l'air. <sup>6</sup> La résistance stomatique est estimée avec  $R_{smin} = 60 \text{ s m}^{-1}$  et  $\beta = 60 \text{ W m}^{-2}$ . <sup>7</sup>  $R_w$  est estimé à partir de l'humidité relative et de l'Eqn. IV.30 avec  $R_{wmin} = 30 \text{ s m}^{-1}$  et  $R_{wpenie} = 7 \%$ . <sup>8</sup>  $R_b$  est estimé avec l'Eqn. (IV.21)

L'estimation de  $R_w$  et  $\Gamma$  est basée sur l'inversion d'un modèle d'échange d'ammoniac entre la végétation et l'atmosphère (Sutton *et al.*, 1995), à partir de la concentration et du flux, mesurés au-dessus du couvert, suffisamment loin de la source pour que les erreurs d'advection soient minimales. La méthode est appliquée dans Sutton *et al.* (1997a) aux séries R1 et R2. La particularité de cette expérimentation, est que le point de compensation est relativement élevé, puisque lors de la série R6, lorsque la température de surface est élevée, il atteint  $26 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$  (Tableau V.1). La concentration de fond varie entre 0.5 et  $4.5 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ .

Les comparaisons sont faites sur la concentration en NH<sub>3</sub> à 1.5 m au-dessus du couvert, à 3 distances en aval de la source (2, 200 et 300 m). Les paramètres d'entrée du modèle ont été utilisés tels qu'ils sont donnés dans le Tableau V.1. Certains paramètres tels le point de compensation et la résistance cuticulaire ont été estimés par inversion d'un modèle d'échange d'NH<sub>3</sub> (Sutton *et al.*, 1997b) et sont donc sujets à une forte incertitude. La figure V.1 montre la comparaison entre simulations et mesures pour les 8 premières séries de données. Les autres séries donnent des résultats comparables qui appellent les mêmes conclusions. Elles ne sont donc pas montrées dans la Figure V.1. En revanche tous les résultats sont utilisés plus tard.

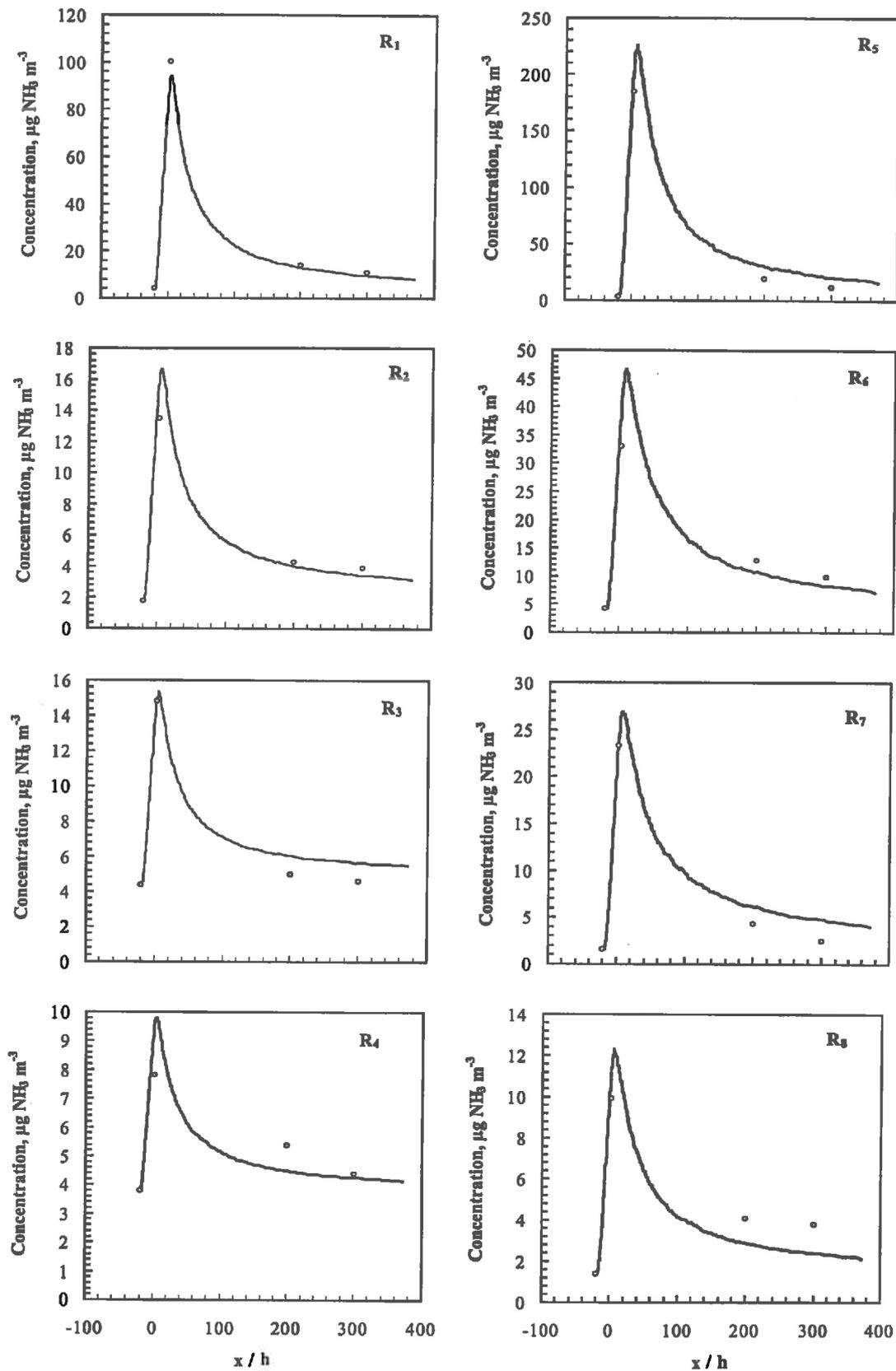


Figure V.1. Comparaison des concentrations à 1.5 m au-dessus d'une prairie intensive, mesurés (points) et simulés (traits), pour les séries R1 à R8. Les variables et paramètres d'entrée du modèle sont repris dans le Tableau V.1. Attention, les unités sur l'axe des ordonnées sont variables.

Tout d'abord, on observe sur la Figure V.1 que le modèle simule bien les ordres de grandeurs, puisqu'il reproduit bien les concentrations maximales en aval de la source, qui varient entre 10 et 250  $\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ , ainsi que les concentrations minimales, ainsi qu'en général, le gradient horizontal entre 200 et 300 m.

Si l'on regarde plus en détail les résultats de la Figure V.1, on voit qu'il existe des situations où le modèle reproduit très bien les concentrations mesurées et leur gradient (R1, R2, R9), d'autres où les concentrations près de la source sont bien reproduites, mais pas celles à distance de la source (R3, R5, R6, R7, R8), et enfin d'autres où ni la concentration près de la source, ni la concentration en aval n'est bien reproduite.

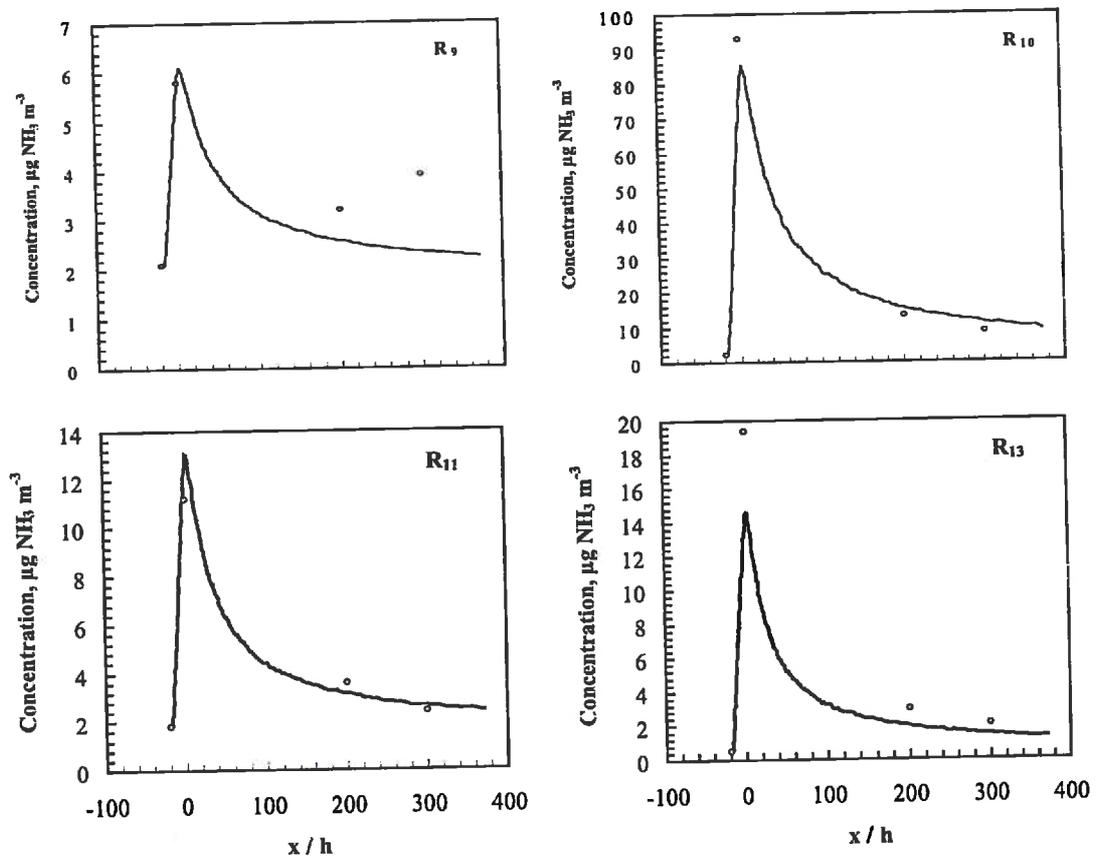


Figure V.2. Comparaison des concentrations à 1.5 m au-dessus d'une prairie intensive, mesurés (points) et simulés (traits), pour les séries R9, R10, R11 et R13. Les variables et paramètres d'entrée du modèle sont repris dans le Tableau V.1. Attention, les unités sur l'axe des ordonnées sont variables.

Globalement tout de même, la concentration près de la source est bien reproduite, bien qu'étant donné le fort gradient horizontal de concentration dans cette zone, l'erreur liée à l'incertitude sur la position du mât est potentiellement importante. A partir des concentrations simulées sur la Figure V.1, on peut l'estimer entre 2 et 6% par mètre. Le fait que la concentration près de la source soit bien simulée indique essentiellement que le terme source est bien paramétré, et que les paramètres décrivant la turbulence près de la surface sont

également corrects, en considérant bien entendu que les variables climatiques mesurées  $u_*$  et  $L$ , le sont également.

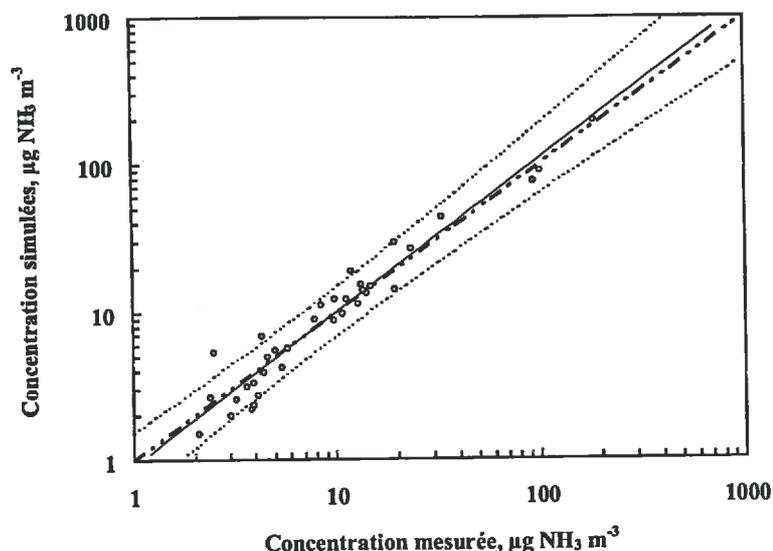
D'une façon générale, le modèle reproduit bien le gradient horizontal en aval de la source, c'est à dire la diminution de concentration avec la distance entre 200 et 300 m. Les cas où le gradient est le plus mal reproduit sont les cas R4, R9 et R11. Pour les séries R4 et R11, le gradient simulé est moins grand que le gradient mesuré, et dans le cas R9, il est inverse, c'est à dire que la concentration mesurée à 300 m est supérieure à la concentration à 200 m.

Les séries R4 et R9 correspondent aux cas où la source émet le moins. Dans ces conditions, deux éléments de réponses peuvent être mis en avant pour expliquer les différences entre observations et simulations ; (i) la concentration étant plus faible, l'incertitude relative sur la mesure est plus importante, et (ii) la contribution de la source étant moins forte, celle du couvert est plus importante. Le rôle du point de compensation devient alors crucial. C'est notamment le cas pour la série R9. Il faut également noter que les séries R4 et R11 correspondent aux directions de vent les plus éloignées de la direction des mâts (R4: 313°/N, R11: 165°/N). Il y a donc peut être aussi un effet de la direction du vent.

La concentration en aval de la source est plus souvent sous estimée que surestimée par le modèle. Cela se retrouve partiellement sur la Figure V.3 qui montre l'ensemble des concentrations simulées en fonction de celles mesurées, ainsi qu'une régression log-log et l'écart-type associé. Sur un graphe log-log, les droites sont des courbes d'équation  $y = a x^b$ , où  $b$  est la pente de la droite (sur le graphe), et  $a$  est l'ordonnée lorsque  $x$  vaut 1. Ainsi la première bissectrice d'un graphique log-log est la courbe  $y = 1 \times x^1$ .

Nous avons utilisé cette représentation log-log (logarithme népérien) afin de comparer l'ensemble des points avec un même critère. En effet, les concentrations près de la source et celles à 200 ou 300 m sont souvent différentes d'un ordre de grandeur. Dans de telles conditions, utiliser une régression linéaire, au sens des moindres carrés (Delécolle *et al.*, 1997; Press *et al.*, 1994), revient à biaiser l'estimation en faveur des valeurs les plus élevées. Au contraire, après transformation log-log, les pondérations sont mieux réparties. Un critère de répartition des points est le rapport de la distance entre les points extrêmes sur le barycentre des points. Si l'on prend les données de la Figure V.3, sur un graphique linéaire, ce rapport vaut environ 10. Après transformation log-log, le rapport est d'environ 2, c'est à dire *grosso modo*  $\ln(10)$ .

La Figure V.3 montre que les concentrations les plus faibles, qui correspondent aux mesures à 200 et 300 m en aval de la source, sont le plus souvent sous estimées. Malgré l'écart-type important de la régression log-log, lié au faible nombre de points (36), le modèle et les mesures présentent un bon accord qualitatif, sur toute la gamme de mesure, et une dispersion relativement faible.



**Figure V.3.** Comparaison des concentrations mesurées et simulées, à 1.5 m de hauteur, pour les 12 séries. Le trait plein est la fonction puissance  $y = 1.25 x^{0.9}$  obtenue par régression log-log. Les traits pointillés correspondent à l'écart-type, qui est d'environ 50% pour  $1 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ , 40% pour  $10 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ , 50% pour  $73 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ , et 90% pour  $1000 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ .

Globalement, les variations autour de la première bissectrice sont contenues dans les courbes présentant l'écart-type de la régression log-log. Ces droites, correspondent à environ 50% pour  $1 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ , 40% pour  $10 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ , 50% pour  $100 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ , et 90% pour  $1000 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ . L'erreur est minimale là où il y a le plus de points disponibles, c'est à dire autour du barycentre des points. La première bissectrice étant incluse dans la gamme d'incertitude de la courbe de régression, ces deux courbes ne sont pas significativement différentes.

On peut dire en conclusion, que sur prairie le modèle simule bien la concentration en aval de la source à 1.5 m au-dessus du couvert, à 50% près pour des concentrations élevées ( $100 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ ), très près de la source, à moins de 40% prêt pour des concentrations moyennes ( $10 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ ) et à 50% près pour les concentrations faibles ( $1 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ ), donc plus loin de la source ( $\geq 300 \text{ m}$ ). Noter que les données dont nous disposons ici ne nous permettent malheureusement pas de valider le modèle sur la concentration de surface qui est une variable plus intéressante du point de vue des dépôts.

### V.2.2 Données "Bretagne98"

L'expérimentation est introduite dans le § IV.6. La source d' $\text{NH}_3$  était estimée à l'aide d'un mât de bilan de masse à la limite aval de la bande d'épandage. Le débit de source est estimé par intégration du profil de flux horizontal  $F_x(z)$  entre  $z=0$  et  $z=\infty$ .  $F_x(z)$  est estimé par régression d'une fonction exponentielle sur les trois niveaux de mesure, excepté lorsque la régression exponentielle ne tend pas vers 0 avec l'altitude, auquel cas c'est une régression linéaire qui est appliquée. Une gamme d'incertitude est estimée à partir de l'écart-type des

coefficients des courbes de régression. Elle est donnée dans le Tableau V.2.

Les trois jours de mesures ont été découpés en 12 jeux de données correspondants à des moyennes sur 1 h ou quelques heures au maximum, afin que chaque jeu de données correspondent à des conditions climatiques, telles que le vent, le rayonnement global, ou la température, relativement constantes. Sur chaque période, les valeurs médianes des données micrométéorologiques sont utilisées comme données d'entrée du modèle. Elles sont reportées dans le Tableau V.2.

La résistance stomatique du couvert  $R_s$  est estimée par inversion du bilan d'énergie comme cela a été présenté dans le §IV.3.7. N'ayant aucune information sur  $R_w$ , et comme la végétation (principalement *Lolium perenne* L.) et le climat océanique sont comparables à ceux de *Burrington Moor*, nous avons repris la même paramétrisation que celle utilisé dans *Burrington Moor* (Tableau V.1, voir commentaires). La hauteur du couvert était de 0.15 m, mais en raison des vitesses de vent élevées au niveau du sol, et afin de reproduire au mieux le profil de vitesse mesuré, la hauteur du couvert est fixée à 0.05 m,  $d$  étant estimé par  $d = 0.7 h$ .  $z_0$  est, quant à lui, estimé par régression du profil de vitesse. Noter les valeurs élevées de  $z_0$  (Tableau V.2) qui indiquent un écoulement perturbé, par la présence d'arbres à quelques dizaines de mètres à l'ouest et d'un champ de maïs en amont de la bande d'épandage. Les concentrations étaient mesurées à deux niveaux, 0.8 m et 1.6 m, et en 5 points en aval de la source, ce qui permet une analyse plus détaillée des performances du modèle.

Tableau V.2. Variables d'entrée du modèle utilisées pour simuler les 12 séries de validation de *Bretagne98*. Une estimation de l'erreur sur le débit de source est donné entre parenthèse (voir texte). Données mesurées par Cellier et al. (1999).

Série	$h$	$d^1$	$z_0^1$	Débit de source <sup>2</sup>	$u^*$	$L$	$HR_c^3$	$T_c^5$	$R_s^6$	$R_w^7$	$R_b^8$
	m	m	mm	$\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-1} \text{ s}^{-1}$	$\text{m s}^{-1}$	m	%	°C	$\text{s m}^{-1}$	$\text{s m}^{-1}$	$\text{s m}^{-1}$
B1	0.05	0.04	26	3730 (500%)	0.24	-17	68%	18.8	68	2931	17
B2	0.05	0.04	24	610 (-)	0.22	-21	62%	19.7	69	7015	17
B3	0.05	0.04	25	-	0.01	0.18	68%	9.8	90	3054	605
B4	0.05	0.04	25	3946 (60%)	0.21	-19	80%	18.1	71	496	18
B5	0.05	0.04	24	1032 (100%)	0.21	-20	76%	19.7	71	953	18
B6	0.05	0.04	38	131 (65%)	0.14	13	76%	18.8	91	964	23
B7	0.05	0.04	45	43 (1%)	0.05	5	97%	14.6	1518	45	65
B8	0.05	0.04	26	28 (42%)	0.18	-478	94%	16.3	104	70	21
B9	0.05	0.04	28	13 (-)	0.14	12	95%	15.9	4870	62	21
B10	0.05	0.04	35	4482 (100%)	0.26	-106	82%	17.6	81	394	16
B11	0.05	0.04	35	2080 (130%)	0.27	-65	76%	18.4	73	906	17
B12	0.05	0.04	45	249 (130%)	0.14	12	84%	15.8	115	290	25

<sup>1</sup>  $d = 0.7 h$  et  $z_0$  est estimé par régression du profil de vent. <sup>2</sup> estimé avec deux mâts bilan de masse. <sup>3</sup>  $HR_c$  est estimé par extrapolation du profil d'humidité et de température. <sup>4</sup>  $F$  est estimé à partir de la concentration moyenne dans le couvert. <sup>5</sup>  $T_c$  est estimé par extrapolation du profil de température de l'air. <sup>6</sup> Les résistances stomatiques sont estimées avec  $R_{smin} = 60 \text{ s m}^{-1}$  et  $\beta = 60 \text{ W m}^{-2}$ . <sup>7</sup>  $R_w$  est estimé à partir de l'humidité relative et de l'Eqn. (IV.30) avec  $R_{wmin} = 30 \text{ s m}^{-1}$  et  $R_{wpenle} = 7 \%$ . <sup>8</sup>  $R_b$  est estimé avec l'Eqn. (IV.21)

Comme pour les données de *Burrington Moor*, globalement le modèle simule bien les ordres de grandeurs des concentrations mesurées lors de *Bretagne98* (Figure V.4). En effet, les concentrations mesurées et simulées coïncident qualitativement sur une gamme de concentration allant de 2 à  $2000 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ .

Contrairement à *Burrington Moor*, la concentration maximale est rarement bien simulée. Celle à 0.8 m est souvent sous estimée par le modèle, excepté dans les séries B4, B5, B10 et B11. Elle est parfois très fortement sous-estimée, ce qui peut être une conséquence de la grande incertitude avec laquelle le débit de source est connu (Tableau V.2). En revanche, le pic de concentration à 1.6 m de hauteur est mieux reproduit en amplitude par le modèle.

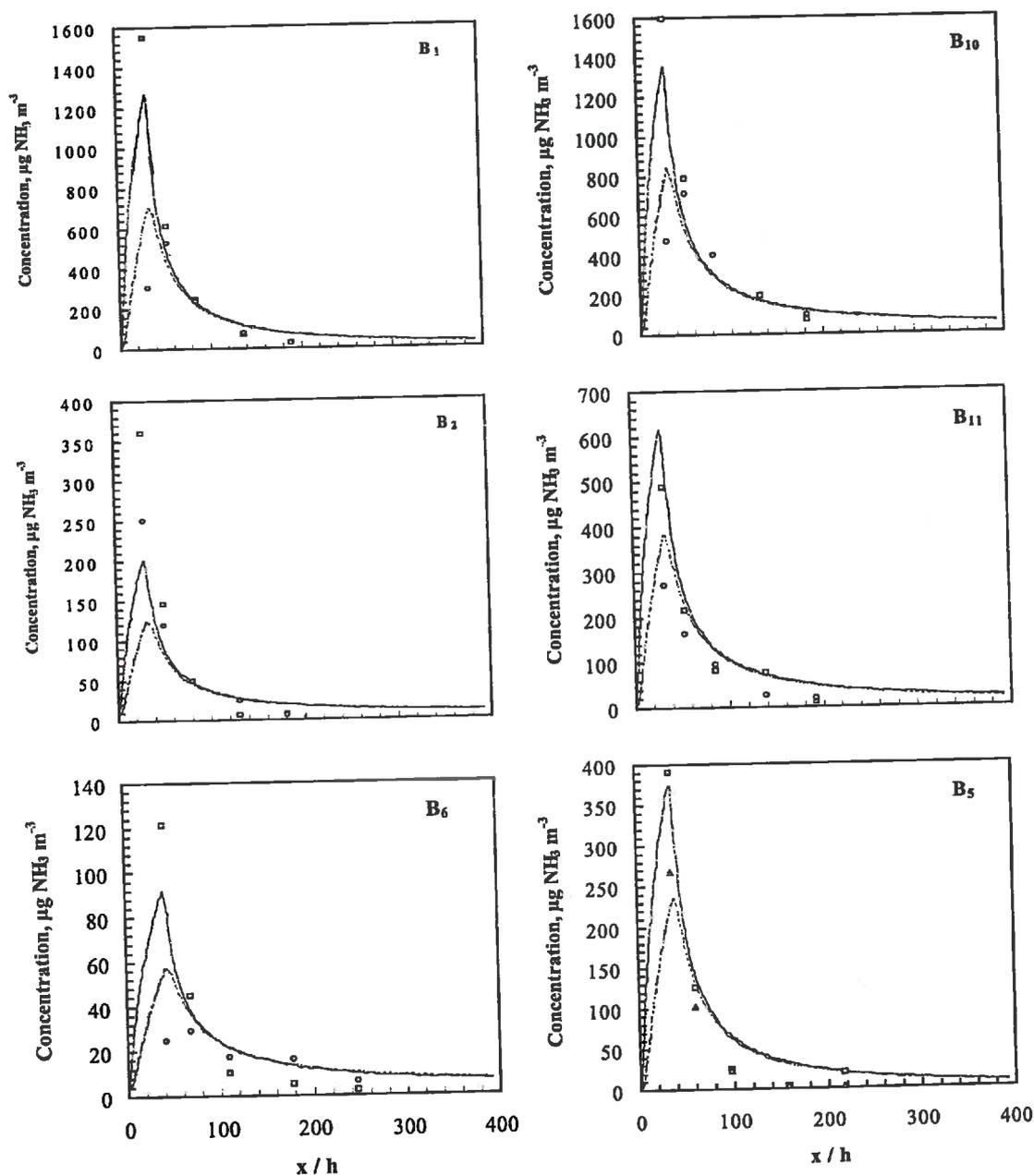


Figure V.4. Comparaison des concentrations à 0.8 m (carrés) et 1.6 m (losanges) de hauteurs, mesurées et simulées, pour les 12 séries de *Bretagne98* (Tableau V.2).

Par ailleurs, la concentration en aval de la source est souvent surestimée, sauf dans les situations B8, B9, B10, et B12 où elle est estimée de façon correcte ou bien sous estimée.

Dans les cas B8 et B9, c'est certainement le terme source qui est sous estimé car l'ensemble des concentrations est sous estimée par le modèle. Etant donné que la source n'est pas très longue (200 m pour les séries B1-B9 et 90 m pour les séries B10-B12), lorsque la direction du vent est oblique par rapport à l'axe des mâts, le dernier mât (150 m) est en dehors de la zone d'influence de la source. La concentration simulée par le modèle surestime alors la concentration mesurée (séries B3, B5, B6, B9 et B11).

La comparaison de l'ensemble des concentrations mesurées et simulées est représentée sur la Figure V.5. Par rapport aux résultats de *Burrington Moor* (Figure V.3), le modèle est biaisé, car il surestime les concentrations faibles et sous estime les concentrations élevées. Cela se traduit par une courbe de régression de type puissance dont la pente est inférieure à 1, c'est à dire à la première bissectrice. L'équation de la courbe de régression est  $C_{sim} = 2.4 C_{mes}^{0.85}$ , où  $C_{sim}$  et  $C_{mes}$  sont les respectivement les concentrations simulées et mesurées. En utilisant comme critère l'écart-type qui correspond à un niveau de confiance de 67%, et est représenté par les courbes pointillées sur la Figure V.5, on peut dire que la courbe de régression est significativement différente de la courbe  $y=x$  pour des concentrations inférieures à  $70 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$  et supérieures à  $3000 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ . Ce résultat met bien en avant le biais du modèle.

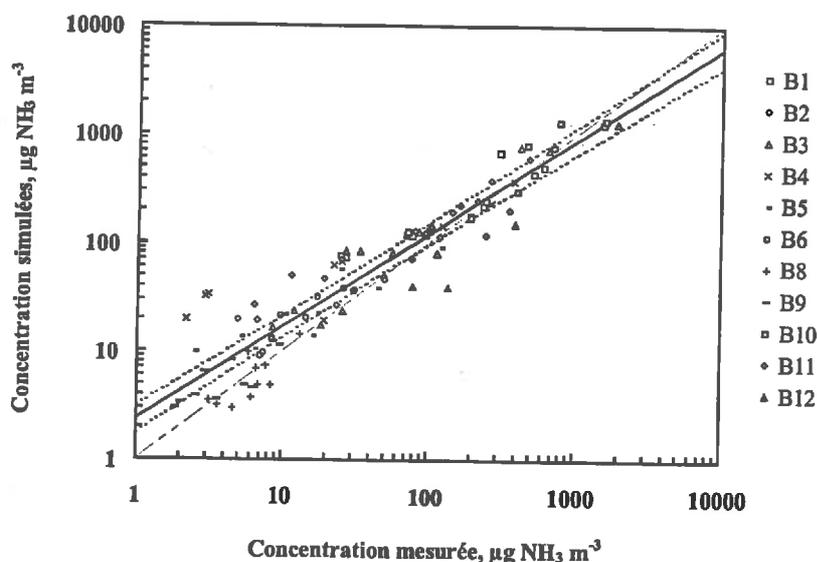


Figure V.5. Comparaison des concentrations mesurées et simulées, à 0.8 et 1.6 m de hauteur, pour les 12 séries. Le trait plein est la fonction puissance  $y = 2.4 x^{0.85}$ , obtenu par régression log-log. Les traits pointillés correspondent à l'écart-type de la régression, qui est d'environ 30% pour  $1 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ , 24% pour  $10 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ , 22% pour  $100 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ , et 30% pour  $1000 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ .

Ce biais est quasiment systématique sur l'ensemble des séries de données prises séparément, qui sont d'ailleurs relativement groupées autour de la moyenne, ce qui explique le faible écart-type, de l'ordre de 20 à 30%. Le modèle est donc fortement biaisé mais peu dispersé. Ce biais, qui traduit la sous estimation de la concentration près de la source et sa

surestimation plus loin en aval, sera discuté par la suite.

### V.3 "Validation" sur maïs

La comparaison ses simulations du modèle avec les mesures de concentration en  $\text{NH}_3$  obtenues au-dessus de prairies dans des conditions assez variées, et à partir de jeux de données relativement complets et indépendants, nous a permis d'évaluer la qualité du modèle dans des conditions réelles, sur un couvert non développé. Nous allons maintenant tester le modèle sur un couvert développé de hauteur variable.

Le modèle est confronté aux mesures de concentration obtenues en aval d'une source ligne d' $\text{NH}_3$  de débit contrôlé, au cours de l'expérimentation décrite en détail dans le chapitre IV. La concentration était mesurée en 30 points en aval de la source, à l'aide de capteurs placés au-dessus et au-dessous du sommet du couvert. Au total 11 séries de mesures ont été réalisées, desquelles seules 8 sont exploités ici (§ IV).

Les 8 séries de données obtenues au mois de juillet, présentent des conditions toujours instables, avec un  $u_*$  qui varie peu, dans une gamme  $0.19-0.36 \text{ m s}^{-1}$ . L'intérêt de cette validation ne se situe donc pas tant dans l'existence de conditions météorologiques contrastées, mais dans la présence d'un couvert développé, et dont la hauteur ( $h = 1.0-2.3 \text{ m}$ ) et la structure ( $LAI = 1.5-5.0$ ) varient entre les 8 séries. Ce jeu de données va donc permettre de tester le modèle pour des couverts de hauteurs variées.

Dans l'expérimentation, la source étant placée au sommet du couvert, la situation correspond, vis à vis de la théorie de la couche limite atmosphérique, à une source de surface, c'est à dire proche du plan  $d + z_0$ . Toutefois, la position exacte par rapport au sommet, variait légèrement suivant les séries, et la réponse du modèle par rapport à cette variation pourra être évaluée.

Plusieurs facteurs en particulier viennent complexifier, mais aussi enrichir, la comparaison entre modèle et mesures : (i) la source pour 7 des 8 séries (10 des 11 séries au total) était placée en bordure du champ (Figures IV.2, IV.3), et se trouve donc dans une zone de transition de rugosité, où la turbulence et les paramètres d'échanges foliaires sont perturbés (Draaijers *et al.*, 1994). Par ailleurs, (ii) la direction moyenne du vent est inclinée de plus de  $45^\circ$  par rapport à l'axe des mâts pendant 2 des 8 séries ( $S_7$  et  $S_8$  ; Tableau IV.1). Dans certains cas donc, les mâts les plus éloignés de la source peuvent se situer en dehors du champ où l'approximation de source ligne est valide. Enfin, (iii) durant certaines séries, les fluctuations de direction du vent étaient très grandes ( $S_5$ ,  $S_6$ ,  $S_8$  ; Tableau IV.9).

Le couvert étant développé, la dispersion latérale du panache, liée à la composante transversale de la fluctuation de vitesse du vent, varie en fonction de la hauteur. Par ailleurs, le couvert est structuré en rangs, ce qui pourrait également ajouter une complexité supplémentaire au problème. Une attention particulière sera donc portée lors de la validation

du modèle aux effets (i) du changement de rugosité, (ii) de la direction moyenne du vent et (iii) de ses fluctuations.

### V.3.1 Paramétrisation du modèle pour le maïs

Le domaine étudié est fixé à 400 m en  $x$  et 10 m en  $z$ , comme dans le cas de la prairie. La hauteur minimale du domaine, c'est à dire là où les particules sont réfléchies au sol, est fixée à 0 m. La hauteur maximale du domaine, qui correspond à la hauteur de la couche limite atmosphérique, est fixée à 2000 m pour l'ensemble des séries. En effet, étant donné les conditions de stratification thermique instable, la hauteur de la CLS ne devait pas être limitante pour la dispersion si près de la source. Des tests préliminaires sur l'ensemble des séries ont montré qu'il faudrait que la hauteur de la CLS soit inférieure à 500 m pour que plus de 0.1% des particules fluides puissent l'atteindre. L'effet d'une quelconque inversion thermique est donc négligé, mais les conditions de très fort rayonnement et vent faibles rencontré au cours des expérimentations justifient cette approximation.

Le maillage du domaine est formé de 150 colonnes verticales et 30 strates horizontales dont 5 dans le couvert. Les épaisseurs et largeurs des mailles au-dessus du couvert sont définies par les Eqns. (III.87a,b), où  $\alpha_x = 1.02$ , et  $\alpha_z = 1.2$ . Dans le couvert les strates sont d'épaisseur constante. Pour tenir compte de l'incertitude sur la position de la source ligne, celle-ci est modélisée par une section de  $0.1 \times 0.1$  m dont le centre est placé à  $x = 0$  m, et à la hauteur  $h_s$  indiquée dans le Tableau IV.9. Chaque maille du couvert entre 0 et 400 m est considérée comme une source/puits. La hauteur du couvert  $h$  et le LAI, sont repris du Tableau IV.9. La densité de surface foliaire est paramétrée  $a$  selon l'Eqn. III.84, avec  $h_m = 0.7 h$ ,  $\sigma_a = 0.25 h$ , et  $p_r = 1$ .

Les paramètres  $u_*$  et  $L$  sont mesurés sur le mât micrométéorologique (MM), par la méthode aérodynamique simplifiée (Tableau IV.10). En revanche, les paramètres  $z_0$ ,  $d$ , et  $\xi$  utilisés dans la paramétrisation des profils de vent sont recalculés afin d'obtenir un accord visuel à la fois avec les profils de vitesse moyenne mesurés sur les mâts MM et le mât bilan de masse BM (Figure V.6). Cette étape est indispensable afin de bien représenter le profil de  $\overline{u}$  dans le couvert végétal. Par ailleurs, les profils de  $\overline{u}$  mesurés sur les mâts MM et BM présentent des différences systématiques : il y a une "sous vitesse" du vent dans le couvert et "survitesse" au-dessus au niveau du mât BM (Figure V.6). Cela peut être attribué à la présence d'une zone de densité de pieds de maïs plus forte en amont du mât BM, due à la réalisation de semis en bordure de champ.

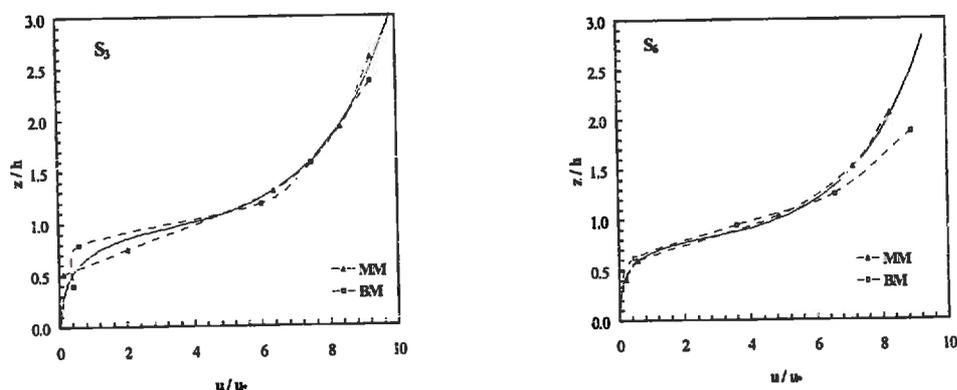


Figure V.6. Profils de vitesse moyenne du vent mesurés sur les mâts BM et MM, et profils paramétrés, pour les séries  $S_3$  et  $S_6$  (voir détail dans le texte). On voit clairement que la vitesse dans le couvert, sur le mât BM, est inférieure à celle sur le mât MM, ce qui engendre une survitesse au-dessus ( $S_6$ ).

Les paramètres concernant  $\sigma_u$ ,  $\sigma_w$ , et  $\varepsilon$  (ou  $T_{Lw}$ ) sont  $h_{ul} = h_{wl} = h_{u*l} = 0.8 h$ , et  $b_u = 2.4$  et  $b_w = 1.3$ , et  $T_{iw} = 0.3 h / u_*$ , dans le couvert. Les autres paramètres sont calculés en fonction du  $LAI$ , et de conditions de raccordement des profils et de leurs dérivées à l'interface couvert-atmosphère (§ III.1.10).

Les résistances de dépôt ont été calculées à partir des paramétrisations décrites dans le Chapitre III, avec pour  $r_b$  :  $Re_c = 50000$ ,  $T_c$  et  $T_a$  respectivement égales à la température moyenne des feuilles, et de l'air à la hauteur  $h$ . L'humidité relative  $HR_a$  est celle mesurée à la hauteur  $h$ . Pour  $r_w$ , nous avons repris la paramétrisation de l'Eqn. III.79. Enfin, en ce qui concerne  $r_s$ , l'Eqn. III.76 a été utilisée avec comme paramètres  $r_{smin} = 157 \text{ s m}^{-1}$  et  $\beta = 25 \text{ W m}^{-2}$ , estimés à partir des mesures (§ IV.1.4 ; Figure IV.9). Aucun stress n'a été pris en compte, c'est à dire que toutes les fonctions  $g(\cdot)$  de l'Eqn. III.76 sont égales à 1. Le point de compensation  $C_s$  est exprimé à partir de l'Eqn. III.82 en utilisant  $T_c$  comme température, et  $\Gamma = 3000$ . Toutes les variables d'entrée sont reprises dans le Tableau V.1, pour chacune des huit séries retenues.

Tableau V.3. Variables d'entrée du modèle pour les huit séries de validation. Le changement de rugosité n'est pas pris en compte.

Série	$h$	$LAI$	$h_s$	Débit de source <sup>1</sup>	$u_*$	$L$	$z_0$	$d$	$\zeta$	$T_c$	$T_a$	$HR$	$R_s^6$ NH <sub>3</sub>	$R_w^7$ NH <sub>3</sub>	$R_b^8$ NH <sub>3</sub>
	m	m <sup>2</sup> m <sup>-2</sup>	m	µg NH <sub>3</sub> m <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup>	m s <sup>-1</sup>	m	m	m	-	°C	°C	%	s m <sup>-1</sup>	s m <sup>-1</sup>	s m <sup>-1</sup>
S1	1.0	1.5	1.2	1514	0.36	-31	0.11	0.40	2.0	16.0	14.71	66%	159	34	7
S2	1.3	3.0	1.2	1493	0.30	-33	0.05	1.10	5.0	24.6	21.69	65%	56	36	8
S3	1.3	3.0	1.2	829	0.36	-68	0.05	1.08	5.0	26.3	23.55	54%	94	90	6
S5	1.5	3.2	1.2	1358	0.23	-24	0.05	1.12	7.0	26.7	24.68	53%	110	101	10
S6	1.6	3.3	2.5	1099	0.19	-65	0.07	1.10	5.5	24.8	24.09	59%	131	60	15
S7	2.1	3.9	2.5	1362	0.25	-66	0.05	1.45	5.5	25.0	22.29	66%	54	33	9
S8	2.1	4.0	2.5	1235	0.29	-95	0.06	1.70	6.0	23.1	20.79	62%	62	48	8
S10	2.1	4.6	2.5	1326	0.25	-34	0.04	1.65	4.5	26.3	26.75	41%	179	273	10

<sup>1</sup> Mesuré sur le dispositif d'émission, avec une incertitude de 7 à 9% selon les séries.

Le nombre de « particules fluides » utilisées est de  $2 \times 10^5$  pour la source, et 1000 pour chacune des 750 mailles du couvert. Le pas de temps est fixé à  $\Delta t = 0.3 \times T_L$ .

### V.3.2 Profils verticaux de concentration en aval de la source

Globalement, les profils de concentration simulés à 12 m (mât BM) en aval de la source sont en meilleur accord avec les mesures lorsque la source était placée à 1.2 m de hauteur ( $S_1$ - $S_5$ ) que lorsqu'elle était placée à 2.5 m ( $S_6$ - $S_{10}$ ). En effet, dans le premier cas, au-dessus du couvert, le profil simulé est très proche de celui mesuré, comme l'illustrent les séries  $S_1$ ,  $S_2$ ,  $S_3$  et  $S_5$  sur les Figures V.7 et V.8.

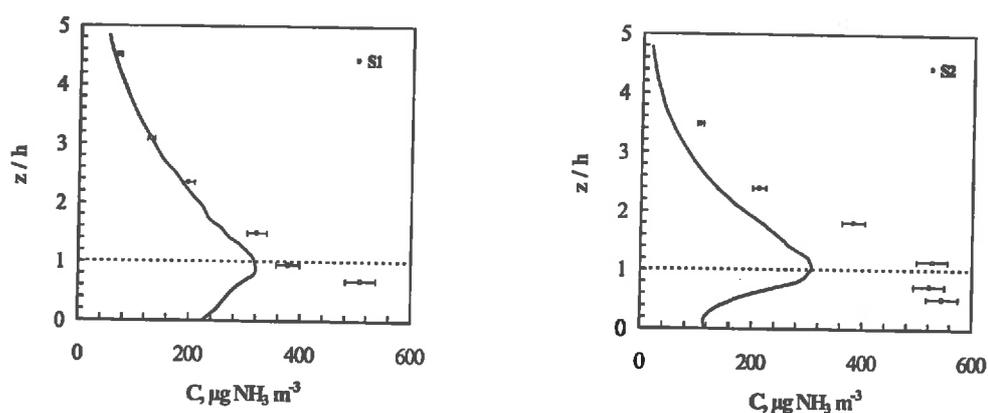


Figure V.7. Profils de concentration au mât BM, mesurés et simulés lors des séries  $S_1$  et  $S_2$ . Les directions moyennes du vent étaient respectivement de 5 et 29°, par rapport à l'axe des mâts, et les fluctuations de direction de vent étaient respectivement de 21 et 45°.

En revanche, dans le couvert, le modèle sous estime systématiquement la concentration moyenne. Une première hypothèse pour expliquer cette différence est liée à la paramétrisation de la vitesse du vent. En effet, le profil de vitesse moyenne du vent paramétré correspond à une moyenne entre les mâts MM et BM (Figure V.6), ce qui entraîne au niveau du mât BM une surestimation de  $U$  dans le couvert, et une sous estimation de  $U$  au-dessus. L'effet escompté sur les concentrations simulées serait alors une surestimation au-dessus et une sous estimation dans le couvert. La sous estimation dans le couvert est bien observée, mais pas la surestimation au-dessus. Ce n'est pas non plus le cas pour les séries  $S_6$  à  $S_8$  (Figures V.9-V.10). L'étude de sensibilité à la vitesse du vent apportera des réponses quantitatives à ces propos.

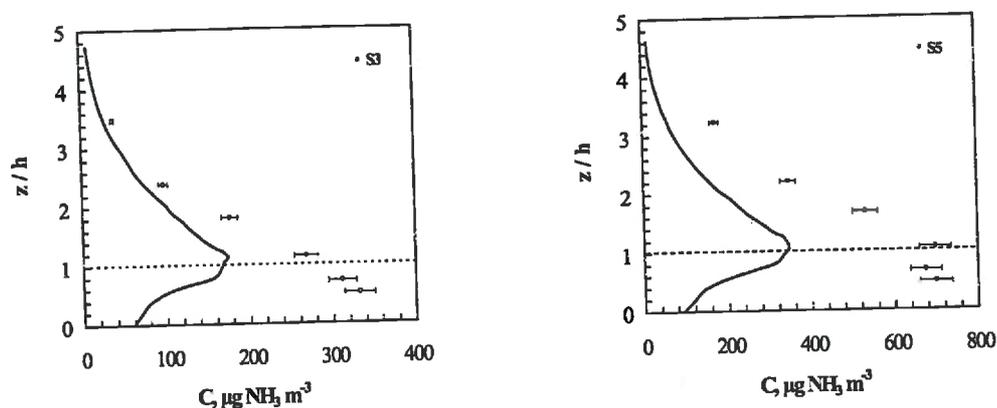


Figure V.8. Profils de concentration au mât BM, mesurés et simulés lors des séries  $S_3$  et  $S_5$ . Les directions moyennes du vent étaient respectivement de  $31^\circ$  et  $18^\circ$ , par rapport à l'axe des mâts, et les fluctuations de direction de vent étaient respectivement de  $39^\circ$  et  $112^\circ$ .

D'autres hypothèses pourraient être mises en avant pour expliquer la sous estimation de la concentration dans le couvert. Notamment, le caractère intermittent des échanges, mis en évidence par les mesures avec l'anémomètre sonique (§IV.3.6.3) pourraient en être à l'origine. En effet, on note que  $Sk_w$  était négatif dans le couvert (présence de rafales dirigées vers le bas), avec semble-t-il, un minimum autour de  $z/h = 0.5$ , et des valeurs positives au-dessus de  $h$ . Cela indique qu'une forte proportion de l' $\text{NH}_3$  émis pourrait avoir été entraînée par ces rafales dans le couvert, où il y est, en quelques sortes, piégé car la diffusion y est moindre qu'au-dessus. Le rôle de  $Sk_w$  étant d'augmenter les échanges à la surface, il contribue à augmenter la concentration dans le couvert près de la source, d'où la différence avec le modèle qui ne simule pas cette intermittence.

Sur la Figure V.9, on montre deux cas où le modèle sous estime la concentration en tout point du profil. C'est aussi le cas pour la série  $S_8$  (Figure V.10). Pour ces trois séries, un changement d'échelle permet de superposer relativement bien les profils mesurés et simulés. Ceci pourrait indiquer que le terme source utilisé dans modèle est sous estimé, ce qui serait cohérent avec les estimations de débits de source par bilan de masse qui sont toujours supérieures aux débits de source mesurés (§ IV.3.7.2 ; Tableau IV.8).

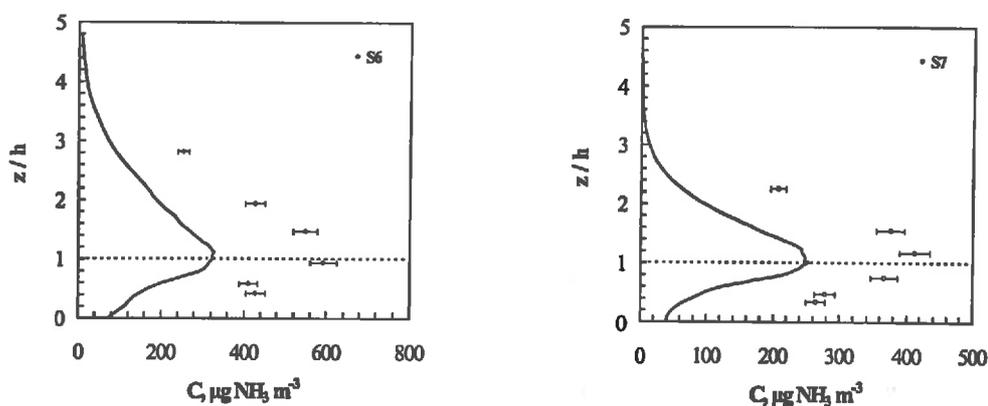


Figure V.9. Profils de concentration au mât BM, mesurés et simulés lors des séries  $S_6$  et  $S_7$ . Les directions moyennes du vent étaient respectivement de  $-10^\circ$  et  $-47^\circ$ , par rapport à l'axe des mâts. Les fluctuations de direction du vent étaient de  $129^\circ$  et  $87^\circ$  respectivement.

Mais d'autres facteurs pourraient expliquer les différences observées. La direction moyenne du vent pendant les séries  $S_7$ ,  $S_8$  et  $S_{10}$  était inclinée de plus de  $35^\circ$  par rapport à la direction escomptée (Tableau IV.9), mais cela n'est pas le cas de la série  $S_6$ . L'estimation du terme source à partir des concentrations mesurées sur ce mât (§ IV.4.7.2) donne des valeurs bien supérieures au débit de source imposé, et ce résultat se retrouve naturellement ici. L'analyse dans le § IV.4.7.2 montre en outre que les flux estimés sont corrélés à la direction moyenne du vent.

Les fluctuations de direction du vent pourrait être un autre facteur important. Elles sont globalement plus grandes pour les 4 dernières séries que pour les 4 premières (Tableau IV.9). Les rangs étaient orientés parallèlement à la source et il est possible que des écoulements préférentiels aient eu lieu, modifiant les trajectoires issues de la source.

Quels seraient les effets potentiels de ces fluctuations à proximité de la source? En aval d'une source ponctuelle, les fluctuations de direction du vent entraînent une diminution de la concentration moyenne par effet de dilution latérale accrue (Csanady, 1980). Mais à proximité d'une source ligne, les fluctuations peuvent engendrer (i) des variations de la distance apparente à la source et (ii) des périodes pendant lesquelles le mât est en dehors du panache issu de la source. Si la direction et la vitesse du vent sont corrélés de sorte que les vitesses les plus élevées correspondent aux périodes où le mât n'est pas dans le panache, le flux  $Q_{BM}$  est surestimé par la méthode du bilan de masse, présentée au Chapitre IV. Malheureusement, il est impossible *a posteriori* de retrouver la corrélation entre la vitesse du vent et sa direction instantanée, étant donné que les mesures soniques n'ont jamais eu lieu en même temps que les mesures de concentration.

Pour les séries  $S_6$ - $S_{10}$ , la forme du profil dans le couvert est mieux reproduite que pour les séries  $S_1$ - $S_5$ , mais pas les amplitudes (Figures V.9, V.10). Ceci suggère que la hauteur de la source (surélevée entre les séries  $S_5$  et  $S_6$ ) soit à l'origine de ce changement de profil dans le couvert. L'influence de la hauteur de la source sera abordée lors de l'étude de sensibilité

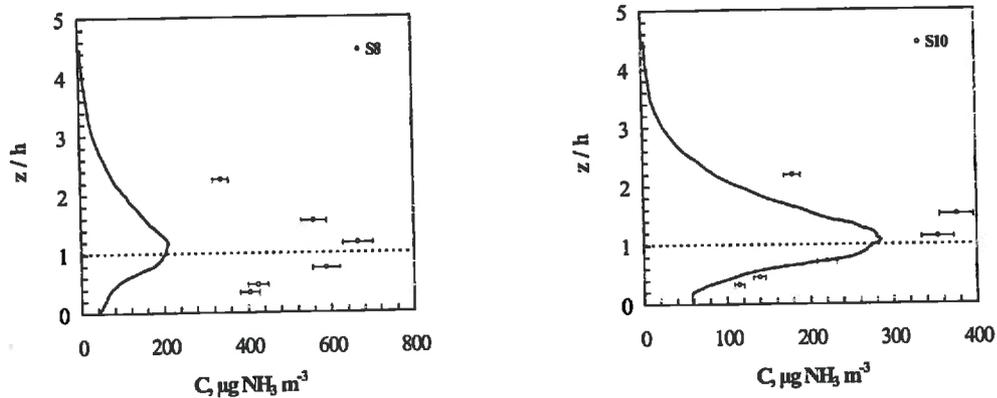


Figure V.10. Profils de concentration au mât BM, mesurés et simulés lors des séries  $S_8$  et  $S_{10}$ . Les directions moyennes du vent étaient respectivement de  $-47^\circ$  et  $+34^\circ$ , par rapport à l'axe des mâts, et les fluctuations de direction du vent étaient respectivement de  $118^\circ$  et  $93^\circ$

Sur le mât situé à 37 m en aval de la source, le modèle reproduit en général bien mieux l'ordre de grandeur des concentrations mesurées (Figures V.11, V.12). Par rapport au mât BM, l'erreur n'est pas forcément de même signe. Ceci est visible en comparant les séries  $S_7$  et  $S_8$  pour lesquelles le modèle sous estime la concentration à 12 m, mais la surestime à 37 m pour  $S_7$  et l'inverse pour  $S_8$ .

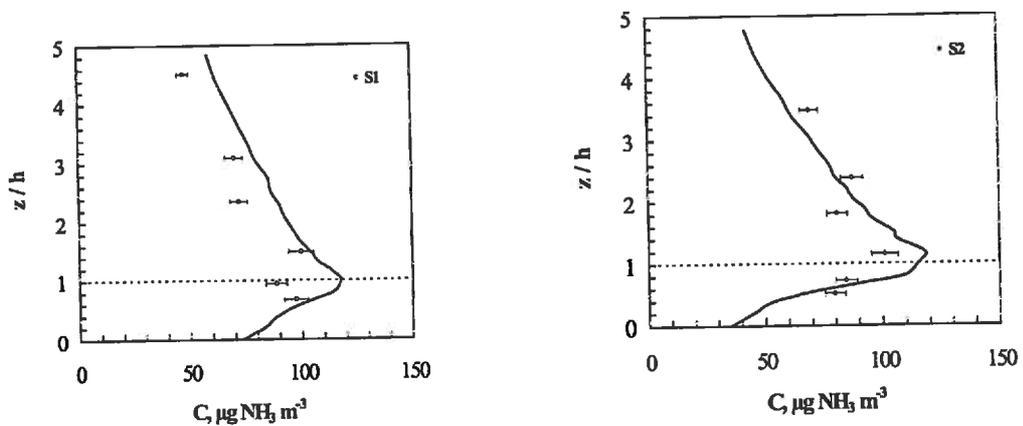


Figure V.11. Profils de concentration au mât situé à 37 m de la source, mesurés et simulés lors des séries  $S_1$  et  $S_2$ .

La forme des profils de concentration à 37 m est bien simulée dans ses grandes lignes, mais les mesures elles-mêmes sont très variables. Le gradient vertical de concentration, négatif au-dessus du couvert est reproduit par le modèle ( $S_1$ ,  $S_2$  et  $S_6$ ; Figures V.11 et V.12).

Les profils de concentration des séries  $S_1$  et  $S_6$  sont ceux qui sont le mieux reproduit par le modèle, y compris la position du maximum (Figure V.11 et V.12). Il semble toutefois, que la concentration au niveau du sol soit en général sous estimée, ce qui pourrait être le résultat d'une surestimation de la quantité déposée, ou plus probablement, une mauvaise paramétrisation de la vitesse du vent dans le bas du couvert

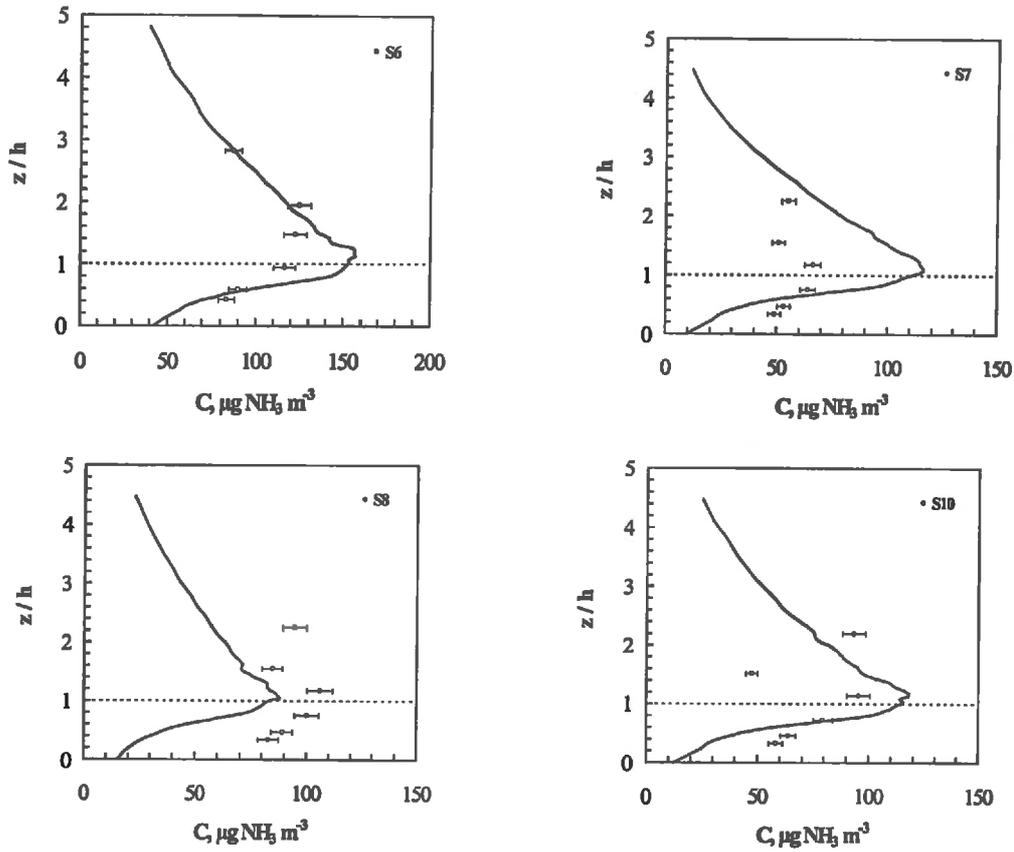


Figure V.12. Profils de concentration au mât situé à 37 m de la source, mesurés et simulés lors des séries S<sub>6</sub>, S<sub>7</sub>, S<sub>8</sub> et S<sub>10</sub>.

En ce qui concerne le mât situé à 162 m en aval de la source, la concentration simulée est toujours du même ordre de grandeur que celle mesurée (Figure V.13), mais les écarts sont relativement plus importants que pour les autres mâts (S<sub>1</sub>, S<sub>7</sub>). La concentration dans le couvert est systématiquement surestimée par le modèle. Elle est aussi parfois surestimée au-dessus, sauf dans les cas S<sub>2</sub>, S<sub>5</sub>, S<sub>8</sub> et S<sub>10</sub>.

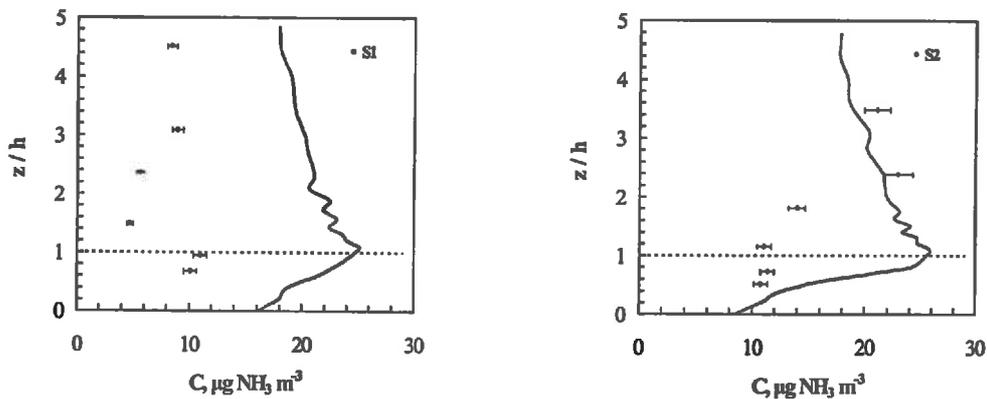


Figure V.13. Profils de concentration au mât situé à 162 m de la source, mesurés et simulés lors des séries S<sub>1</sub> et S<sub>2</sub>.

On constate pour la série S<sub>7</sub> (Figure V.14), que la concentration est très largement

surestimée à 162 m, alors qu'elle était sous estimée à 12 m, et bien estimée à 37 m. Il semble qu'il y ait ici un effet très net de la direction moyenne du vent. De plus, excepté pour le mât situé à 162 m de la source, on observe quasiment le même motif pour la série  $S_8$  (Figure IV.14).

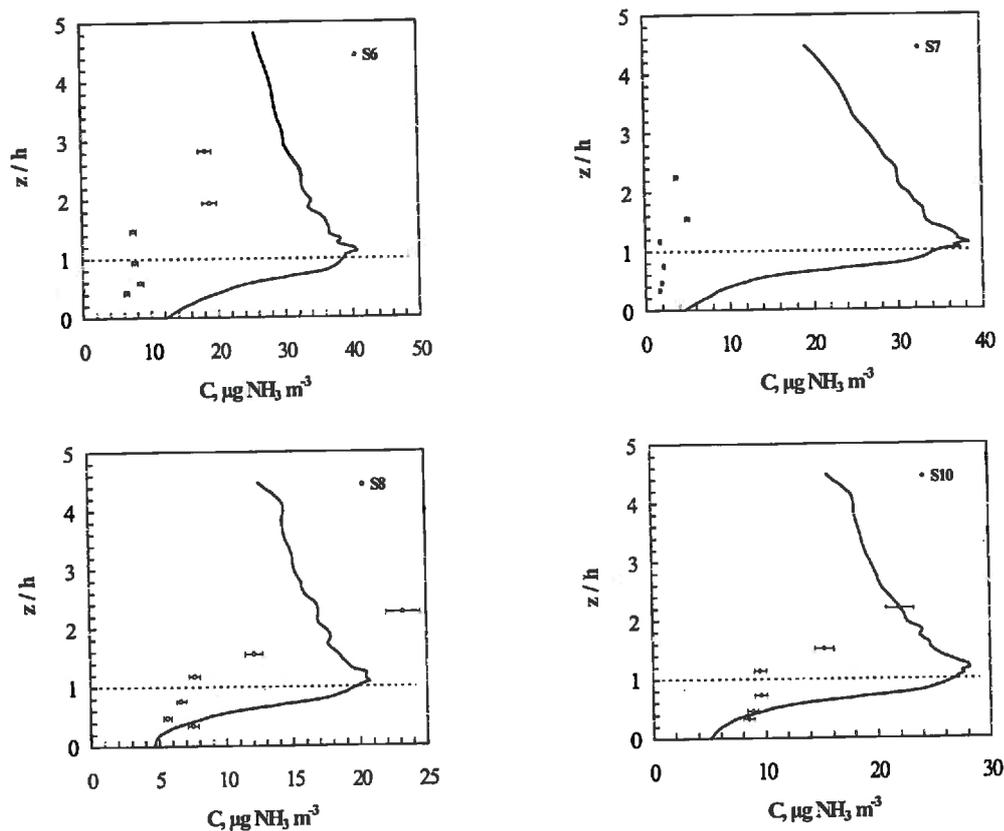


Figure V.14. Profils de concentration au mât situé à 162 m de la source, mesurés et simulés lors des séries  $S_6$ ,  $S_7$ ,  $S_8$  et  $S_{10}$ .

Le gradient vertical est souvent bien reproduit dans et au-dessus du couvert : il est positif dans le couvert et négatif au-dessus. En revanche, le maximum de concentration simulé par le modèle est toujours localisé au sommet du couvert, c'est à dire à la hauteur de la source, tandis que les mesures semblent suggérer que le maximum se situe au-dessus du couvert. Ceci est très nettement visible sur les séries  $S_8$  et  $S_{10}$ .

La comparaison de l'ensemble des données mesurées aux données simulées est représentée sur la Figure V.15. On retrouve le biais déjà observé sur la Figure V.5, mais avec une amplitude bien plus grande. En effet, les concentrations les plus élevées sont fortement sous estimées, tandis que les concentrations les plus faibles sont surestimées. On voit d'après le faible écart-type de la régression log-log que ce biais est systématique et apparaît dans toutes les simulations. Sur la Figure V.15, les simulations du modèle sont très significativement différentes des mesures, excepté dans la gamme de concentration 30-

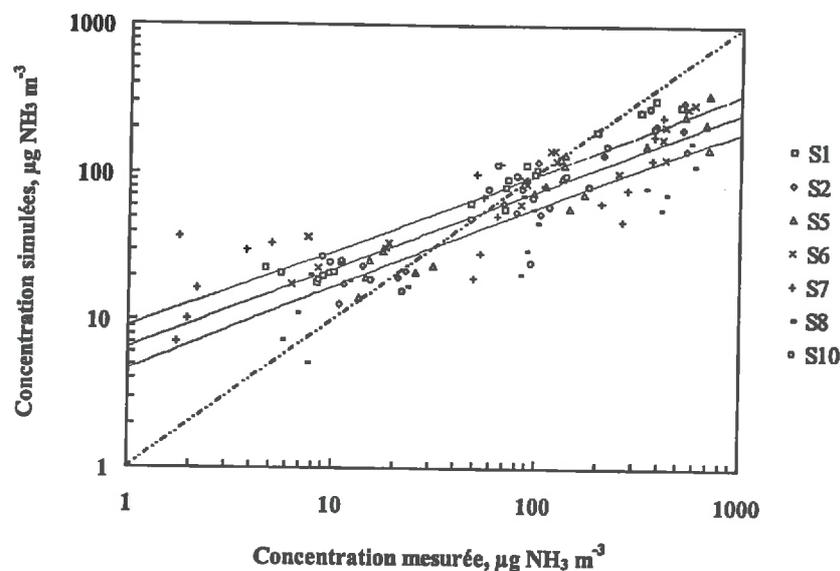
80  $\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ .

Figure V.15. Comparaison des concentrations mesurées et simulées pour l'ensemble des 8 séries, et pour les trois mâts situés à 12 m, 37 m, et 162 m, que l'on distingue partiellement à travers les trois « paquets » de points. Le trait plein est la fonction puissance  $y = 6.4 x^{0.53}$ , obtenue par régression log-log. Les traits pointillés correspondent à l'écart-type de la régression, qui est d'environ 35% pour  $1 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ , 31% pour  $10 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ , 27% pour  $100 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ , et 25% pour  $1000 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ .

### V.3.3 Profils horizontaux de concentration dans le couvert

Les profils horizontaux de concentration moyenne dans le couvert sont représentés sur la Figure V.16. La concentration dans le couvert est une variable importante car elle est la charnière entre le modèle de dispersion et le modèle d'échange foliaire, et elle est à ce titre déterminante pour l'estimation des dépôts. En quelque sorte, valider le modèle sur la concentration dans le couvert, permet de lever l'incertitude sur la composante "dispersion" du modèle.

On retrouve les mêmes problèmes que ceux évoqués dans la Figure V.15, mais cela est plus facile à voir : les concentrations près de la source sont sous estimées et elles sont surestimées loin de la source. Il semble toutefois que la différence soit plus marquée pour les séries  $S_6$  à  $S_8$  que pour les séries  $S_1$  à  $S_5$ , c'est à dire lorsque le couvert était bien développé, et la source placée à 2.5 m. En effet, le modèle donne des résultats relativement satisfaisant pour les séries  $S_1$  à  $S_5$ . Sur la série  $S_{10}$ , le modèle simule convenablement l'évolution en fonction de la distance à la source.

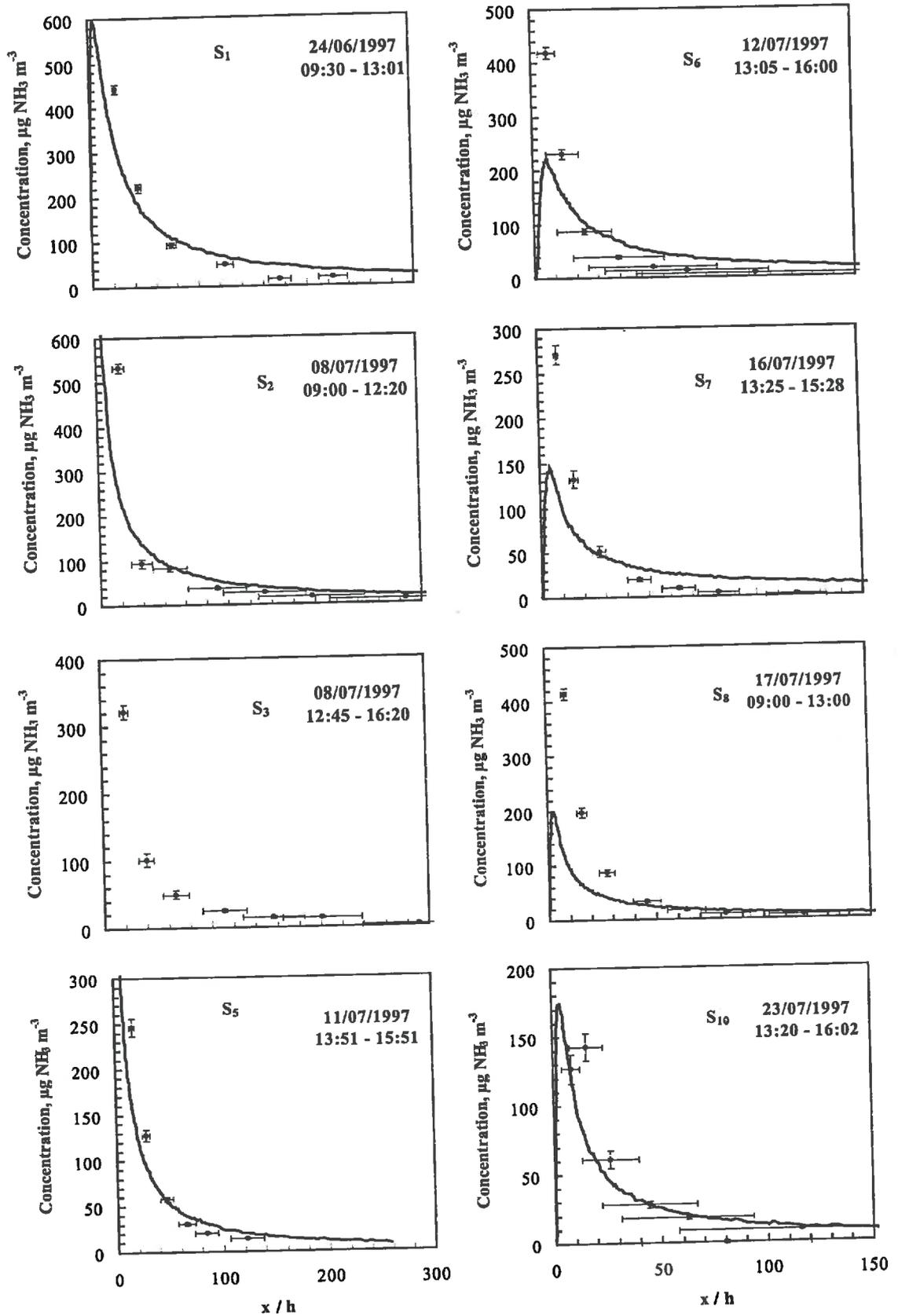


Figure V.16. Comparaison des profils horizontaux de concentration moyenne dans le couvert, mesurés et simulés pour les séries S<sub>1</sub> à S<sub>10</sub>. Les barres d'erreur horizontales correspondent aux variations standard de la distance en aval de la source et indiquent donc la variabilité de la direction du vent.

Les fluctuations de direction du vent sont matérialisées par les écart-types horizontaux (Figure V.16). Leurs effets sur les différences entre modèle et mesure n'est pas évident à interpréter, d'autant plus dans des conditions où la source n'est pas une source infinie, et la direction du vent est non perpendiculaire à celle-ci.

#### V.4 Discussion sur la validation du modèle

Plusieurs questions se posent au vu des résultats de validation. D'une part, pour quelles raisons les simulations sur *Burrington Moor* sont moins biaisées que celles sur *Bretagne98*? D'autre part, pourquoi dans le cas de *Davron97*, le modèle est-il tellement biaisé? L'étude de sensibilité du modèle permettra de mieux cerner les paramètres et facteurs clés afin d'interpréter ces différences, mais une discussion des résultats précédents peut éclairer certains points.

**(Q1) Les simulations sur les données *Burrington Moor* donnent-elles réellement de meilleurs résultats, ou bien s'agit-il d'un artefact lié aux nombres de mesures?**

Il est possible que les bons résultats obtenus soient en réalité liés au faible nombre de points. Toutefois, en comparant les résultats de *Burrington Moor* avec *Bretagne98*, il semble que ce ne soit pas le cas. Tout d'abord, les simulations sur *Bretagne98* possèdent un biais systématique (Figure V.5), avec des concentrations sous-estimées près de la source et surestimées en aval, alors que les données de *Burrington Moor* sont dispersées mais autour de la première bissectrice marquant l'égalité entre mesures et simulations (Figure V.3). Or il paraît peu probable qu'en diminuant le nombre de points de mesures, le biais disparaît, bien que l'hypothèse ne puisse être totalement rejetée.

Par ailleurs, on pourrait penser que les bons résultats obtenus avec *Burrington Moor* viennent du fait que la hauteur de mesure choisie se trouve être un "choix heureux". Mais alors, les mesures de *Bretagne98* qui ont été réalisées à deux hauteurs devraient avoir plus de chance qu'au moins une des deux hauteurs coïncide avec le modèle, ce qui n'est pas le cas.

**(Q2) Le biais du modèle observé sur les données *Bretagne98* et *Davron97* serait-il dû à une mauvaise paramétrisation des caractéristiques de la turbulence?**

Cette hypothèse est souvent évoquée pour expliquer les mauvais résultats des modèles, notamment sur la valeur du paramètre  $z_0$  qui influe fortement sur la diffusion des scalaires depuis la surface (van Jaarsveld, 1995). Trois arguments viennent contrecarrer celle-ci.

Premièrement, sur les données *Bretagne98*, près de la source, dans les séries B1, B6 et B10, la concentration simulée est supérieure à celle mesurée à 1.6 m et inversement à 0.8 m (Figure V.4). Si la diffusivité du modèle était inférieure à la diffusivité réelle, la source étant au niveau du sol, c'est l'inverse que l'on observerait : La concentration simulée près du sol serait supérieure à celle mesurée, et celle simulée à 1.6 m serait inférieure à celle mesurée. Or, à la même hauteur, le pic de concentration simulé est toujours situé en amont du pic mesuré (Figure V.4), ce qui indique plutôt que la diffusivité du modèle est supérieure à la diffusivité

réelle.

Sur les données *Davron97*, la même conclusion peut être tirée, car une diffusivité plus forte entraînerait une sous estimation de la concentration au-dessus de la source et une surestimation en dessous sur le mât le plus près de la source. Or cette surestimation n'est pas observée (voir par exemple la Figure V.7).

Enfin, sur les données *Davron97*, il y a trois cas ( $S_6$ ,  $S_7$ ,  $S_8$ ) où la concentration dans le couvert est beaucoup moins bien reproduite que dans les autres cas (Figure V.16). Or la paramétrisation du modèle dans ces cas n'est pas spécialement différente des autres, et le profil de vent n'est pas non plus foncièrement différent durant ces séries (§IV.3.6.1; Tableau V.3). Cela exclue donc que la paramétrisation de la turbulence explique à elle seule les différences observées.

(Q3) Quelles hypothèses plausibles pourraient expliquer le biais du modèle?

Il semble donc que les simulations de *Burrington Moor* sont significativement meilleures que celles de *Bretagne98* et *Davron97*. La direction du vent pourrait donc expliquer en partie le biais. En effet, une direction oblique par rapport à l'axe des mâts entraîne une diminution de la concentration mesurée sur les mâts les plus éloignés de la source et donc une surestimation par le modèle. C'est ce qui est clairement observé sur certaines séries des Figures V.5. (B2) et V.16. ( $S_6$ ,  $S_7$ ,  $S_8$ ).

Cette hypothèse est corroborée par le fait que la source dans *Bretagne98* et *Davron97* est bien plus courte dans sa direction transversale que celle de *Burrington Moor*. Cela pourrait expliquer pourquoi la direction du vent est un facteur critique pour les séries *Bretagne98* et ne l'est pas pour *Burrington Moor*.

En ce qui concerne *Davron97*, il semble probable que la densité de source a été spatialement variable (Figure IV.21). Cela expliquerait que le modèle sous-estime fortement la concentration près de la source dans les cas  $S_6$ ,  $S_7$  et  $S_8$ .

#### (\*) Conclusions

Le modèle a été validé sur plusieurs jeux de données. Sur les données de *Burrington Moor*, le modèle n'est pas biaisé et donne des estimations de la concentration à 50% près à 300 m en aval de la source. Sur les données *Bretagne98*, le modèle est biaisé de façon significative sur les gammes de concentrations  $\leq 70 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$  et  $\geq 1000 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ , et sur les données *Davron97*, le biais est plus important et la gamme non biaisée se réduit  $[30, 80] \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ . Ce biais serait probablement lié à des effets de largeur de source, et de direction du vent. Le modèle a été validé sans aucune calibration, c'est à dire qu'aucun des paramètres n'a été optimisé afin de minimiser l'erreur du modèle (voir par exemple Delécolle *et al.*, 1997). En conclusion, le modèle semble fortement biaisé dans deux des trois situations de validation. Ce biais semble être lié aux effets de la non-uniformité de la source et de

direction du vent.

### V.5 Etude de sensibilité du modèle

Après avoir validé le modèle, nous avons cherché à déterminer sa sensibilité par rapport aux paramètres d'entrée. L'étude de la sensibilité du modèle est tout aussi importante que sa validation, car elle permet d'identifier les paramètres les plus influents sur les sorties du modèle (Delécolle *et al.*, 1997). Cela permet également d'estimer l'incertitude du modèle connaissant l'incertitude sur chaque paramètre, et peut aussi permettre d'identifier les processus clés sous-jacents. Dans cette partie nous allons étudier la sensibilité du modèle aux paramètres d'entrée, c'est à dire aux constantes qui sont prescrites dans la paramétrisation des modèles de dispersion et d'absorption foliaire. L'étude de la sensibilité aux variables d'entrée du modèle (climat, plante) fait l'objet du Chapitre VI.

#### V.5.1 Choix des paramètres étudiés

Nous avons dans un premier temps étudié la sensibilité aux paramètres propres au modèle numérique. Tout d'abord nous avons comparé notre modèle au modèle n'incluant pas les fluctuations horizontales de vitesse du vent (Eqn. III.43 au lieu de III.46). Puis nous avons étudié l'effet du pas de temps  $\Delta t$  et de la limite inférieure du domaine  $z_{min}$ .

Ensuite nous nous sommes intéressés aux paramètres décrivant la turbulence dans et au-dessus du couvert : le profil de vitesse moyenne du vent à travers les paramètres  $\xi$ ,  $z_0$ ,  $d$ , les écarts type des composantes horizontales et verticales de la vitesse du vent avec  $b_u$ ,  $b_w$ , et la paramétrisation de la turbulence à petite échelle, avec le terme de dissipation de l'ECT,  $\varepsilon(z)$ , et le paramètre de structure lagrangien  $C_0$ . Nous avons également évalué l'effet de la prise en compte du terme de dissipation par frottement sur le couvert  $\varepsilon_d$  sur la dispersion (§IV.3.10.5).

Les paramètres spécifiques au couvert ont ensuite été analysés : la distribution de densité de surface foliaire avec  $\sigma_a$  et  $h_m$  (Eqn. III.84), les paramètres du modèle d'absorption : des variations de la résistance de surface  $r_w$  avec  $r_{wmin}$  (Eqn. III.74) et de la résistance stomatique  $r_s$  à travers  $r_{smin}$  (Eqn. III.76) et enfin la paramétrisation de  $r_b$  avec prise en compte du régime de convection libre (Eqn. III.73).

Deux séries de données ont été retenues dans Davron97. La série S<sub>3</sub> où la source est à 1.2 m et se trouve donc partiellement dans le couvert de hauteur  $h = 1.3$  m, et la série S<sub>6</sub> où la source est à 2.5 m, et se trouve donc franchement au-dessus du couvert ( $h = 1.6$  m). Les données de références sont celles du Tableau V.3. Les variables de sortie du modèle sur lesquelles porte cette étude de sensibilité sont (i) les profils verticaux de concentration à 12 m et 37 m de la source, (ii) les quantités absorbées par le couvert en aval de la source à 12 m et 40 m, ainsi que (iii) le dépôt total entre 0 et 40 m.

Le premier critère est plus spécifique du modèle de dispersion, tandis que les deuxième et troisième rendent compte de l'ensemble des processus de dépôt. Nous avons fait varier

chaque paramètre successivement et indépendamment des autres. Il aurait été plus intéressant de réaliser une cartographie complète de la fonction critère en faisant varier tous les paramètres "en même temps" (Delécolle *et al.*, 1997). Mais un calcul rapide d'ordre de grandeur montre que pour 3 valeurs par paramètres et 14 paramètres (notre cas), cette méthode demanderait plus de deux ans de simulations sur station de travail...

Sur chaque graphique, montrant le profil de concentration moyenne (trait pointillé), le profil de référence (trait plein) ainsi que les concentrations mesurées (points) sont également donnés pour comparaison.

### V.5.2 Sensibilité aux paramètres d'intégration numérique

#### V.5.2.1 Modèle 1D et 2D

La Figure V.17 permet de comparer le modèle 2D, incluant les fluctuations de la composante horizontale du vent (c'est notre modèle de référence) et le modèle 1D, ne prenant en compte que les fluctuations verticales. Seule la série  $S_3$  est représentée ici, car pour la série  $S_6$ , les différences entre les deux modèles sont minimales.

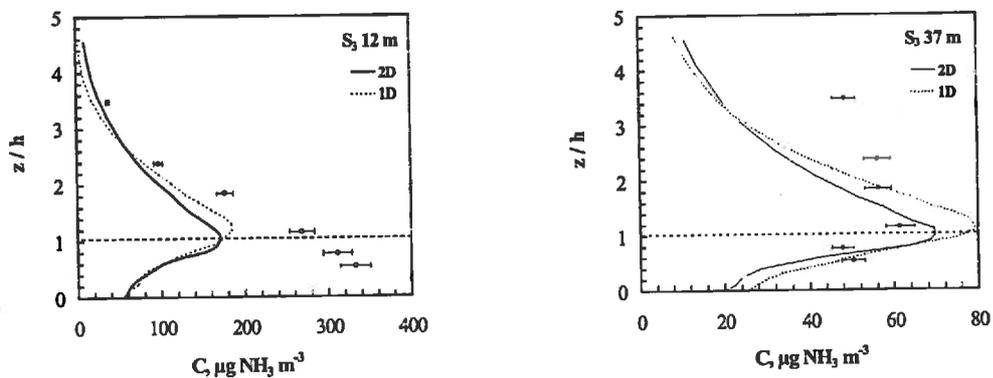


Figure V.17. Comparaison des modèles 1D et 2D de Thomson (1987). Les deux graphes correspondent respectivement à la concentration à 12 et 37 m en aval de la source pour la série  $S_3$ . (2D), modèle avec  $\sigma_u$  et  $\sigma_w$ , et (1D) modèle avec  $\sigma_w$  uniquement. Les résultats de la série  $S_6$  sont qualitativement équivalents, mais les différences entre modèles sont moins marquées.

La Figure V.17 montre essentiellement que le modèle 2D possède une diffusivité apparente plus grande que le modèle 1D, car la largeur du panache est plus importante avec le modèle 2D. Ceci se traduit par une concentration plus faible à la hauteur de la source et plus élevée de part et d'autre dans le modèle 2D. On note également, que la hauteur correspondant à la concentration maximale est légèrement plus basse dans le modèle 2D que 1D, cela dénote d'un biais du modèle 1D.

La prise en compte des fluctuations horizontales du vent se traduit par une vitesse moyenne d'advection des particules se dirigeant vers le haut plus faible que la vitesse moyenne du vent, et inversement vers le bas. Cet effet est induit par la conservation de la quantité de mouvement qui impose que  $\bar{u}'w' = -u_*'^2$ . Le principe est illustré sur la Figure V.18.

On voit sur ce schéma que dans un modèle 2D, les particules provenant de la hauteur  $h_s$  ont *en moyenne* une vitesse de convection à la hauteur  $z \geq h_s$  qui est inférieure à la vitesse moyenne du vent  $\bar{u}(h_s)$  puisque, *en moyenne*, si  $w' \geq 0$ , alors  $u' \leq 0$ , afin de satisfaire la conservation de la quantité de mouvement, et inversement (Figure V.18).

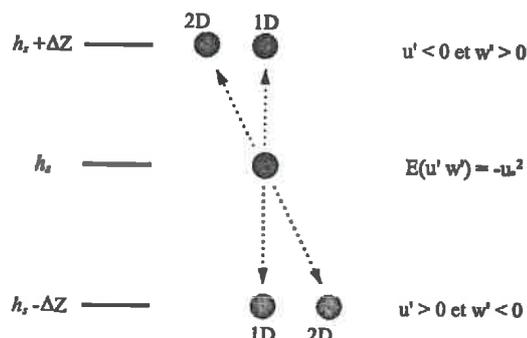


Figure V.18. Illustration du déplacement "fluctuant" moyen d'une particule fluide dans un modèle 1D et 2D dans la CLS. Pour obtenir le déplacement total il faut ajouter  $u(z) \Delta t(z)$ , où  $\Delta t$  est le pas de temps. Afin de satisfaire la conservation de la quantité de mouvement ( $\bar{u}'w' = -u^2$ ), dans le modèle 2D, en moyenne,  $w'$  et  $u'$  sont de signe opposé.

Si la source est dans la CLS, la vitesse de convection en dessous de la hauteur de la source est supérieure à la vitesse moyenne du vent. Le fait que  $\sigma_u$  et  $\sigma_w$  varient avec  $z$  rend la situation plus complexe. Shaw *et al.*, (1995) ont mesuré les vitesses convectives au-dessus d'un couvert de blé. Leurs résultats expérimentaux confirment notre raisonnement : la vitesse convective est inférieure à  $\bar{u}(z)$  lorsque  $z/h \geq 3$  et est supérieure en dessous de cette hauteur (Raupach *et al.*, 1996). La différence maximale entre les modèles 1D et 2D est de l'ordre de 5% à 12 m et d'environ 10% à 37 m. Comme le modèle 2D possède une diffusivité apparente plus grande, la différence va s'accroître avec la distance.

#### V.5.2.2 Sensibilité au pas de temps $\Delta t$

La Figure V.19 montre l'effet du pas de temps  $\Delta t$ . Les traits pointillés correspondent à une valeur de  $\Delta t$  dix fois plus faible que celle prescrite dans le modèle de référence (courbe en trait plein), qui est  $\Delta t = 0.3 T_{Lw}$ . Le facteur 0.3 choisi comme référence est un peu grand pour vérifier  $T_{Lw} \gg \Delta t$ , mais il a été augmenté afin de diminuer le temps de calcul. Des tests préliminaires sur prairie ont montré que cette valeur n'introduisait pas de biais significatif par rapport à un  $\Delta t = 0.01 \times \min_z(T_{Lw})$  (Figure III.2).

A 12 m de la source la simulation avec  $\Delta t = 0.03 T_{Lw}$  donne une concentration (i) supérieure à la référence d'un facteur 2 près du sol, (ii) quasiment égale au sommet du couvert, et (iii) légèrement supérieure (max. 10%) au-dessus. Cela se retrouve dans les deux séries  $S_3$  et  $S_6$ . A 37 m dans la série  $S_3$  la simulation  $\Delta t = 0.03 T_{Lw}$  est supérieure à la référence d'un facteur 2 au sol, inférieure de 30% au sommet du couvert, et supérieure de près de 20% au-dessus. Pour la série  $S_6$  à 37 m, l'écart est moindre, avec une différence positive de 50% au sol, négative d'environ 20% au sommet du couvert et négative de l'ordre de 10% au-dessus.

Noter également qu'à 37 m de la source, les simulations avec le pas de temps le plus faible sont en meilleur accord avec les mesures.

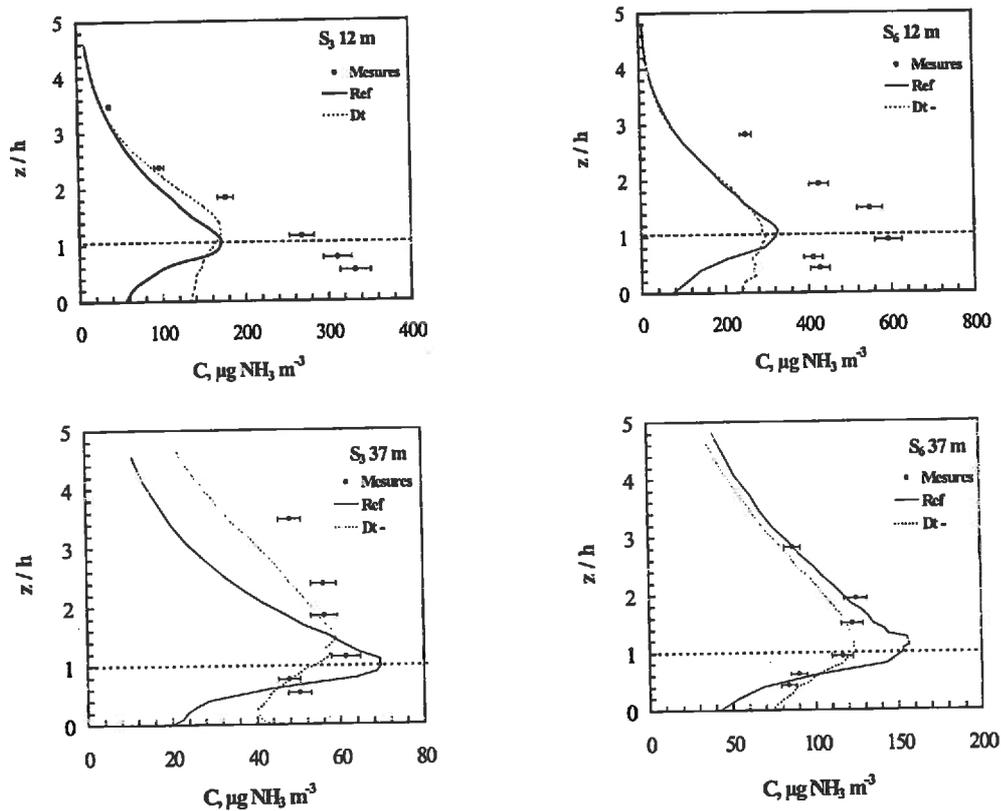


Figure V.19. Influence du pas de temps  $\Delta t$  sur la concentration à 12 et 37 m en aval de la source pour deux séries de mesures,  $S_3$  et  $S_6$ . Les graphes du haut correspondent à des profils à 12 m de la source, et ceux du bas aux profils à 37 m. Dans la légende, Ref correspond à  $\Delta t / T_{Lw} = 0.3$ , et Dt à  $\Delta t / T_{Lw} = 0.03$ .

On note d'une part, que l'effet de  $\Delta t$  est surtout important dans le couvert, et d'autre part qu'il est plus important hors du couvert dans la série  $S_3$ , lorsque la source est moins élevée. Cela fait penser à une mauvaise résolution de la condition à la limite au niveau du sol. Près du sol, une réflexion totale des particules est appliquée, c'est à dire que  $w$  et  $u$  sont inversés en même temps, afin que  $\bar{u}'\bar{w}' \leq 0$ . Plus le pas de temps est grand, plus le rebond sur le sol va être haut, et moins la particule fluide a de chance de se trouver dans la couche adjacente au sol. De plus, lorsque les particules passent dans cette couche, leur vitesse est d'autant plus grande qu'elles viennent de plus haut, donc que  $\Delta t$  est grand. Or la concentration est proportionnelle au temps passé dans une maille, donc inversement proportionnelle à la vitesse des particules dans cette maille. Tous ces facteurs conduisent donc à une sous-estimation de la concentration près du sol si  $\Delta t$  est trop grand.

Le pas de temps dans un modèle de marche aléatoire est un paramètre important qui doit satisfaire certains critères. Le premier de ces critères qui permet de justifier l'approche stochastique est que :

$$T_{Lw} \gg \Delta t \gg \tau_K \quad (V.1)$$

où  $\tau_K$  est l'échelle de temps de Kolmogorov ( $\tau_K = (\nu / \varepsilon)^{1/2}$ ). La limite inférieure  $\tau_K$  est d'environ  $10^{-2} \times T_{Lw}$  à la hauteur  $z = h$  et est proportionnelle à  $10^{-2} \times \sqrt{(z-d) / u_*^3} \sim 10^{-2} \times \sqrt{T_{Lw} / u_*^2}$  au-dessus. Donc dans la CLS,  $\Delta t = 0.3 T_{Lw}$  satisfait la condition à la limite inférieure de l'Eqn. V.1.

Dans le couvert,  $\varepsilon(z)$  décroît pour atteindre des valeurs faibles, de l'ordre de  $u_*^3 / h$  dans la partie inférieure du couvert (Massman et Weil, 1999; Eqn. III.64a). L'échelle de temps  $\tau_K$  peut alors atteindre des valeurs de l'ordre de quelques centièmes de secondes à quelques dixièmes de secondes. Comme  $T_{Lw}$  est de l'ordre de quelques dizaines de secondes à quelques secondes dans le couvert, l'écart entre  $T_{Lw}$  et  $\tau_K$  peut parfois n'être que d'un ordre de grandeur uniquement, rendant l'inéquation V.1 impossible à satisfaire.

Le problème de surestimation près du sol lié à l'inhomogénéité de la turbulence dans le couvert et dans la CLS abordé par Wilson et Flesch (1993) devrait être évité ici par l'utilisation d'un schéma d'intégration semi-implicite (Figure III.2). Mais il semble que malgré l'utilisation de ce schéma, il soit nécessaire d'utiliser un pas de temps suffisamment faible. Le critère de sélection d'un pas de temps, proposé par Thomson (1987), et adapté par Reynolds (1998), devrait être utilisé.

### V.5.3 Sensibilité à la paramétrisation de la turbulence

#### V.5.3.1 Sensibilité au profil de vent moyen $\bar{u}(z)$ , avec $z_0$ , $d$ et $\xi$

Les profils de vitesse moyennes  $\bar{u}(z)$  mesurés sur les mâts BM et MM lors de l'expérimentation *Davron97* étaient différents (Figure V.6). Il est intéressant de savoir si la forme du profil  $\bar{u}(z)$  a une influence sur la concentration simulée. La Figure V.20 compare les simulations obtenues lorsque la vitesse du vent est paramétrée avec les valeurs de  $z_0$  et  $d$  qui reproduisent le mieux le profil du mât BM (trait plein), et ceux obtenues avec la paramétrisation usuelle,  $z_0 = 0.1 h$  et  $d = 0.7 h$ . On constate que l'effet est inférieur à 10% à 12 m. Il est encore moindre à 37 m.

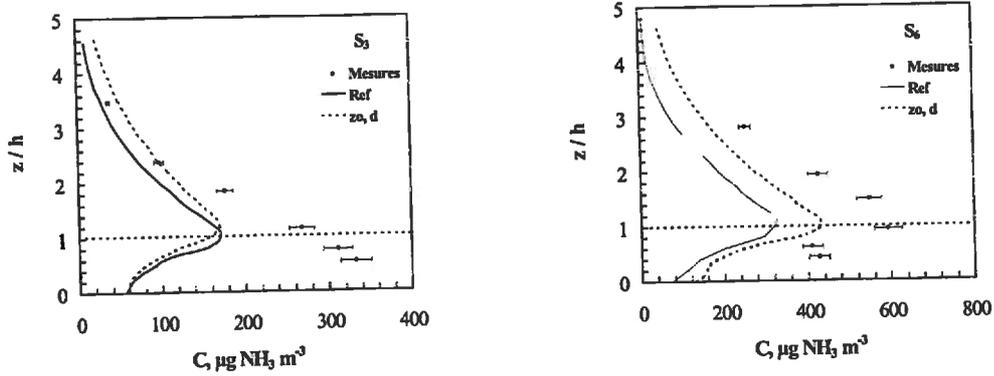


Figure V.20. Influence du de  $z_0$  et  $d$  sur la concentration à 12 m en aval de la source pour les séries  $S_3$  et  $S_6$ . Les courbes en pointillés correspondent à  $z_0 = 0.1 h$ , et  $d = 0.7 h$ , avec  $h = 1.34$  et  $1.6$  respectivement pour les séries  $S_3$  et  $S_6$ . Les courbes de référence correspondent à  $z_0 = 0.05$  m et  $d = 1.08$  m, et  $z_0 = 0.07$  m et  $d = 1.10$  m respectivement pour les séries  $S_3$  et  $S_6$ .

On note également qu'il est plus important pour la série  $S_6$  que  $S_3$ . Il est probable que cela vienne du fait que les modifications de  $\bar{u}(z)$  augmentent avec  $z/h$ , et que dans la série  $S_6$ , la hauteur de la source était plus élevée relativement au sommet couvert (Figure V.21). On voit sur cette Figure que les variations de vitesse atteignent près de  $1 \text{ m s}^{-1}$  au-dessus du couvert. Il est intéressant de constater que l'effet sur le profil de concentration à 12 m est minime ( $S_3$ ; Figure V.20). Cela illustre le rôle crucial que joue la position de la source dans la dispersion, par le biais de la vitesse initiale des particules fluides.

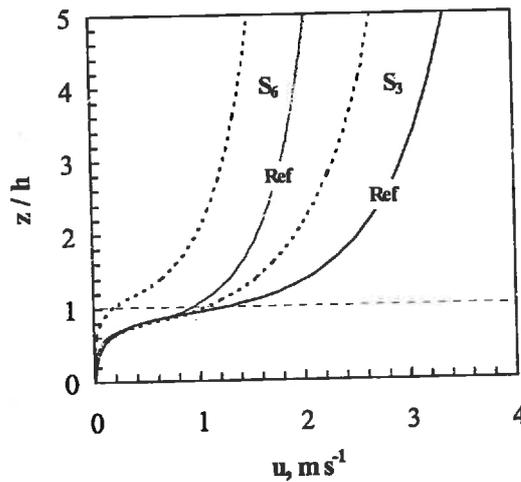


Figure V.21. Profils de vitesse moyenne du vent correspondant aux résultats de la Figure V.20. La même légende est utilisée. Pour la série  $S_3$ , le profil modifié est différent de la référence uniquement au-dessus du couvert, tandis que pour la série  $S_6$ , il est également différent dans le couvert, à cause d'une variation de  $d$ .

L'effet du coefficient d'amortissement du vent dans le couvert  $\xi$  sur la concentration est très faible, lorsque  $\xi$  varie d'un facteur 10. L'effet est le plus important dans le couvert, et il est quasiment nul lorsque de  $z/h \geq 2$ . Lorsque  $\xi$  augmente, la concentration dans le couvert décroît et inversement.

### V.5.3.2 Sensibilité à $\sigma_w$ et $\sigma_u$

L'écart-type des composantes de la vitesse du vent,  $\sigma_w$  et  $\sigma_u$ , sont des paramètres essentiels du modèle. Nous avons en effet vu dans le Chapitre II qu'en conditions gaussiennes et homogènes la diffusivité turbulente  $K_z$  est proportionnelle à  $\sigma_w^2$  et  $T_{Lw}$  (Eqn. II.22). Nous constatons en effet sur la Figure V.22 que la concentration simulée est très sensible à  $\sigma_w$ . Une variation de 40% de  $\sigma_w$  engendre une variation de la concentration d'un facteur 2 à 12 m de la source et quasiment d'un facteur 3 à 37 m.

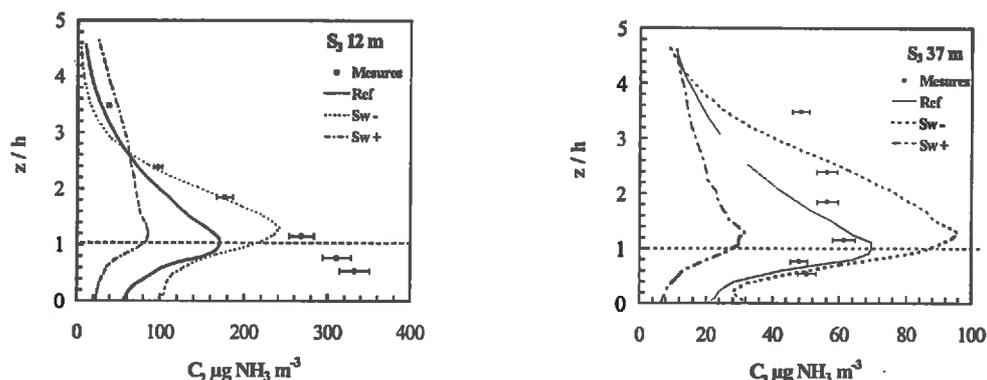


Figure V.22. Influence de  $b_w$  sur la concentration à 12 et 37 m en aval de la source pour la série  $S_3$ . Les résultats sont comparables pour la série  $S_6$ . Le coefficient  $b_w$  est défini par  $\sigma_w = b_w u_*$  au-dessus du couvert. Dans la légende, Sw- correspond à  $b_w = 0.8$ , et Sw+ à  $b_w = 1.8$ , la valeur usuelle étant  $b_w = 1.25$ .

Du fait de la diffusivité accrue lorsque  $\sigma_w$  augmente, la concentration diminue à la hauteur de la source et augmente plus vite au-dessus. En d'autres termes, avec le formalisme de la diffusion, une diffusivité accrue a tendance à atténuer plus rapidement le gradient vertical de concentration. On note toutefois que le concept de diffusivité n'est pas valable dans le couvert car les gradients sont relativement inchangés quand  $b_w$  passe de 1.25 à 0.8.

Il pourrait être inquiétant de constater une telle sensibilité, qui par ailleurs croît avec la distance à la source. Mais nous avons vu dans le Chapitre II, ainsi qu'au cours de nos mesures (Tableau IV.7), que la relation entre  $\sigma_w$  et  $u_*$  semble être l'une des caractéristiques les plus constantes de la couche limite de surface. Quel que soit le type de surface, et la stratification thermique de l'atmosphère, près de la surface  $b_w$  est invariant autour de 1.1-1.5 (Tableau II.1 ; Figure II.9). Les perturbations liées aux grandes échelles, comme la convection, ou l'effet du relief se retrouvent sur  $\sigma_u / u_*$  et  $\sigma_v / u_*$  (McNaughton et Laubach, 1998), qui présentent en général une variabilité plus grande que  $\sigma_w / u_*$  (Tableau II.1 ; Figure II.9 ; Figure IV.18). Cela n'est vérifié que près de la surface, et plus en altitude, lorsque la surface ne limite plus le nombre de degrés de liberté du vent, la stabilité influe sur  $\sigma_w$  de façon significative (Luhar et Britter, 1989). Mais comme les sources d'ammoniac sont situées près de la surface notre remarque tient. L'effet de  $\sigma_u$  sur la concentration est bien moins important que celui de  $\sigma_w$ . L'effet à 12 et 37 m est généralement inférieur à 10% au maximum. Globalement  $\sigma_u$  agit dans le même sens que  $\sigma_w$  : la dispersion est accrue lorsque  $\sigma_u$  augmente, et inversement.

### V.5.3.3 Sensibilité à la paramétrisation de $T_{Lw}$ ou $\varepsilon(z)$

L'échelle de temps lagrangienne, ou  $C_0 \varepsilon(z)$ , ce qui du point de vue de la modélisation est équivalent, caractérisent la turbulence aux petites échelles. Ils jouent à ce titre un rôle essentiel. Mais leur détermination est problématique car ils caractérisent des variables lagrangiennes qui sont par essence inaccessibles à la mesure puisque nous ne savons mesurer que des statistiques eulériennes en des points fixes. Ces paramètres,  $T_{Lw}$  et  $C_0$ , sont donc en général estimés en calant des modèles sur des mesures expérimentales utilisant des traceurs passifs (Du, 1997)

La Figure V.23 montre l'influence d'une diminution de  $C_0$  d'un facteur 2 sur le profil de concentration à 12 et 37 m en aval de la source. Globalement, l'effet est de diminuer la concentration à hauteur de la source, de 30% au maximum. En vertu de l'Eqn. II.22, la diffusivité turbulente augmente proportionnellement à  $T_{Lw}$ , ce qui explique la diminution de concentration à la hauteur de la source.

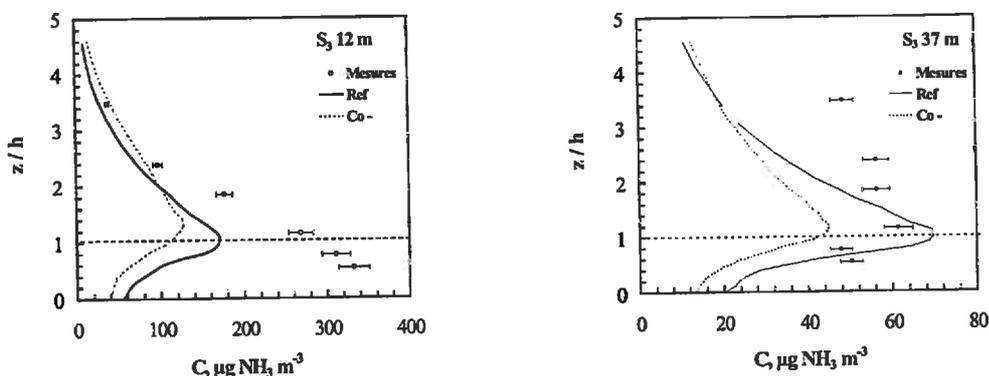


Figure V.23. Influence du paramètre de structure lagrangien  $C_0$  sur la concentration à 12 m et 37 m en aval de la source pour la série  $S_3$ . On obtient des résultats comparables pour la série  $S_6$ . Dans la légende, Co- correspond à  $C_0 = 1.5$ , soit deux fois moins que la sa valeur de référence.

Dans le Chapitre III, Eqn. III.64, nous présentons une méthode différente qui permet de définir  $\varepsilon(z)$  dans le couvert à partir de sa composante interne isotrope  $\varepsilon_I$ , et de l'accroissement engendré par le frottement sur les feuilles  $\varepsilon_d(z)$  (Ayotte *et al.* 1999). La méthode utilisée jusqu'à maintenant repose sur la définition de  $\varepsilon(z)$  au-dessus du couvert, et  $T_{Lw}$  dans le couvert (Eqns. III.60-III.63). Pratiquement la nouvelle approche entraîne des valeurs de  $T_{Lw}$  plus faibles au sommet du couvert, et plus fortes en bas mais ne modifie pas  $T_{Lw}$  au-dessus (Figures III.6 et III.7). La Figure V.24 compare les deux approches.

On constate que dans un cas l'effet est important ( $S_3$ ), et dans l'autre non ( $S_6$ ). En effet, la simulation avec le terme  $\varepsilon_d(z)$  additionnel engendre des concentrations accrues à 12 m dans le couvert pour la série  $S_3$ . Encore une fois, la différence de réponse du modèle entre les deux séries s'explique par la hauteur de la source. Le terme  $\varepsilon_d(z)$  est nul au-dessus du couvert puisqu'il est induit par le feuillage. Donc les deux paramétrisations sont identiques au-dessus

du couvert, ce qui explique pourquoi l'effet est confiné au couvert. Or la source  $S_3$  est dans le couvert et  $S_6$  est au-dessus. Par ailleurs, l'effet de  $T_{Lw}$  est surtout important autour de la source, et donc la source localisée au-dessus du couvert n'est que très peu influencée par le changement de paramétrisation. A 37 m de la source, l'effet observé à 12 m s'estompe pour la série  $S_3$ .

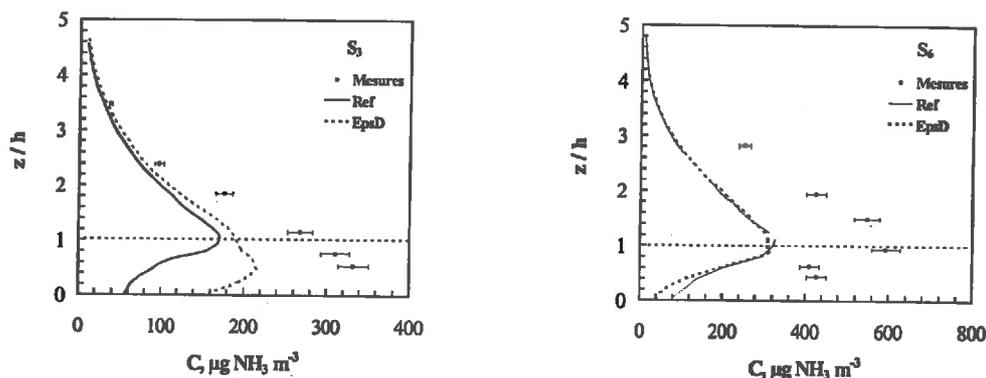


Figure V.24. Influence de la prise en compte du terme  $\varepsilon_d$  dans le couvert, sur la concentration à 12 m en aval de la source pour les séries  $S_3$  et  $S_6$ . L'effet est plus important quand la source est dans le couvert ( $S_3$ ). A 37 m de la source, l'effet est quasi nul. Dans la légende EpsD signifie  $\varepsilon_d$ .

#### V.5.3.4 Effets sur les dépôts

Nous n'avons pas présenté jusqu'ici de résultats concernant l'absorption car nous nous attachions à comprendre les processus à l'origine des variations de concentration observées. Comme nous venons de le voir, les paramètres du modèle de dispersion influent fortement sur les profils de concentration en aval de la source. Le dépôt étant proportionnel à la concentration dans le couvert, la quantité absorbée se trouve donc également affectée.

Nous allons maintenant montrer de façon succincte l'effet des paramètres les plus influents sur les profils verticaux de quantité d' $\text{NH}_3$  absorbée à 12 et 37 m. Nous avons retenu comme paramètres représentatifs, le pas de temps  $\Delta t$  (Figure V.19), l'écart-type de la composante verticale de la vitesse  $\sigma_w$  (Figure V.22), le paramètre de structure lagrangienne  $C_0$  (Figure V.23), et la prise en compte du terme de dissipation additionnel  $\varepsilon_d(z)$  (Figure V.24). Nous observerons également l'effet du coefficient d'amortissement du vent dans le couvert  $\xi$ , car celui-ci agit à la fois sur la concentration et sur  $r_b$ .

Les Figures V.25a,b,c,d montrent l'effet de chacun de ces paramètres sur l'absorption à 12 m dans le cas de la série  $S_3$ . L'effet à 37 m est qualitativement comparable. Les effets sont en général importants, et varient de 50% (Figure V.25d) à plus d'un facteur 3 (Figure V.25c). L'effet le plus important est celui entraîné par la prise en compte de  $\varepsilon_d(z)$  puis les variations de  $\sigma_w$ , et le plus faible est celui entraîné par une diminution de  $C_0$ . Le fait que la paramétrisation de  $\varepsilon(z)$  entraîne les plus grandes variations met en avant l'importance de ce paramètre dans la modélisation lagrangienne du dépôt.

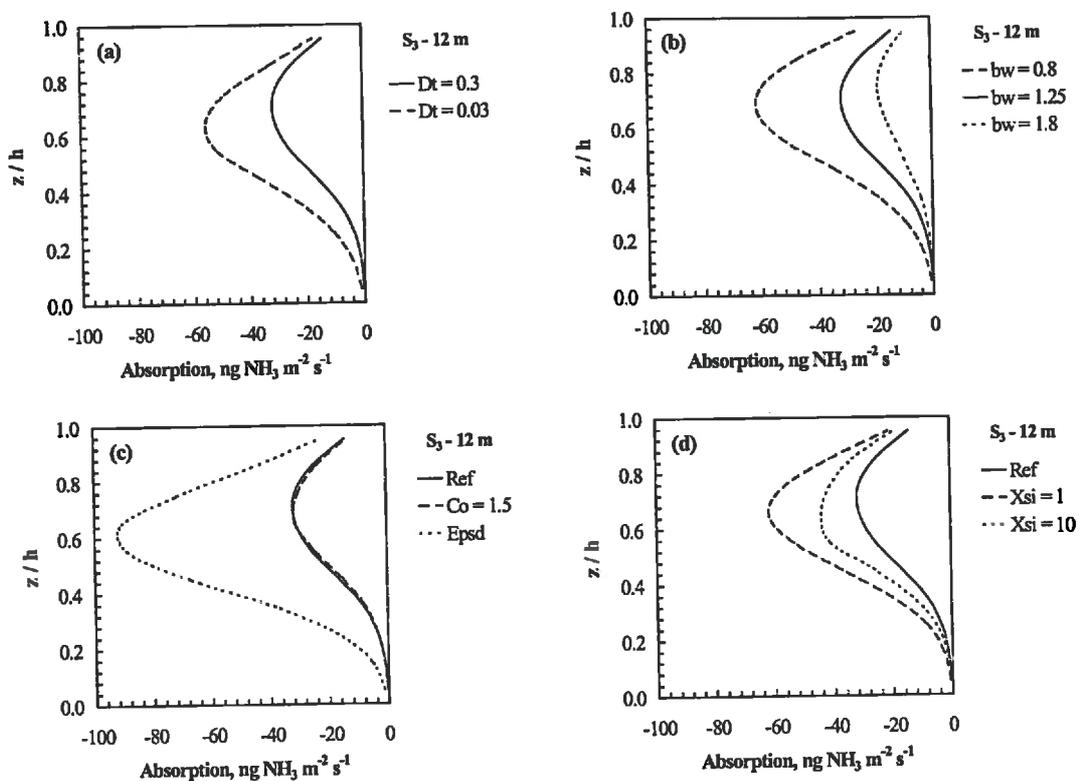


Figure V.25. Influence (a) du pas de temps  $\Delta t$ , (b) de  $\sigma_w$ , (c) de  $C_0$  et  $E_d(z)$  et (d) de  $\xi$ , sur l'absorption dans le couvert à 12 m en aval de la série S<sub>3</sub>. Légende :  $\Delta t = \Delta t$ ,  $bw = \sigma_w / u^*$ ,  $Co = C_0$ ,  $Epsd = E_d$ , et  $Xsi = \xi$ . Dans la référence  $\xi = 5$  (Tableau V.3).

Sur la Figure V.25d on voit que le paramètre  $\xi$  n'a qu'un effet limité sur l'absorption puisqu'il entraîne des variations de l'absorption d'environ 30% lorsqu'il varie d'un facteur 10. Par ailleurs,  $\xi = 1$  et  $\xi = 10$  entraînent dans les deux cas une augmentation des dépôts. Une explication possible est que lorsque  $\xi$  est élevé ( $\xi = 10$ ), la vitesse du vent dans le couvert est faible, et la concentration élevée, donc le dépôt aussi. Quand  $\xi$  est très faible ( $\xi = 1$ ), la vitesse dans le couvert est élevée, et la concentration est donc faible. Mais dans le même temps, la résistance de couche limite  $r_b$  qui est proportionnelle à  $\bar{u}^{-1/2}$  diminue de telle sorte que le dépôt augmente.

Toutefois, notre formulation de  $r_b$  (Tableau III.1) prend également en compte  $\sigma_u$ , à travers le facteur de correction proposé par Finnigan et Raupach (1987). Cela a pour conséquence que  $r_b$  est proportionnel à  $\bar{u}^{1/2}$  et non  $\bar{u}^{-1/2}$  lorsque  $\bar{u} \ll \sigma_u$  (Tableau III.1), ce qui est le cas au milieu du couvert lorsque  $\xi = 10$ . Cela a pour conséquence de diminuer  $r_b$  en milieu de couvert là où la formulation classique en  $\bar{u}^{-1/2}$  trouverait des valeurs plus élevées. Il faut toutefois noter que notre formulation de  $r_b$  n'est pas validée, et qu'elle n'est peut-être pas justifiée lorsque  $\xi$  est élevé.

#### V.5.4 Sensibilité aux paramètres du couvert et du microclimat

Comme nous l'avons vu ci-dessus, les paramètres de la dispersion ont un effet important sur la

concentration en aval de la source et par voie de conséquence sur le dépôt (sauf pour  $\xi$  comme nous venons de le discuter). Nous avons donc discuté en premier lieu les profils de concentration, qui sont à l'origine des variations de dépôts puis l'effet engendré sur les dépôts.

Ici c'est le contraire : les paramètres du couvert et du microclimat ont un effet sur l'absorption qui peut à son tour engendrer des modifications des profils de concentration. Nous allons donc en premier lieu discuter les *profils verticaux d'absorption* dans le couvert et ensuite leur effet sur les profils de concentration.

#### V.5.4.1 Sensibilité à la distribution de surface foliaire

La Figure V.26 montre l'effet de la paramétrisation de la distribution de la surface de feuille donnée par l'Eqn. III.84 pour la série  $S_3$ . Les résultats sont qualitativement identiques pour la série  $S_6$ . Trois distributions d'écart-types différentes sont présentées ( $\sigma_a / h = 0.1, 0.2$  et  $0.3$ ) et l'effet de la hauteur du maximum de surface foliaire est également montré. La Figure V.27 montre les distributions de surface foliaire simulées. Noter que, dans le modèle, les caractéristiques de la turbulence ne sont pas affectées par ces paramètres car ils ne dépendent que du LAI.

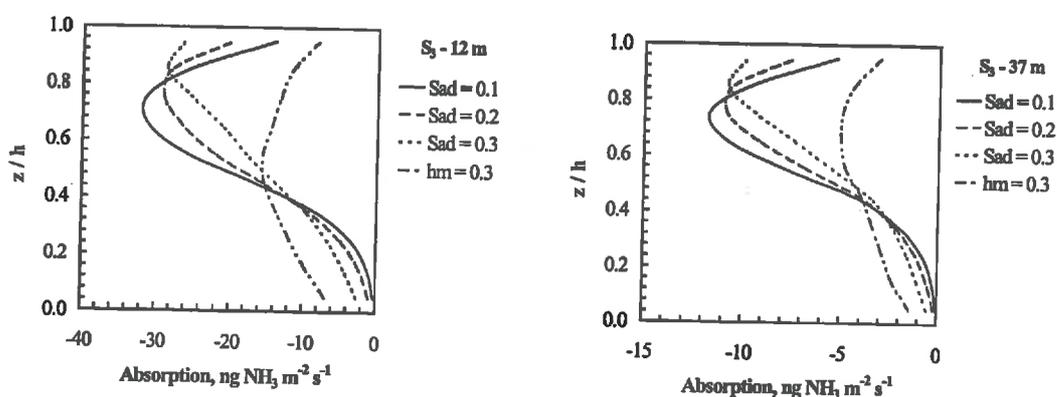


Figure V.26. Influence de la distribution de surface foliaire sur les profils verticaux d'absorption en aval de la source pour la série  $S_3$ . Le LAI est de 3.0, et la hauteur du maximum de surface foliaire  $h_m = 0.6 h$ , sauf si spécifié dans la légende. Légende :  $Sad = \sigma_a / h$  où  $\sigma_a$  est l'écart-type de la distribution de surface de feuille dans le couvert définie par l'Eqn. III.84.  $h_m = 0.3$  correspond à  $h_m = 0.3 h$ . Les profils de surface foliaires sont présentés dans la Figure V.27.

On voit sur la Figure V.26 que l'absorption reste globalement identique mais que le maximum se déplace vers le haut lorsque  $\sigma_a$  augmente. Les différences sont typiquement de 20% du maximum de surface foliaire, et le dépôt total ne varie que de 2% entre les 3 séries. La source étant située au sommet du couvert, lorsque  $\sigma_a$  augmente, il y a plus de dépôt car la distance moyenne source - puits est moins grande.

Lorsque  $h_m$  diminue, le profil de surface foliaire change considérablement (Figure V.27), et l'influence se fait sentir sur la distribution des dépôts (Figure V.26). Globalement la quantité déposée se trouve diminuée d'environ 30%, que ce soit à 12 m, ou à 37 m en aval de la source. De plus le dépôt maximum se situe plus bas.

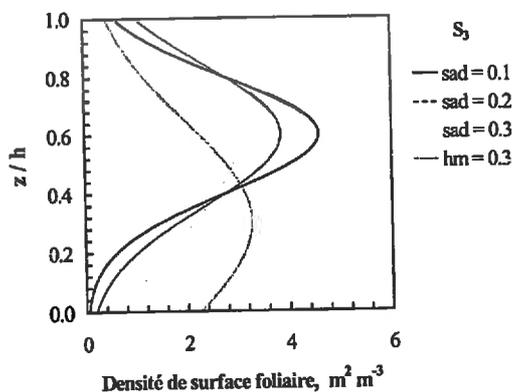


Figure V.27. Profils de densités de surface foliaire utilisés pour simuler les résultats de la Figure V.26.

Ces résultats montrent que la répartition de la surface foliaire est un paramètre important pour le dépôt, mais surtout en relation avec la localisation des sources. Il faut cependant pondérer ces résultats du fait qu'aucun effet de la répartition des feuilles n'est pris en compte dans le modèle de dispersion, alors que notamment la vitesse moyenne du vent est directement liée à la répartition de surface foliaire (Massman *et al.*, 1996; Massman et Weil, 1999).

#### V.5.4.2 Sensibilité à la paramétrisation de $r_s$ et $r_w$

A quelques dizaines de mètres de la source où la concentration dans le couvert est de quelques dizaines de  $\mu\text{g NH}_3 \text{m}^{-3}$ , l'effet de la résistance stomatique et de la résistance cuticulaire sur les dépôts est comparable. Il faudrait en effet que la concentration en  $\text{NH}_3$  dans l'air soit du même ordre que le point de compensation pour que les effets se différencient. Ici le point de compensation est de  $11 \mu\text{g NH}_3 \text{m}^{-3}$  dans la série  $S_3$ . Nous ne montrons donc uniquement que l'influence de  $r_s$ , tout en sachant que le résultat peut être transposé à  $r_w$  (Figure V.28).

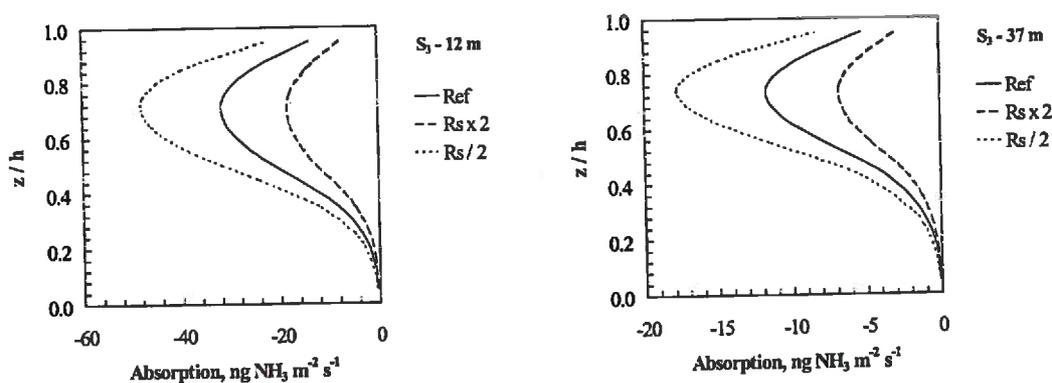


Figure V.28. Influence de la paramétrisation de la résistance stomatique  $r_s$  sur les dépôts. Légende : Ref,  $r_{smin} = 225$ ;  $R_s \times 2$ ,  $r_{smin} = 500$ , et  $R_s / 2$ ,  $r_{smin} = 112$ .

On voit sur la Figure V.28 que les variations de dépôt sont du même ordre que les variations de  $r_{smin}$  à 12 m comme à 37 m. L'effet de  $r_{wmin}$  est identique si le point de compensation est nul.

### V.5.4.3 Sensibilité à la paramétrisation de $r_b$

Nous avons introduit une nouvelle paramétrisation de  $r_b$  qui prend en compte le régime de convection libre susceptible d'exister dans le couvert entre les périodes de balayage (Eqn. III.73). Nous testons ici l'effet de la prise en compte cette paramétrisation sur les quantités absorbées par le couvert.

Trois paramètres sont testés, la valeur de  $Re_c$  (Tableau III.1), l'écart de température entre l'air et la feuille  $\Delta T$ , et l'humidité relative  $HR$  qui agissent tous deux sur le nombre de Grashof, et donc sur  $r_b$ . Enfin, l'effet de la prise en compte du facteur correctif proposé par Finnigan et Raupach (1987) (Tableau III.1) sur les dépôts est également étudié.

La Figure V.29a montre (i) les profils de résistance de couche limite de feuille obtenue avec l'Eqn. III.73, et le Tableau III.1 (Modèle), (ii) ceux obtenus avec les expressions usuelles (Landsberg et Thom, 1971), ne prenant en compte ni la convection libre, ni la correction de Finnigan et Raupach (1987) (L&T), et enfin (iii) la formulation de Finnigan et Raupach (1987; Tableau III.1, colonne de gauche) (F&R).

Il apparaît que notre formulation (Modèle) est comprise entre les deux autres formulations : elle donne des valeurs proches de celles de Finnigan et Raupach (1987) au sommet du couvert, et à peu près deux fois supérieures près du sol. Ceci s'explique par le fait que la résistance en régime de convection libre est supérieure à celle en convection forcée, pour les conditions de températures rencontrées dans le couvert. Cette formulation donne toutefois des valeurs très inférieures à celles utilisées classiquement (L&T). La différence est d'un facteur trois en haut du couvert et d'un facteur supérieur à 10 près du sol (Figure V.29a).

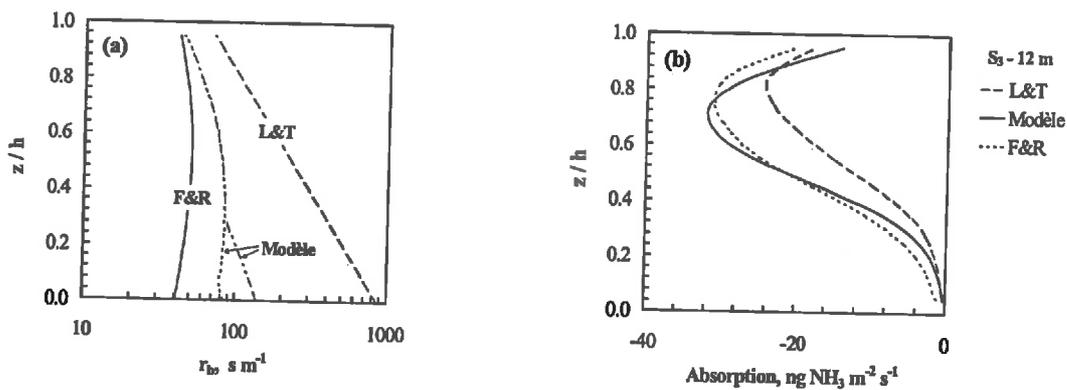


Figure V.29. (a) Profils de résistance de couche limite de feuille,  $r_b$ , calculés à partir de différentes formulations, et (b) effets de ces paramétrisations sur les dépôts à 12 m (série S3). Légende : F&R, paramétrisation de Finnigan et Raupach (1987); L&T, paramétrisation usuelle (Landsberg et Thom, 1971); Modèle, paramétrisation utilisée dans le modèle.

La paramétrisation de  $r_b$  influe fortement sur les dépôts à 12 m, comme le montre la Figure V.29b. Notamment, la paramétrisation classique de Landsberg et Thom (1971) en  $u^{-1/2}$  induit des dépôts inférieurs de près de 30% à ceux estimés avec les autres méthodes. Celle de

Finnigan et Raupach (1987) est légèrement supérieure à celle de notre modèle de quelques %. L'effet serait encore plus important si la source était située au niveau du sol.

### V.5.5 Conclusions sur la sensibilité du modèle

Le Tableau V.4 reprend les résultats discutés ci-dessus. Pour chaque paramètre, la gamme de variation simulée est reportée. L'ordre de grandeur des effets sur les profils de concentration et les profils d'absorption à 12 m est donné, avec le sens de variation des dépôts lorsque le paramètre considéré augmente. Nous avons également reporté la variation de dépôts cumulés sur 40 m par rapport à la référence (pourcentage). Ceux-ci s'élèvent respectivement à 1.2% et 0.8% du débit de source pour les séries S<sub>3</sub> et S<sub>6</sub> respectivement.

Tableau V.4. Sensibilité du modèle aux différents paramètres. La gamme de variation est donnée pour chaque paramètre. L'effet maximal sur la concentration et sur le dépôt à 12 m est aussi donné, ainsi que le sens de variation lorsque le paramètre considéré augmente. Les doubles flèches indiquent que les deux sens de variation sont possibles. L'effet sur les dépôts cumulés à 40 m est également donné en % de variation par rapport à la référence. Les dépôts cumulés sur 40 m s'élèvent respectivement à 1.2% et 0.8% des quantités émises pour les séries S<sub>3</sub> et S<sub>6</sub>.

Paramètre étudié	Gamme de variation	Effet maximal sur la concentration à 12 m	Effet maximal sur le dépôt à 12 m	Sens de variation des dépôts lorsque le Paramètre augmente	Effet global sur le dépôt cumulé à 40 m (S <sub>3</sub> et S <sub>6</sub> )
		(%)	(%)		(%) <sup>2</sup>
$\Delta t$	0.03 - 0.3	20 - 50%	50%	↓	-18% -43%
1D-2D	-	10%	10%	↓	-10% -14%
$\xi$	1 - 10	< 10%	50%	↑	+6% +9%
$z_0, d$	fact. 2	10 - 20%	20%	↓↑ <sup>1</sup>	+3% +35%
$b_u$	1 - 5	10%	10%	↓	-19% -30%
$b_w$	0.8 - 1.8	200 %	200%	↓	+75% -48%
$C_0$	fact. 2	30%	-	↑	+22% +3%
$\varepsilon_d$	avec - sans	100%	300%	↑	+63% +19%
$\sigma_s$	0.1 - 0.3	-	< 10%	↓	-1% -1%
$h_m$	0.3 - 0.6	-	30%	↑	+26% +27%
$r_{smin}$	fact 2.	-	100%	↑	+95% +92%
$r_{wmin}$	fact 2.	-	100%	↑	+90%
$r_b$ (F&R)	fact. 2	-	< 10%	↑	
$r_b$ (L&T)	fact. 10	-	30%	↓	-32% -26%

<sup>1</sup> Les dépôts peuvent varier dans les deux sens. <sup>2</sup> En pourcentage de variation par rapport à la référence.

On note que globalement, les effets observés à 12 m de la source se retrouvent sur le dépôt cumulé, avec une atténuation différente selon les cas, qui permet de présager des effets à plus grande distance.

On voit dans le Tableau V.4 que les quatre paramètres qui ont le plus d'influence sur les dépôts sont, par ordre décroissant,  $r_{smin}$ ,  $r_{wmin}$ ,  $\varepsilon_d$  dans la série S<sub>3</sub>, et  $b_w$  dans les deux séries.  $r_{smin}$  et  $r_{wmin}$  sont des paramètres liés à la plante et au microclimat (pour  $r_{wmin}$  surtout). Ils agissent directement sur les dépôts mais ne modifient que très peu la concentration dans les premières dizaines de mètres en aval de la source. Cela montre l'importance qu'il faut accorder à ces paramètres dans l'étude des dépôts locaux. Mais cela indique également qu'il serait possible, en première approximation, d'utiliser de simples modèles de dispersion pour estimer

les dépôts, puisque la concentration prédite par ceux-ci n'est pas affectée par les dépôts.

A l'inverse,  $\varepsilon_d$  et  $b_w$  sont des paramètres de l'écoulement, et leur action sur les dépôts passe par une modification de la concentration. Toutefois, l'effet de  $b_w$  est sans doute peu représentatif de la réalité, car nous avons vu dans les chapitres II et IV qu'il était peu variable. En revanche, l'effet de  $\varepsilon_d$  est intéressant à deux titres : (i) il montre que la paramétrisation de  $\varepsilon(z)$  (ou  $T_{Lw}$ ) dans le couvert est un problème délicat qui nécessiterait encore des recherches, et (ii) il montre que la dispersion initiale du panache est essentielle, puisque l'effet de  $\varepsilon_d$  est trois fois plus important dans la série  $S_3$  que dans la série  $S_6$ . Ce dernier point indique également que la position exacte de la source lorsque celle-ci est située au sommet du couvert est un facteur clé du dépôt, puisqu'elle va déterminer les caractéristiques de la dispersion initiale.

Hormis ces 4 paramètres, dont l'effet sur les dépôts cumulés à 40 m est supérieur à 50%, les autres paramètres dont l'effet est compris entre 25% et 50% sont par ordre décroissant :  $\Delta t$  ( $S_6$ ),  $d$  ( $S_6$ ),  $r_b$  ( $S_3$  et  $S_6$ ),  $b_u$  ( $S_6$ ) et  $h_m$  ( $S_3$  et  $S_6$ ). Excepté le pas de temps qui est un paramètre d'intégration numérique, ces paramètres sont liés au couvert et à l'écoulement. Par exemple,  $d$  et  $b_u$ , varient essentiellement sous l'action de perturbations aux conditions homogènes. Or on voit qu'ils ont un effet plus important sur les dépôts quand la source est placée nettement au-dessus du couvert ( $S_6$ ) que quand celle-ci est placée à son sommet ( $S_3$ ). Cela confirme en quelque sorte les observations faites dans le chapitre IV sur les perturbations des spectres de puissances (Figure IV.18). Cela indique donc que les perturbations d'un écoulement ont plus d'impact sur les dépôts lorsque la source est nettement au-dessus du couvert que lorsqu'elle est en son sein. Il est intéressant de voir que la paramétrisation de  $r_b$  modifie fortement les dépôts. Cela montre qu'il est important d'affiner sa paramétrisation.

## V.6 Conclusions

(1) La validation du modèle apporte des conclusions contrastées. Le modèle simule bien les concentrations sur prairie dans le cas de *Burrington Moor*, mais pas dans le cas *Bretagne98*. Dans ce dernier cas, un biais systématique apparaît : la concentration est sous estimée près de la source, et surestimée plus loin en aval. Le même biais se retrouve sur les données *Davron97*, mais il est encore plus accentué : la concentration est sous-estimée d'environ un facteur 2 à 12 m de la source, et elle est surestimée d'un facteur 2 à 150 m de la source.

La longueur des sources lignes utilisées dans *Davron97* et *Bretagne98* était de 200 et 100 m respectivement, alors que dans *Burrington Moor*, elle était de plus de 400 m de longueur. Cette faible longueur dans *Davron97* et *Bretagne98* peut expliquer, en relation avec la direction moyenne du vent, pourquoi la concentration est surestimée en aval de la source. La sous estimation près de la source dans *Davron97* serait plutôt liée à la non-homogénéité de la source. Les fluctuations horizontales du vent engendrées par la topographie dans *Davron97* (Figure IV.18) et la présence d'un champ de maïs à proximité du site expérimental dans *Bretagne98* pourraient également avoir engendré une forte composante turbulente du flux

horizontal qui n'est pas prise en compte dans le modèle.

(2) L'étude de sensibilité montre que les paramètres qui ont le plus d'influence sur la concentration à proximité directe de la source sont : (i)  $b_w$ , qui lorsqu'il augmente de 50% entraîne une diminution de la concentration locale de 100%, et inversement, (ii)  $\varepsilon_d$  (dissipation par frottement sur le couvert), qui lorsqu'elle est prise en compte entraîne une augmentation de la concentration d'environ 100%.

Concernant le dépôt à proximité de la source, ce sont les résistances  $r_{smin}$  et  $r_{wmin}$  qui lorsqu'elles sont multipliées par 5 entraînent une diminution du dépôt d'environ 100%. Viennent ensuite  $b_w$  et  $\varepsilon_d$  qui engendrent des variations du dépôt de 75% et 60% respectivement pour les mêmes variations qu'indiquées ci-dessus. La paramétrisation de  $r_b$  entraîne quant à elle des variations du dépôt d'environ 30%.

L'étude de sensibilité met donc en avant la forte sensibilité (i) du modèle de dispersion à la paramétrisation de  $\varepsilon(z)$  (ou de  $T_{Lw}$ ), et de  $\sigma_w$  et (ii) du modèle d'échange aux paramètres  $r_{smin}$  et  $r_{wmin}$ . Parmi ces paramètres,  $\sigma_w$  est sans doute celui qui est le mieux défini dans la CLS. L'incertitude sur  $r_{smin}$  est importante et elle engendrera nécessairement une forte incertitude sur le modèle. Toutefois, concernant  $r_s$ , sa paramétrisation en fonction de  $r_{smin}$  est mieux étudiée que  $r_w$ . Ainsi l'incertitude générée par  $r_{wmin}$  est sans doute potentiellement la plus grande. Enfin, la paramétrisation de  $\varepsilon(z)$  ou le choix de  $T_{Lw}$  dans le couvert est également un problème difficile, mais qui est très important dans la modélisation de dépôt local, si la source est située près du sommet du couvert.

## V.7 Bibliographie

- Ayotte K.W., Finnigan J.J., Raupach M.R., 1999: A second-order closure for neutrally stratified vegetative canopy flows. *Boundary-Layer Meteorol.*, **90**: 189-216.
- Csanady G.T., 1980: Turbulent diffusion in the environment. *Geophysics and Astrophysics Monographs*, D. Reidel Publishing Co., Dordrecht, The Netherland, 248pp.
- Delécolle, R., Loubet B., Tchamitchian M., 1996: Calibration, sensibilité, validation des modèles. In *Actes de l'école chercheurs INRA en Bioclimatologie, Le Croisic, 25-29 mars 1996, Tome 2*, Ed. Dépt. Bioclimatologie INRA, 490 pp.
- Draaijers G.P.J., van Ek R., Bleuten W., 1994 : Atmospheric demposition in complex forest landscapes. *Boundary-Layer Meteorol.*, **69**: 343-366.
- Du S., 1997: Universality of the lagrangian velocity structure function constant ( $C_0$ ) across different kinds of turbulence. *Boundary-Layer Meteorol.*, **83**: 207-219.
- Finnigan J.J., Raupach M.R., 1987: Transfer processes in plant canopies in relation to stomatal characteristics. In *Stomatal Function*, Eds. E. Zeiger, G.D. Farquhar, I.R., Cowan, Stanford University Press, Stanford :385-429.
- Glorennec P., Jouan M., Le Goaster C., Sauvaget G., Morvan T., Cellier P., Genermont S., Masson S., Loubet B., 1999: Evaluation du risque sanitaire lié aux epositon s environnementales à l'ammoniac atmosphérique en zone rurale. Rapport de la Cellule Inter Régionale d'Epidémiologie (CIRE).
- Hill R.A., Ross C.A., Pain B.F., Jarvis S.C., Espenhahn S.E., Lee D.S., Milford C., Sutton M.A., 1998: Coarse and fine temporal resolution estimation of ammonia emission from slurry spreading at the ADEPT

- Burrington Moor* experiment. In *Ammonia Distribution and Effects Project (ADEPT). Distribution, deposition, and environmental impacts of ammonia emitted by the agriculture*. Volume 2: Final Report on WA0613 to MAFF. ITE Edinburgh.
- Landsberg J.J., Thom A.S., 1971: Aerodynamic properties of a plant of complex structure. *Quart. J. R. Met. Soc.*, **97**: 565-570.
- Luhar A.K., Britter R.E., 1989: A random walk model for dispersion in inhomogeneous turbulence in a convective boundary layer. *Atmos. Env.*, **23**(9): 1911-1924.
- MacNaughton, Météo 1999
- Massman W.J., 1996: An analytical one-dimensional model of momentum transfer by vegetation of arbitrary structure. *Boundary-Layer Meteorol.*, **83**: 407-421.
- Massman W.J., Weil J.C., 1999: An analytical one-dimensional second-order closure model of turbulence statistics and the lagrangian time scale within and above plant canopies of arbitrary structure. *Boundary-Layer Meteorol.*, **91**: 81-107.
- McNaughton K.G., Laubach J., 1998: Unsteadiness as a cause of non-equality of eddy diffusivities for heat and vapour at the base of an advective inversion. *Boundary-Layer Meteorol.*, **88**: 479-504.
- Milford C., Sutton M.A., Dragosits U., Harisson R., Moss D., Epenhahn S., Lee D.S., Hill J., Wyers J.P., 1997: Measurements of horizontal gradients of NH<sub>3</sub>, and NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, downwind of slurry spreading. *ADEPT Final Report, Annexes volume 2*.
- Raupach M.R., Finnigan J.J., Brunet Y., 1996: Coherent eddies and turbulence in vegetation canopies: the mixing-layer analogy. *Boundary-Layer Meteorol.*, **78**: 351-382.
- Reynolds A.M., 1998: On the formulation of stochastic models of scalar dispersion within plant canopies. *Boundary-Layer Meteorol.*, **86**: 333-334.
- Shaw R.H., Brunet Y., Finnigan J.J., Raupach M.R., 1995: A wind tunnel study of air flow in waving wheat: two-point velocity statistics. *Boundary-Layer Meteorol.*, **76**: 349-376.
- 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., Ulliyett 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**(S1): 349-361.
- Sutton M.A., Milford C., Dragosits U., Singles R., Fowler D., Ross C., Hill R., Jarvis S.C., Pain B.F., Moss D., Webb J., Espenhahn S., Halliwell C., Lee D.S., Wyers G.P., Hill J., ApSimon H.M., 1997a: Gradient of atmospheric ammonia concentrations and deposition downwind of ammonia emissions: first results of the ADEPT *Burrington Moor* Experiment. In : *Gaseous exchange with grassland systems*. (Eds Pain B.P. and Jarvis S.C.) CAB International.
- Sutton M.A., Milford C., Hargreaves K.J., Dragosits U., Fowler D., Ross C.A., Wyers J.P., 1997b: Exchange of atmospheric ammonia with cut grassland during the *Burrington Moor* Experiment. *ADEPT Final Report, Annexes volume 2*.
- Sutton M.A., Schjørring J.K., Wyers G.P., 1995: Plant-atmosphere exchange of ammonia. *Phil. Trans. Roy. Soc. Lond. A*, **351**: 261-278.
- Thomson D.J., 1987 : Criteria for the selection of stochastic models of particle trajectories in turbulent flows. *J. Fluid Mech.*, **180**: 529-556.
- Van Jaarsveld J.A., 1995: Modelling the long-term atmospheric behaviour of pollutants on various spatial scales. Thèse, Université d'Utrecht, 236 pp.
- Wilson J.D., Flesch T.K., 1993: Flow boundaries in random-flight dispersion models: enforcing the well-mixed condition. *Journal of Applied Meteorology*, **32**: 1695-1707.



## VI. APPLICATION DU MODELE - DISCUSSION

### Résumé

Afin de mieux comprendre les effets liés au microclimat, à la plante et à la source, sur le dépôt sec local, nous étudions ici l'effet de chacun de ces facteurs successivement. Comme ces facteurs sont liés entre eux à travers l'évolution saisonnière et diurne du climat, leur effet couplé est ensuite étudié en se basant sur des données météorologiques.

Dans un premier temps, nous étudions l'effet de la hauteur du couvert ( $h$ ) et de la source ( $h_s$ ) sur le dépôt cumulé à 250 m en aval d'une source ligne. Deux hauteurs de sources ( $h_s = 0$  et 3 m, fixes par rapport au sol) et quatre hauteurs de couvert ( $h = 0.1, 0.6, 1.0, \text{ et } 2.5$  m) sont simulées. Les résultats montrent que le dépôt cumulé à 250 m augmente avec la hauteur du couvert. Lorsque la source est dans le couvert ( $h_s = 0$  m) il augmente de 2% à 5% des émissions quand  $h$  passe de 0.1 m à 2.5 m. Lorsque la source est au-dessus ( $h_s = 3$  m), il passe d'environ 8 à 12% pour les mêmes variations de  $h$ . Ces résultats s'expliquent par la variation de la distance moyenne entre la source et le couvert.

Dans un second temps, nous étudions les effets de la vitesse moyenne du vent ( $\bar{u}$ ), de la stratification thermique de l'air à travers la longueur de Monin et Obukhov ( $L$ ), et de la résistance stomatique du couvert ( $R_s$ ), sur le dépôt cumulé à 50 m de la source, celle-ci étant située au sommet du couvert. Dans ce cas, le dépôt cumulé diminue d'un facteur 1.5 environ lorsque le vent est multiplié par 2. Ce résultat s'explique par un accroissement de la diffusivité turbulente lorsque  $\bar{u}$  augmente entraînant une diminution de la concentration de surface et donc du dépôt. Pour les mêmes raisons, lorsque la stratification est instable, le dépôt diminue, mais de façon moins importante, et conditions stables il diminue également. Les dépôts cumulés sont par ailleurs quasiment proportionnels à la conductance stomatique, mais celle-ci n'a pas d'effet sur la concentration. Une estimation de la capacité maximale d'absorption du couvert suggère cependant que très près de la source, les dépôts estimés engendrent une saturation du couvert à plus ou moins long terme.

Les facteurs liés au climat et au couvert sont souvent corrélés. Par exemple la résistance stomatique est souvent maximale lorsque la stratification thermique est stable (nuit) et inversement (jour). Nous avons donc étudié l'impact du climat et de la plante, en intégrant des couplages entre variables d'entrée du modèle. Pour cela, nous avons utilisé les données horaires de deux stations météorologiques correspondant à des climats contrastés (Avignon et Rennes) sur l'année 1998. Pour connaître l'influence du couvert, nous avons choisi deux types de couverts végétaux de structures très différentes (maïs et forêt de chêne). Afin de prendre en compte l'effet du climat sur le développement de la plante, nous avons utilisé des modèles simplifiés de croissance de plante. Enfin, les données micrométéorologiques ( $u_s$  et  $L$ ) ont été estimées pour chaque type de végétation avec un modèle de bilan d'énergie. Le dépôt sec cumulé à 400 m de la source a été simulé en considérant une source émettant d'une plage de hauteur située entre 4 et 5 m, donc située dans le couvert de forêt et au-dessus de celui de maïs. Son débit est constant et équivalent à celui d'un bâtiment d'élevage :  $4000 \text{ kg a}^{-1}$ .

Les résultats montrent que  $R_w$  et  $C_s$  varient d'un facteur 2 à 3 entre Rennes et Avignon (en 1998), à cause des différences de température de couvert et d'humidité de l'air. Les dépôts cumulés à 400 m sur forêt varient entre 2% en hiver lorsque seuls le tronc et les branches sont des sites de dépôt, et 15% en été lorsque le LAI est maximal. Sur maïs, ils varient entre 0.2 et 1.5%. La différence observée entre forêt et maïs peut être principalement attribuée à la hauteur de la source par rapport au couvert.

Globalement, au cours d'un cycle diurne, les dépôts sur forêt sont maximums la nuit en climat tempéré et le jour en climat sec. Il ressort de cette étude que le contrôle des flux est d'origine stomatique en climat sec et cuticulaire en climat humide. Il en ressort également que les paramètres les plus sensibles aux variations du climat sont aussi ceux les moins bien connus, nommément  $C_s$  et  $R_w$ .

## VI.1 Introduction

Dans les dépôts secs, il est difficile de découpler les effets liés exclusivement à la plante de ceux liés au climat. Comme nous l'avons en effet vu au Chapitre II, les processus d'échange foliaire sont bien évidemment liés au type de végétation qui détermine, en lien avec son environnement, (climat, sol, pollution, intervention de l'homme), les caractéristiques des échanges gazeux et d'énergie, notamment à travers la résistance stomatique. La végétation agit en retour sur le climat, notamment à travers (i) l'interception du rayonnement, et (ii) le frottement engendré sur l'air. L'effet sur le climat est majeur, puisque la transpiration participe à la régulation de la température de surface, et est une source très importante de vapeur d'eau pour l'atmosphère. L'échange de CO<sub>2</sub> entre la végétation et l'atmosphère est également un processus important auquel la communauté scientifique s'intéresse fortement pour le rôle qu'il joue dans la régulation de la concentration atmosphérique de CO<sub>2</sub> (Seinfeld et Pandis, 1998).

Pour ce qui est de l'ammoniac, d'autres facteurs liés à la plante et au climat jouent un rôle prépondérant. Notamment la chimie à la surface des feuilles (Flécharde et Fowler, 1998), qui dépend (i) de la plante, à travers les cires épicuticulaires, les transferts cuticulaires, la texture de la surface des feuilles qui influe sur les échanges diffusifs / turbulents, et sur la formation de film liquide à la surface (Burkhardt et Eiden, 1994; Burkhardt *et al.*, 1999). Elle dépend aussi (ii) du climat, à travers l'humidité de l'air, la température de l'air, et le rayonnement, mais aussi de la présence d'autres polluants (Wyers et Erisman, 1998).

Il est donc difficile de séparer l'effet du climat de celui de la plante. Nous allons dans cette partie discuter dans un premier temps l'effet des *différents facteurs liés au climat et à la plante*, pris *indépendamment* les uns des autres, puis chercher à comprendre et caractériser leurs interactions à partir de données météorologiques.

## VI.2 Effets distincts des facteurs liés à la plante et au climat sur les dépôts locaux

Les résultats présentés ici sont basés sur deux études; (i) la première sur l'effet de la structure du couvert et de la géométrie de la source sur les dépôts, et (ii) la seconde sur l'effet des conditions climatiques et de la plante sur les dépôts, c'est à dire du vent, de la stabilité, et des résistances cuticulaire et stomatique, ainsi que du point de compensation. La première étude a fait l'objet d'un poster au "10<sup>th</sup> Nitrogen Workshop" à Copenhague (Loubet *et al.*, 1999a), et la seconde a partiellement été présentée aux "ateliers de modélisation de l'atmosphère" (AMA99) à Toulouse (Loubet et Cellier, 1999).

### VI.2.1 Influence de la hauteur du couvert et de la position de la source

Dans cette étude le dépôt à 300 m de la source est estimé pour quatre types de couverts de hauteur différente : Une prairie rase de hauteur  $h = 0.1$  m, une prairie haute ( $h = 0.6$  m), un maïs en phase de croissance ( $h = 1$  m), et un maïs pleinement développé ( $h = 2.5$  m).

### VI.2.1.1 Simulations

Afin de n'étudier que l'effet de la hauteur du couvert, le  $LAI$  est supposé identique et égal à 5 dans l'ensemble des cas. Le  $LAI$  d'une prairie développée est d'environ 5, mais la fraction de feuilles vertes variant de 0 en hiver à 1.5 en été (Ripley et Redmann, 1977). Le maïs développé possède également un  $LAI$  autour de 5, mais le maximum de surface foliaire d'une prairie est localisé près du sol alors que pour le maïs il se situe à environ 2/3 du sommet du couvert. Ces deux couverts ont donc des structures très différentes pour un même  $LAI$ .

La hauteur de déplacement  $d$  et la longueur de rugosité dynamique  $z_0$  sont estimées respectivement comme  $0.7 h$  et  $0.1 h$ . L'atmosphère est supposée être en neutralité thermique. Afin de prendre en compte l'effet de la taille du couvert sur les caractéristiques de l'écoulement, la vitesse du vent à 50 m est fixée à  $U_{50} = 8 \text{ m s}^{-1}$ , et la vitesse de frottement  $u_*$  est calculée connaissant  $z_0$ ,  $d$  et  $L$ , par inversion de l'Eqn. III.50. (pour  $z \geq h$ ). Cela donne des vitesses de frottement  $u_*$  respectivement égales à 0.38, 0.47, 0.53, et  $0.62 \text{ m s}^{-1}$  pour chacun des couverts étudiés.

Afin de n'étudier que l'effet du couvert, la résistance stomatique totale du couvert est fixée à  $100 \text{ s m}^{-1}$  pour chaque couvert. De plus, le point de compensation  $C_s$  est fixé égal à 0 dans tous les cas. Lorsque  $C_s$  est nul, le rôle de la résistance cuticulaire tel que nous l'avons défini est identique à celui joué par la résistance stomatique. Cette dernière est donc fixée à  $100 \text{ s m}^{-1}$  également.

Afin d'étudier l'impact de la position de source, pour chacun des quatre cas, deux types de sources sont considérés : une source au niveau du sol (cas noté S1), et une source à 3 m de hauteur (cas S2). La source considérée est une source ligne infinie de section carrée de côté 5 cm. La Figure VI.1 schématise la position des sources lignes.

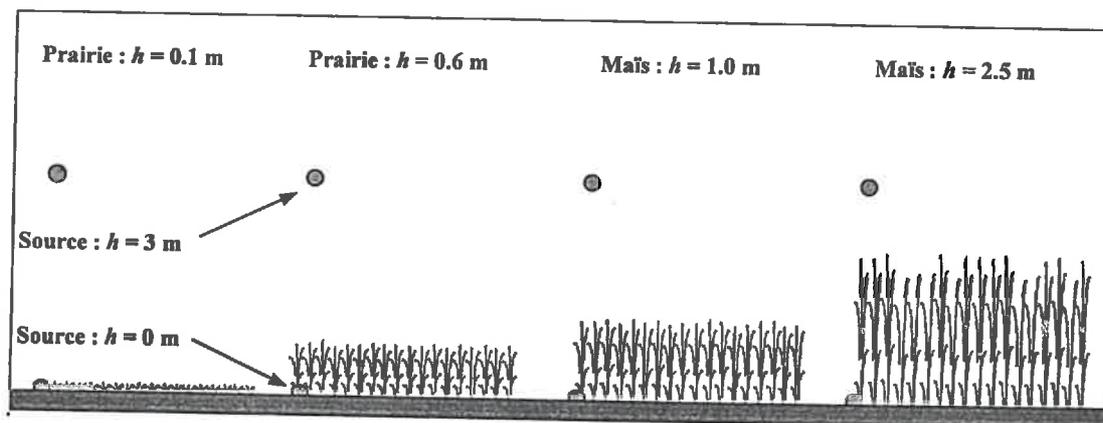


Figure VI.1. Schéma de principe montrant la position des sources lignes au niveau du sol et à 3 m.

Le terme source est fixé à  $20 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-1} \text{ s}^{-1}$  pour les sources des séries S1 et S2. Ce terme source est faible comparé aux émissions après épandages, qui s'élèvent à plusieurs centaines de  $\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-1} \text{ s}^{-1}$  (Génermont et Cellier, 1997; Sutton *et al.*, 1998; Glorennec *et al.*, 1999). Mais il est plus proche des émissions moyennes annuelles près d'un bâtiment d'élevage

qui est typiquement de quelques  $\mu\text{g NH}_3 \text{ s}^{-1}$  à quelques dizaines de  $\mu\text{g NH}_3 \text{ s}^{-1}$  (Fowler *et al.*, 1998).

### VI.2.1.2 Concentration et dépôt en aval de la source

La Figure VI.2 montre les résultats des simulations pour 4 couverts (voir légende) et deux positions de la source : au-dessus du couvert à 3 m du sol (Figure VI.2a), et dans le couvert au niveau du sol (Figure VI.2b). Dans chaque cas, la Figure VI.2 montre la concentration moyenne dans le couvert, le dépôt local et le dépôt cumulé en fonction de la distance à la source. La concentration d' $\text{NH}_3$  maximale à 1 m au-dessus du couvert est d'environ 20 à 50  $\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$  dans l'ensemble des cas.

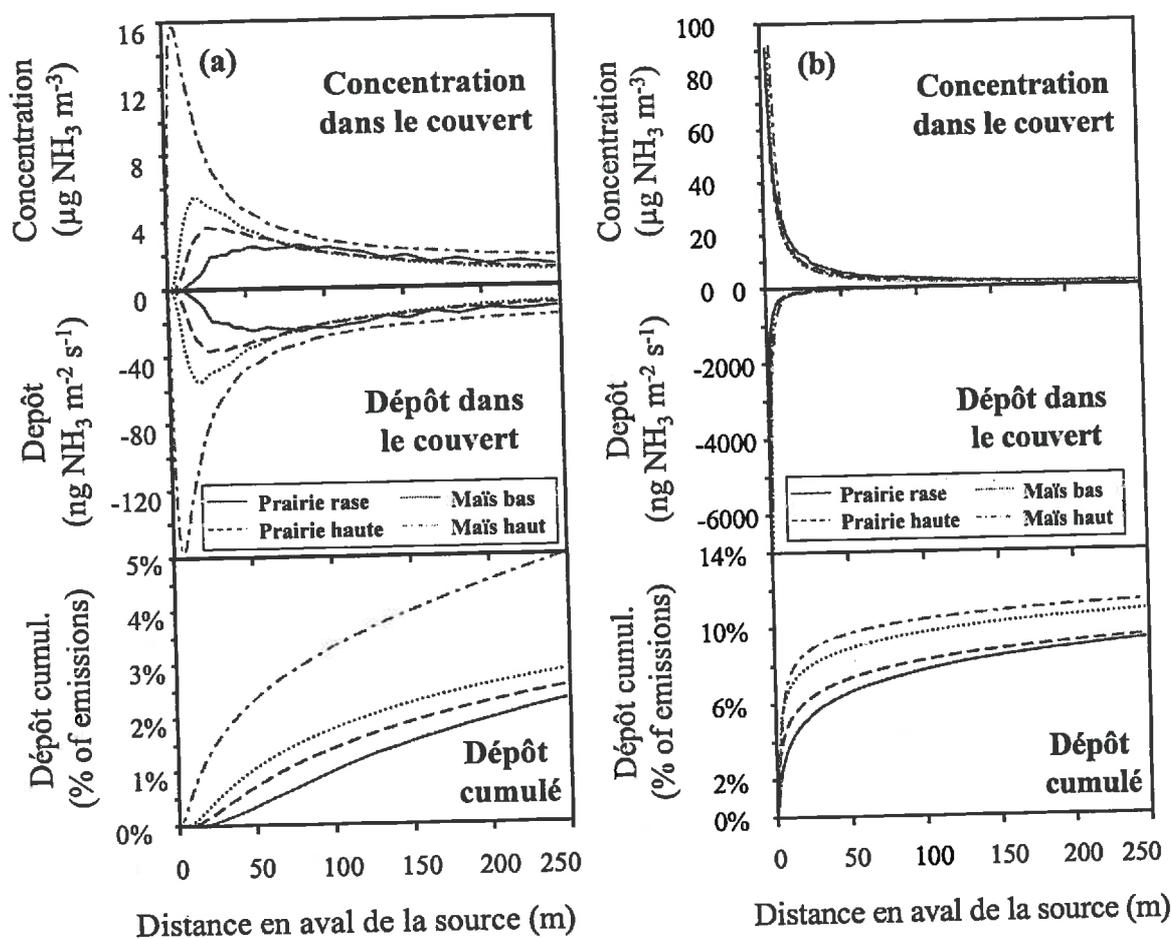


Figure VI.2. Concentration moyenne dans le couvert, dépôt sec local et dépôt cumulé sur 300 m en aval d'une source ligne (a) au-dessus du couvert et (b) dans le couvert, au niveau du sol. Les conditions de la simulation sont données dans le texte.

On voit que globalement la concentration d' $\text{NH}_3$  dans le couvert est inférieure à  $20 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$  lorsque la source est placée au-dessus du couvert (Figure VI.2a). Lorsque la source est dans le couvert, elle atteint  $100 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ . Les dépôts cumulés sur 300 m varient globalement entre 2% et 5% de la quantité émise pour la source placée au-dessus du couvert, et de 8% à 12% pour la source placée dans le couvert. L'évolution des dépôts en fonction de la distance à la source est quant à elle totalement différente. Ces estimations sont comparables à

celles obtenues par d'autres (Sutton *et al.*, 1998; Fowler *et al.* 1998).

### VI.2.1.3 Effet de la taille du couvert et de la hauteur de la source

La Figure VI.2a montre clairement que pour la source S1, la concentration moyenne dans le couvert croît lorsque la taille de celui-ci augmente. Il ne s'agit pas ici d'un artefact lié au calcul de la concentration moyenne sur des couverts de taille différente. Celui-ci aurait l'effet opposé, puisque pour une même quantité d'ammoniac le volume sur lequel est calculée la concentration moyenne augmente avec la taille du couvert.

Cet accroissement de concentration est lié au fait que la distance entre le couvert et la source diminue lorsque la hauteur du couvert augmente puisque la source est fixe. Cela se traduit également par le déplacement vers l'aval du maximum de concentration dans le couvert lorsque la taille du couvert diminue (Figure VI.2a).

Lorsque la source est située dans le couvert (S2, Figure VI.2b), quelle que soit la hauteur de ce dernier, la concentration est identique. Elle est, par ailleurs, plus de 5 fois supérieure à celle de la Figure VI.2a, parce l'ensemble du panache diffuse initialement dans le couvert. En revanche, elle décroît bien plus vite en aval de la source que sur la Figure VI.2a, du fait de l'absorption.

Les dépôts cumulés à 250 m correspondant à ces concentrations varient de 2 à 5%, lorsque la source est à 3 m. Ils varient entre 8% et 12% lorsque la source est à la surface du sol. Ils augmentent dans les deux cas avec la hauteur du couvert. On peut expliquer ces deux phénomènes en se plaçant dans le repère lagrangien : (i) lorsque la source est au sol, une particule fluide issue de cette source mettra plus de temps à quitter un couvert plus haut, et sa probabilité d'être absorbée augmente en conséquence (Figure VI.2b). Quand (ii) la source est à 3 m du sol, la probabilité qu'une particule issue de la source pénètre dans le couvert croît avec la taille du couvert, et il en va donc de même pour le dépôt (Figure VI.2a).

Noter que la vitesse de frottement  $u_*$  et donc l'intensité de la turbulence augmente quand  $h$  augmente puisque nous imposons une vitesse du vent fixe à 50 m d'altitude. Mais cet accroissement de la diffusivité n'est pas le phénomène prépondérant ici. C'est la position relative de la source par rapport au couvert qui l'est.

Les cas étudiés ci-dessus sont extrêmes, mais ils permettent de comprendre comment la position de la source agit sur les dépôts. La tendance observée sur la Figure VI.2a est opposée aux résultats habituels sur le dépôt sec. En effet, Asman (1998) trouve par simulation que le dépôt décroît quand la taille du couvert augmente. Nos résultats (Figure VI.2a) sont inverses du fait de la configuration de notre "simulation" où la hauteur de la source est fixe par rapport au sol contrairement à Asman (1998) qui la fixe par rapport au couvert. Asman (1998) n'observe donc que l'effet de la dilution accrue liée à l'accroissement de  $u_*$  avec  $h$ .

Il semble donc que la hauteur relative de la source par rapport au couvert soit un facteur

clé du dépôt sec. Celle-ci est liée au type de source : Un bâtiment d'élevage pourrait être vu comme une source de hauteur constante mais étalée, alors qu'un épandage sur un couvert développé est un cas de source liée à la hauteur du couvert. Une végétation qui émet de l'ammoniac par les stomates ( $C_s$  élevé), est aussi un cas de source liée à la hauteur du couvert.

Sur la Figure VI.2a l'évolution des dépôts n'est suivie que jusqu'à 250 m, car c'est dans cette zone qu'ils sont les plus intenses. Toutefois, étant donné que la concentration en  $\text{NH}_3$  dans le couvert à 250 m est encore supérieure à  $2 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ , le dépôt sec à plus grande distance pourrait contribuer de façon significative au dépôt local. Cela est vrai pour un écosystème semi-naturel recevant peu d'azote, ou plus généralement lorsque la température est faible ou le couvert est humide (Asman *et al.*, 1989). Il est probable que l'effet dominant de la taille du couvert sur le dépôt sec à plus grande distance est alors celui associé à la dilution : le dépôt à plus grande distance diminue quand la taille du couvert augmente (Asman, 1998). La tendance s'observe déjà sur la Figure VI.2a où l'on voit que les dépôts cumulés des trois couverts les moins hauts se rapprochent au-delà de 100 m.

Une autre remarque importante est liée au microclimat du couvert. Les résultats de la Figure VI.2 ont été obtenus en considérant que les paramètres microclimatiques des différents couverts étaient identiques (hormis la turbulence). Or la taille du couvert engendre des variations du microclimat qui ont notamment un effet sur l'humectation des feuilles (Jacobs *et al.*, 1994a), dont nous avons vu dans le Chapitre II l'importance dans le processus de dépôt de surface, ainsi que sur la tel leur température qui agit sur le point de compensation.

### ***VI.2.2 Influence de la vitesse du vent, de la stratification thermique, et des résistances***

Dans cette partie, nous étudions l'effet du vent, de la stratification thermique de l'atmosphère, des résistances cuticulaires et du point de compensation sur les dépôts. L'étude est réalisée pour un couvert de maïs de 2.1 m de hauteur dont les caractéristiques sont comparables à celles des séries  $S_7$  à  $S_{10}$  des expérimentations Davron97 (Chapitre IV). L'étude se focalise sur les dépôts à 100 m de la source, c'est à dire dans la zone la plus sensible autour de celle-ci.

#### ***VI.2.2.1 Simulations***

Les effets des différents facteurs sont étudiés par rapport à une **situation de référence** dont les paramètres de dispersion sont  $u_* = 0.3 \text{ m s}^{-1}$ ,  $z_0 = 0.1 \text{ m}$ ,  $d = 1.6 \text{ m}$ ,  $L = -10^5$ . Étant donné que nous ne nous intéressons pas au détail de la distribution verticale des dépôts dans le couvert, seulement deux strates de couvert sont utilisées. La résistance stomatique moyenne dans chaque strate est fixée à  $R_s = 50 \text{ s m}^{-1}$ . Cette valeur de résistance stomatique est faible et correspond à une journée bien ensoleillée et un couvert sans stress. La valeur moyenne de  $R_b$  est estimée à partir des profils de vitesse de vent dans le couvert. L'humidité relative de l'air dans le couvert est fixée à 70%, et la température de l'air à  $20^\circ\text{C}$ , ce qui correspond à des conditions relativement humides. La résistance cuticulaire est définie est ici infinie.

La source est placée au sommet du couvert. Cette situation un peu "artificielle", permet à la fois de mettre en avant les effets du climat et du couvert sur les dépôts. Par ailleurs, elle correspond aux conditions obtenues à *Davron97* pour lesquelles le modèle a été validé et où l'on connaît sa sensibilité. Le débit de source est fixé à  $1000 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-1} \text{ s}^{-1}$ , afin d'avoir des débits proches de ceux obtenus dans *Davron97*. Les résultats pourront donc être comparés. La Figure VI.3 montre, pour la situation de référence, la concentration en  $\text{NH}_3$  dans le couvert et le dépôt sec en fonction de la distance.

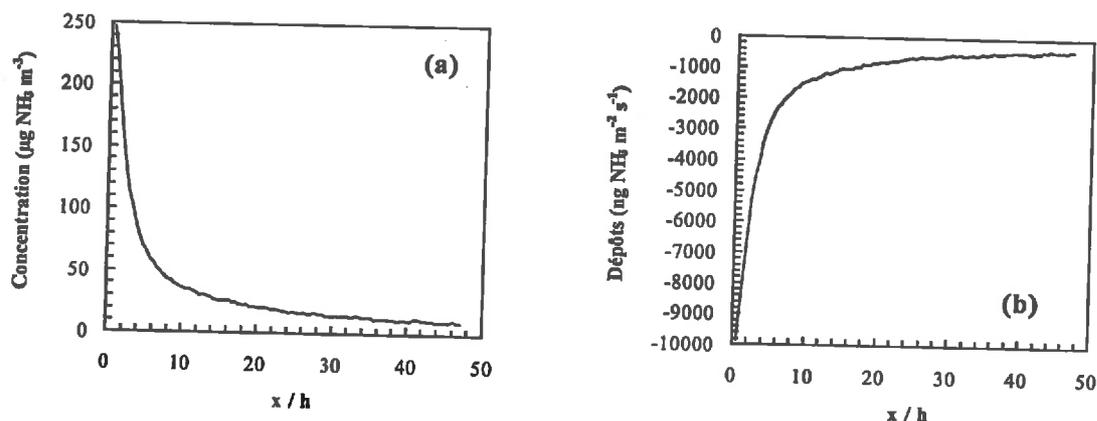


Figure VI.3. (a) Concentration en  $\text{NH}_3$  dans le couvert, et (b) dépôts en fonction de la distance à la source pour la situation de référence. Voir texte ci-dessus pour le détail des variables d'entrée.

On voit dans la Figure VI.3a que la concentration simulée dans le couvert est du même ordre de grandeur que celle mesurée lors de *Davron97* (Figure IV.22). Les dépôts près de la source sont très importants, et le sont encore à 100 m où ils atteignent  $500 \text{ ng NH}_3 \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ . La fraction d'ammoniac émis et déposé à 100 m en aval de la source est de 14%. Cette valeur élevée est due au fait que  $R_s$  est faible, mais reste dans des gammes plausibles, qu'elle soit comparée aux résultats expérimentaux de *Davron97* (Tableau IV.16) ou à des simulations (Asman, 1998).

#### VI.2.2.2 Effet du vent

L'effet du vent sur le dépôt sec local est étudié en faisant varier  $u_*$  qui prend successivement les valeurs suivantes 0.1, 0.2 et  $0.3 \text{ m s}^{-1}$ . Les vitesses de vent correspondantes, à 2 m du sommet du couvert, sont 0.6, 1.3 et  $1.9 \text{ m s}^{-1}$ . Toutes les autres variables d'entrée restent égales à la référence. La Figure VI.4 montre la concentration moyenne dans le couvert et le dépôt en fonction de la distance à la source pour ces trois valeurs de  $u_*$ . Afin de mieux discerner les différences de concentration près de la source, un graphique semi-log est utilisé dans la Figure VI.4a.

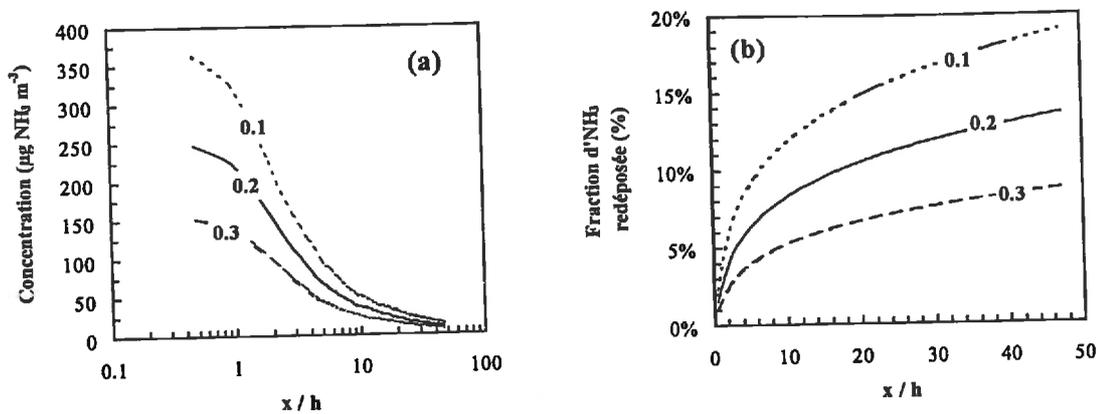


Figure VI.4. Effet de la vitesse de frottement  $u_*$  sur (a) la concentration en  $\text{NH}_3$  dans le couvert, et (b) la fraction cumulée d'ammoniac déposé en fonction de la distance à la source. Voir texte ci-dessus pour les détails des variables d'entrée.

Lorsque  $u_*$  augmente, et donc que la vitesse du vent croît, la concentration dans le couvert diminue (Figure VI.4a). Il semble au vu des trois courbes que cette décroissance soit linéaire. Les autres paramètres étant constants, l'effet sur les dépôts est lui aussi proportionnel comme le montre la Figure VI.4b : le dépôt diminue quand la vitesse du vent augmente. L'effet est important, puisque la quantité déposée augmente d'environ 6% lorsque  $u_*$  diminue de  $0.1 \text{ m s}^{-1}$ .

Ce résultat pourrait paraître surprenant : il est contraire aux résultats classiques sur le dépôt sec en conditions horizontalement homogènes qui montrent sans ambiguïté que lorsque  $u_*$  augmente, le dépôt sec en fait autant (Wyers et Erisman, 1998; Flécharde et Fowler, 1998). Des études de modélisation du dépôt sec à proximité des sources aboutissent à des résultats semblables (Asman, 1998).

La différence fondamentale entre les études citées ci-dessus et les résultats obtenus dans la figure VI.4 résulte de nouveau de la position de la source. Dans le cas du dépôt sec en conditions homogènes, c'est à dire loin des sources intensives, l'ammoniac qui est échangé provient (i) soit de l'atmosphère s'il y a dépôt (Wyers et Erisman, 1998) où la source est diffuse, (ii) soit du couvert lorsqu'il y a émission par les feuilles (Sutton *et al.*, 1995b). Dans ces deux situations, la résistance atmosphérique  $R_a(z)$  est déterminante car c'est elle qui limite le flux potentiellement échangé entre l'atmosphère et le couvert (Flécharde et Fowler, 1998). Si  $R_a(z)$  augmente, ce qui est le cas quand  $u_*$  diminue, les échanges diminuent et il y a donc moins de dépôt, et si le couvert émet, moins d'émission.

Pour le dépôt sec local, la situation est bien différente, parce que la source d'ammoniac est localisée. De ce fait, la turbulence joue le rôle inverse de celui évoqué ci-dessus : elle entraîne la dispersion du gaz vers les couches supérieures de l'atmosphère, et elle tend par ce biais, à diminuer la concentration de surface qui fixe l'intensité du dépôt. C'est ce que montre la Figure VI.4 :  $u_*$  augmentant, la dispersion est accrue, et moins d'ammoniac est alors disponible pour le dépôt.

Ce résultat n'est valable que parce que la source est située au sommet du couvert. Asman (1998) trouve un résultat inverse avec une source située à 3 m au-dessus du couvert. Ce seul fait suffit en effet à rendre la dispersion dans l'atmosphère limitant dans le dépôt sec. Cela montre à nouveau à quel point, la hauteur relative de la source et du couvert est un élément clé du dépôt sec à ne pas négliger.

L'augmentation de la vitesse du vent entraîne donc la décroissance de la concentration dans le couvert, lorsque source située au sommet du couvert. Le dépôt étant proportionnel à la concentration il devrait lui aussi diminuer, comme le montre la Figure VI.4. Il faut toutefois se garder de toute conclusion hâtive. En effet, le potentiel d'absorption dépend des conditions micrométéorologiques, comme le rayonnement ou l'humidité, et peut donc à ce titre être corrélé avec la vitesse du vent. En d'autre terme, la Figure VI.4 montre quel serait l'effet d'une variation de  $u_*$  à conditions d'absorption et de stabilité constante. Il reste à déterminer si les conditions d'absorption du couvert et la stabilité varient avec la vitesse du vent. C'est l'objet de la section §VI.2.

### VI.2.2.3 Influence de la stratification thermique

L'autre paramètre de la couche limite de surface dont on sait qu'il influe sur la diffusion est la longueur de Monin et Obukhov,  $L$ , qui caractérise l'état de stratification de l'atmosphère.  $L$  est positif (stable) lorsque le gradient de densité de l'air est négatif, c'est à dire lorsque l'air plus dense est en bas.  $L$  est négatif quand la situation est inverse, la stratification est alors instable. La Figure VI.5 montre la concentration et le dépôt en fonction de la distance à la source pour 3 situations : une situation neutre ( $L = \infty$ ), une situation stable ( $L = 10$  m), et une situation instable ( $L = -10$  m). Tous les autres paramètres sont constants.

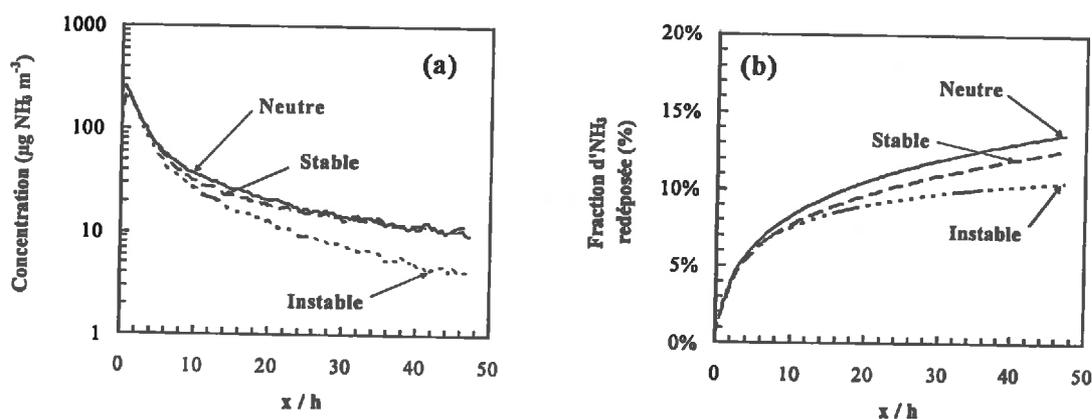


Figure VI.5. Effet de la stratification thermique, exprimée à travers  $L$ , sur (a) la concentration en  $\text{NH}_3$  dans le couvert, et (b) la fraction cumulée d'ammoniac déposé en fonction de la distance à la source. Voir texte ci-dessus pour les détails des variables d'entrée.

La Figure VI.5a montre clairement qu'en conditions instables, la concentration dans le couvert est plus faible qu'en conditions stable et neutre. Cet ordre est aussi celui des fractions déposées à 100 m de la source (Figure VI.5a). L'effet de  $L$  sur les dépôts est toutefois moins

important que celui engendré par des variations de  $u_*$  (Figure VI.4).

Le cas instable s'explique relativement facilement : la turbulence étant accrue, la concentration de surface décroît et les dépôts aussi. C'est le même effet que celui engendré par un accroissement de  $u_*$ . En revanche le cas stable est moins immédiat à expliquer ; on s'attend en effet à une augmentation des dépôts liée à la plus faible dispersion. Mais deux effets antagonistes jouent dans le cas stable : d'une part la concentration de surface est plus élevée du fait de la dispersion plus faible, mais d'autre part le transfert dans la végétation est lui aussi plus faible car il est inhibé par la stratification thermique. En quelques sortes, la concentration au-dessus du couvert est plus élevée qu'en conditions instables, mais cet ammoniac reste "hors de portée" des sites d'absorption.

Il serait intéressant d'avoir des données expérimentales pour valider ce résultat. Certains auteurs ont en effet montré (voir par exemple Brunet et Collineau, 1994) que des phénomènes d'intermittence pouvaient augmenter les échanges de nuit. Ces effets ne sont pas pris en compte dans le modèle. D'autres études suggèrent également que la convection libre de nuit dans le couvert puisse également engendrer une augmentation conséquente de la diffusivité dans le couvert (Jacobs *et al.*, 1994b). Quant à Leclerc *et al.* (1991), ils montrent que la stabilité dans la CLS décroît le coefficient d'asymétrie (Skewness) de la vitesse du vent dans le couvert. Il serait intéressant de connaître également l'évolution du coefficient d'aplatissement qui doit être plus représentatif de l'intermittence de nuit et qui agit directement sur la diffusivité comme l'a démontré Heinz et Schaller, (1996).

Par ailleurs, comme l'effet du vent, l'effet de la stabilité doit être considéré en relation avec les autres paramètres qui sont susceptibles de varier lorsque la stabilité change.

#### VI.2.2.4 Influence de la résistance stomatique et cuticulaire

La Figure VI.6 montre l'effet d'une variation de la résistance stomatique sur la concentration (Figure VI.6a), et sur le dépôt sec (Figure VI.6b) en fonction de la distance à la source. Contrairement aux effets de la vitesse du vent et de la stratification thermique, ici c'est le dépôt qui engendre des variations de la concentration, et non l'inverse. L'effet sur la concentration est par ailleurs faible (quelques %) par rapport au dépôt qui varie d'un facteur 10 pour une variation de  $R_s$  de 20 à 200  $s\ m^{-1}$ .

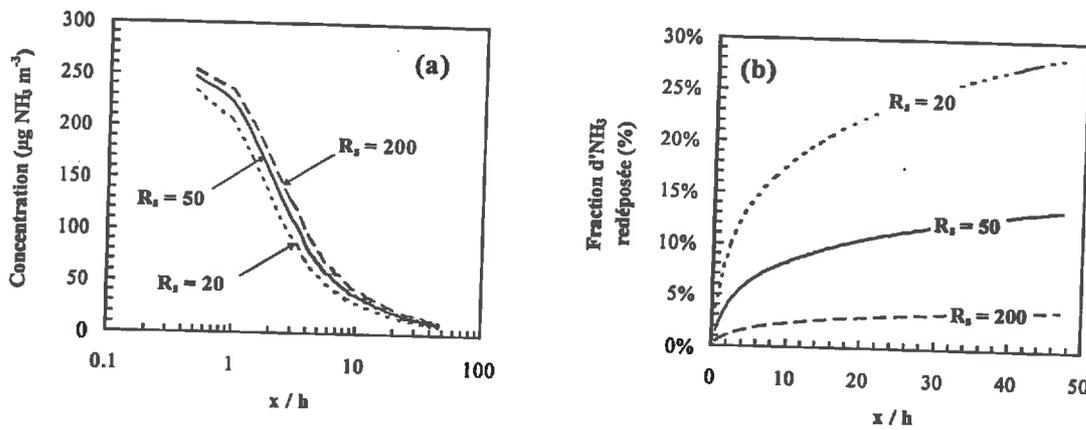


Figure VI.6. Effet d'une modification de la résistance stomatique sur (a) la concentration en  $\text{NH}_3$  dans le couvert, et (b) la fraction d' $\text{NH}_3$  déposée en fonction de la distance à la source. Voir le texte ci-dessus pour les détails des variables d'entrée.

L'effet de la résistance stomatique sur le dépôt est sans surprise, puisque le dépôt est inversement proportionnel à la résistance stomatique (rappelons qu'ici nous considérons que le point de compensation est nul).

Du point de vue du développement de modèles simplifiés de dépôts, il est intéressant de constater que le dépôt important lié à la résistance stomatique la plus faible n'entraîne que de faibles variations de la concentration dans le couvert. Cela justifie l'utilisation de lois simples d'évolution de la concentration moyenne dans le couvert en aval d'une source telle que celle obtenue dans le Chapitre IV (Figure IV.27). L'utilisation de ce type de loi n'est en effet possible que si le dépôt calculé à partir de la concentration n'entraîne pas de modification trop importante de la loi qui en permet l'estimation.

Toutefois, l'effet de la résistance stomatique sur le dépôt doit être mis en rapport avec les autres facteurs climatiques influants. En effet, les épisodes où la résistance stomatique est faible correspondent aux heures où le rayonnement solaire est le plus intense. Ils sont donc sans doute corrélés à des épisodes particuliers pour  $L$ ,  $u^*$ , ainsi que  $C_s$  à travers la température de surface.

L'étude de la résistance cuticulaire  $r_w$ , dans cette simulation où le point de compensation  $C_s$  est nul, donnerait des résultats comparables à la Figure VI.6. Ce n'est que lorsque le point de compensation est élevé que la résistance cuticulaire joue un rôle très différent de la résistance stomatique, puisque lorsqu'elle diminue les dépôts augmentent, et une fraction de l'ammoniac émit par les feuilles se dépose sur la cuticule (Sutton *et al.*, 1995a). L'étude de  $r_w$  en relation avec le point de compensation sera détaillée dans le §VI.3, en se basant sur des données micrométéorologiques qui intègrent l'interaction entre  $C_s$  et  $r_w$ .

### VI.2.3 Saturation du couvert ?

Les dépôts intenses simulés à proximité directe de la source (Figures VI.2 et VI.3), sont-ils réalistes? En particulier, le couvert est-il capable d'absorber cette quantité d'azote

ammoniacal? Si la réponse est non, la paramétrisation du modèle près de la source devrait être adaptée pour prendre en compte une saturation du couvert.

Lors des expérimentations *Davron97*, deux séries de mesures ont été menées l'une juste après l'autre ( $S_2$ ,  $S_3$ ), dans des conditions micrométéorologiques très comparables, notamment des directions de vent identiques. Dans la série  $S_3$ , la concentration dans le couvert à 12 m en aval de la source est très nettement supérieure à celle de la série  $S_2$ , alors qu'au-dessus les profils coïncident, suggérant qu'il y a moins de dépôt lors de la série  $S_3$  (Figure IV.23). Est-ce un effet de saturation du couvert?

Pour tenter d'apporter une réponse à cette question, et d'évaluer si notre paramétrisation de la résistance cuticulaire est justifiée près de la source, nous allons reprendre les résultats de Grundmann *et al.* (1993) qui avaient mesuré l'absorption d'ammoniac et de  $N_2O$  par des feuilles de maïs à l'aide d'une méthode de marquage isotopique. Les concentrations en  $NH_3$  utilisées étaient de quelques dizaines de  $mg NH_3 m^{-3}$  et ne peuvent donc pas être raisonnablement utilisées pour estimer des paramètres d'échange foliaire en conditions normales. En revanche cette étude constitue une base idéale pour évaluer le comportement de la plante soumise à des concentrations très élevées, c'est à dire précisément, très près de la source.

La capacité d'absorption de l'ammoniac par la plante est liée au fonctionnement photosynthétique des feuilles à travers l'activité des enzymes Glutamine Synthétase et Glutamate Synthase (Figure II.30 ; Mattson et Schjørring, 1996). Cette capacité d'absorption de l'azote doit donc être liée d'une façon ou d'une autre à l'assimilation de carbone par la plante (Schjørring, 1991 ; Farquhar *et al.*, 1983). Le rapport C : N fixe une limite supérieure à cette assimilation. Dans le maïs ce rapport est d'environ 20 (en  $mol mol^{-1}$ ), et les résultats de Grundmann *et al.* (1993) tendent à montrer que l'absorption de  $NH_3$  et de  $CO_2$  se situent en effet dans ces rapports.

Leur étude a permis de dissocier deux phénomènes dont les constantes de temps sont très différentes : une absorption rapide et un stockage de l'ammoniac qui s'élève à  $0.392 mg N dm^{-2} (sf) h^{-1}$  (ou sf désigne la surface de feuille), estimée sur une période de 90 min, puis une lente métabolisation dont le taux est estimé à  $0.0023 mg N dm^{-2} (sf) h^{-1}$  basé sur des mesures sur 6 jours. Nous avons utilisé ces estimations pour calculer un taux maximal d'absorption sur des courtes périodes, lié au premier phénomène, et un taux d'absorption moyen lié au second. Ils sont reportés dans le Tableau VI.1.

Tableau VI.1. Estimation du taux d'absorption et de métabolisation maximum. Les concentrations maximales dans l'air, au-delà desquelles il y aurait saturation, sont également données. Estimation basée sur les résultats de Grundmann *et al.* (1993) sur des pousses de maïs d'un mois.

LAI $m^2 m^{-2}$	Taux maximal d'absorption stomatique d' $NH_3$ $\mu g NH_3 m^{-2} s^{-1}$	Taux moyen de métabolisation d' $NH_3$ $\mu g NH_3 m^{-2} s^{-1}$	Concentration maximale pendant une heure avant saturation <sup>1</sup> $\mu g NH_3 m^{-3}$	Concentration maximale avant saturation pour une exposition continue $\mu g NH_3 m^{-3}$
1	13	0.008	1322	8
2	26	0.016	2644	16
5	66	0.039	6611	39

<sup>1</sup> en supposant une résistance stomatique plus une résistance de surface de feuille égale à  $100 s m^{-1}$ .

Le Tableau VI.1 présente des estimations grossières des quantités maximales absorbables et métabolisables par la plante. Par ailleurs ils sont basés sur des expérimentations réalisées sur une pousse de maïs d'un mois, qui n'est pas représentative de tous les stades de développement de la plante. Ces expérimentations ont été réalisées avec de l'azote  $^{15}N$  dont nous avons vu qu'il pouvait entraîner une surestimation des flux (Figure IV.1). Mais les ordres de grandeurs suffisent à montrer que la paramétrisation des dépôts que nous utilisons n'est pas réaliste pour des couverts exposés à de fortes concentrations à long terme. Par exemple les dépôts simulés sur la Figure VI.3 sont certainement surestimés, car le Tableau VI.1 indique que des plantes soumises à de tels dépôts vont être saturés, ce qui va entraîner en retour une augmentation du point de compensation et donc une limitation des flux.

En revanche, la concentration maximale à laquelle la plante peut être exposée pendant une heure (Tableau VI.1) montre qu'au cours des expérimentations Davron97 (Chapitre IV), il n'y aurait pas eu saturation au niveau du mât de bilan masse situé à 12 m en aval de la source. Une saturation partielle de l'apoplasme est toutefois très probable, soit par augmentation de la concentration en  $NH_4^+$  soit par augmentation du pH (Yin *et al.*, 1996). Par ailleurs, il est également probable qu'il y a eu saturation plus près de la source.

Deux études expérimentales au moins montrent clairement des effets de saturation à proximité de bâtiments d'élevage. Les mesures de Pitcairn *et al.* (1998) montrant une saturation de la teneur en azote de mousses (dans leur habitat naturel) à proximité de bâtiments d'élevage (voir Figure I.5). Leurs résultats basés sur quatre sites montrent qu'il y a saturation de la concentration d'azote dans la plante à 3% (exprimé en pourcentage de matière sèche), lorsque la concentration atmosphérique dépasse 15 à 20  $\mu g NH_3 m^{-3}$ . Cette valeur est en cohérence avec notre estimation de la concentration maximale d'exposition à long terme (Tableau VI.1). Les mousses sont toutefois très différentes d'une plante telle que le maïs.

L'autre étude relatant un effet de saturation est celle de Sommer et Jensen (1991), qui ont réalisé une campagne de mesure de 6 semaines, utilisant des plantes marquées comme « bio-moniteurs » des flux d' $NH_3$  à proximité d'un bâtiment d'élevage. Ils trouvent que la vitesse de dépôt décroît à proximité du bâtiment d'élevage lorsque la concentration ambiante moyenne dépasse 100  $\mu g NH_3 m^{-3}$ .

Nous n'aborderons pas avec autant de détail la question de saturation du dépôt cuticulaire. Quelques remarques s'imposent toutefois. Le dépôt à la surface de la feuille dépend essentiellement de la présence d'un film d'eau, y compris s'il s'agit de micro gouttelettes invisibles à l'œil nu (Burkhardt et Eiden, 1994 ; Wyers et Erisman, 1998 ; Fléhard, 1998). La capacité de rétention de ces films serait infime s'il ne s'agissait que d'eau (Burkhardt et Eiden, 1994). C'est donc une interaction complexe avec la présence d'autres composés acides de l'atmosphère qui détermine la capacité d'adsorption de l'ammoniac sur les feuilles (Fowler *et al.*, 1991). Fléhard (1998) propose une modélisation dynamique du phénomène d'adsorption et de désorption à la surface de la feuille qui prend en compte la présence de plusieurs composés chimiques.

Cette voie de dépôt peut saturer, notamment parce que l'ammoniac adsorbé contribue à augmenter le pH et la concentration en  $\text{NH}_4^+$  de ces films d'eau, et diminuent ainsi les dépôts. Le comportement à long terme du dépôt surfacique dans des environnements pollués, est difficile à prédire. Il dépend de la présence d'autres composés acides comme le  $\text{SO}_2$  (Sutton *et al.*, 1994), et du climat, notamment de la fréquence et de l'intensité des pluies qui vont lessiver l'ammoniac présent à la surface des feuilles. Mais les dépôts surfaciques ne constitueraient en quelque sorte qu'une "séquestration" de l'ammoniac puisque les connaissances actuelles semblent indiquer que le transfert à travers la cuticule est très faible (Fléhard *et al.*, 1998). Cet ammoniac est soit émis à nouveau vers l'atmosphère, soit lessivé par les pluies vers la surface du sol où il participe au cycle de l'azote du sol.

Cette discussion met en avant le manque de connaissance sur les processus de rétroaction de la plante soumise à de fortes concentrations en ammoniac. Ces processus pourraient s'avérer essentiels dans l'étude du dépôt sec. De manière générale, ils tendraient à diminuer les quantités déposées. Ne pas les prendre en compte signifie donc surestimer les dépôts locaux.

Les résultats de simulation et discussions précédentes montrent que le dépôt local dépend fortement des conditions météorologiques, notamment le vent, et la stabilité de l'atmosphère, mais également du couvert et de sa structure, à travers la résistance stomatique et la hauteur du couvert. Au cours de la discussion il s'est avéré qu'il était primordial de connaître et de prendre en compte l'interaction entre les différents facteurs étudiés ici indépendamment. Cela fait l'objet de la section suivante.

### **VI.3 Influence de la variabilité saisonnière et diurne sur les dépôts locaux sous différents climats**

Nous venons de voir qu'étudier l'impact sur les dépôts des facteurs du climat et de la plante indépendamment les uns des autres, est utile pour comprendre par quel processus chacun des facteurs agit sur les dépôts, mais nous avons également mis en avant à cette occasion que l'action de chacun de ces facteurs dépendait des autres facteurs. Par exemple : la Figure VI.5

semble nous indiquer qu'en conditions de stabilité thermique, il y a moins de dépôts qu'en conditions neutres et plus qu'en conditions instables. Qu'en est-il réellement? De toute évidence, cela dépend des autres facteurs qui entrent en jeux dans le dépôt. D'après l'étude menée ci-dessus, nous pouvons essayer de définir les facteurs les plus influents en conditions stables : les résistances du couvert,  $R_s$  et  $R_w$ , le point de compensation, la vitesse de frottement  $u_*$ , l'intensité de la source et la position de la source par rapport au couvert.

L'intensité de la source peut être très variable pour un épandage de lisier ou d'engrais chimique, car elle est forcée par les conditions climatiques, en premier lieu le vent, la température du sol ainsi que son pH (Génermont et Cellier, 1997). En revanche les émissions depuis des bâtiments d'élevages intensifs, sont relativement indépendants des conditions climatiques (Glorennec *et al.*, 1999). Les autres facteurs dont l'action est prépondérante sur les dépôts en condition stables sont :  $u_*$ ,  $R_s$ ,  $R_w$  et  $C_s$ . Ces facteurs sont, à la fois, liés au climat, à la plante, et à l'interaction des deux. Un bon exemple est  $C_s$ , qui dépend de façon exponentielle de la température - il double à peu près tous les 5 degrés (Sutton *et al.*, 1995a) - mais aussi de  $\Gamma$  qui varie d'un facteur 10 à 100 entre différents types d'écosystèmes (Tableau II.14). La vitesse de frottement  $u_*$  est un paramètre corrélé à la stabilité, comme le montre dans une certaine mesure la Figure IV.6.

Le résultat que suggère la Figure VI.5 peut donc s'avérer faux dans la réalité si les épisodes de stabilité de l'atmosphère sont corrélés à d'autres facteurs qui eux agissent en sens inverse sur les dépôts. L'exemple de la stabilité n'est pas fortuit car elle découle précisément de facteurs dont les effets sont antagonistes sur le dépôt.

Cet exemple permet de montrer que l'étude de la variabilité des dépôts secs locaux en fonction des facteurs du climat et de la plante doit être réalisée de façon couplée, c'est à dire en prenant en compte d'une manière ou d'une autre les corrélations entre les différents facteurs qui dépendent du climat et du couvert végétal.

### VI.3.1 Méthode

Une première méthode consisterait à réaliser une étude de sensibilité "multifacteurs", mais nous avons déjà évoqué dans le Chapitre V l'impossibilité d'une telle étude, vu le coût en calcul du modèle. Par ailleurs, si ce type de méthode permet de connaître l'effet de plusieurs facteurs à la fois, elle ne renseigne pas directement sur les liens entre chacun de ces facteurs, comme par exemple le vent et la température.

Nous avons donc choisi une méthode différente pour étudier l'influence du climat et du cycle végétatif sur les dépôts. Elle consiste tout d'abord à choisir deux climats contrastés en termes de stabilité et de température de surface (méditerranéen et océanique), puis à comparer le dépôt sec local sur deux types de couverts de structures différentes (maïs et forêt). Afin de rester cohérent dans la démarche, nous avons utilisé des modèles simplifiés pour simuler

l'action du climat sur la croissance du couvert.

Nous avons utilisé des données climatiques mesurées sur des stations météorologiques standard. Deux stations gérées par le STEFCE ont été retenues en France, l'une à Avignon où le climat est de type méditerranéen, et l'autre à Rennes où il est océanique. Les données de l'année 1998 ont été retenues pour cette étude. Pour chaque station, les données horaires de rayonnement solaire global ( $R_g$ ), de la vitesse du vent ( $U$ ), de la température ( $T_a$ ) et de l'humidité de l'air  $HR$  ont été recueillies. Ces données (i) ont été utilisées pour simuler la croissance d'un couvert de maïs, (ii) ont servi à estimer les variables microclimatiques,  $u^*$ ,  $T_c$  (température du couvert), et  $L$ , pour chacun de ces couverts, à l'aide d'un modèle de bilan d'énergie (Cellier, communication personnelle), et enfin (iii) elles ont été utilisées pour estimer les paramètres d'échange d'ammoniac,  $R_s$ ,  $R_w$ ,  $C_s$  et  $R_b$ .

### VI.3.1.1 Croissance du couvert

Afin d'étudier l'influence du couvert sur les dépôts, deux types de couverts ont été retenus dont les structures sont très différentes : un couvert de maïs planté en mai et une forêt de chêne. Le maïs sert de référence pour le modèle de dépôt puisque que la validation a été réalisée sur ce type de couvert. La croissance du maïs a été estimée avec un modèle de croissance repris de Akkal (1998) et Quilbé (1998), où le  $LAI$  est une fonction de la somme des degrés.jour (Figure VI.7). Un  $LAI$  résiduel de 0.1 est utilisé pendant la période hivernale.

L'évolution du  $LAI$  de la Forêt est basé sur les estimations de  $LAI$  de Rauner (1977), et est déterminé de façon approximative afin de reproduire deux périodes ; une période végétative où le  $LAI$  est maximum, et les stomates actifs, au printemps et en été, et une période hivernale où les feuilles sont mortes et tombent (Figure VI.7). Le  $LAI$  résiduel en hiver correspond à la surface projetée au sol des branches et du tronc.

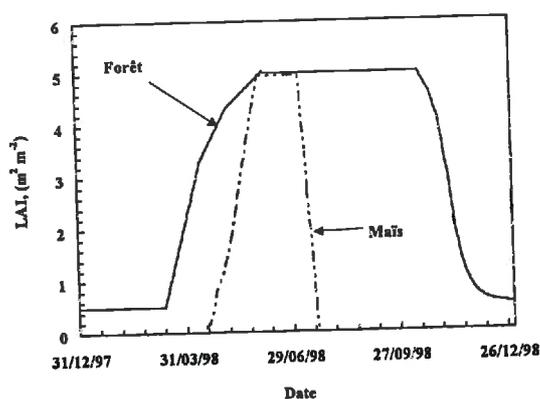


Figure VI.7. Evolution annuelle de la surface foliaire ( $LAI$ ) du maïs et de la forêt de chêne à Avignon. Le  $LAI$  résiduel du chêne correspond à la surface des branches et du tronc, qui participent à l'adsorption d' $\text{NH}_3$ .

L'objectif ici est de simuler des valeurs cohérentes de  $LAI$  du couvert, et de prendre en compte de façon simple une certaine action du climat sur la croissance du couvert. Le  $LAI$  ainsi simulé sert à déterminer les paramètres dynamiques de la surface  $z_0$  et  $d$ . Pour le maïs, la

hauteur du couvert  $h$  évolue proportionnellement au  $LAI$  entre un minimum de 0.1 m qui correspond la période hivernale, et un maximum de 2.0 m. La hauteur de la forêt est fixée à 10 m. Le Tableau VI.2 donne les paramétrisations de chacun des couverts.

Tableau VI.2. Paramétrisation des couverts de maïs et de la forêt de chêne utilisé dans le modèle de bilan d'énergie et le modèle de dispersion. Pour la Forêt, il a été nécessaire d'introduire une paramétrisation de  $d$  et  $z_0$  tenant compte de la présence de feuilles ou non. La paramétrisation de  $r_{smin}$  et  $\beta$  est tirée du Tableau III.4.

Couvert	$LAI_{max}$ $m^2 m^{-2}$	$h$ m	$z_0$ m	$d$ m	$r_{smin}$ $s m^{-1}$	$\beta$ $W m^{-2}$
Maïs	5	$2 \times LAI / LAI_{max}$	$0.1 h$	$2 h / 3$	150	22
Forêt	5	10 (cst)	$0.25 + 0.5 LAI / LAI_{max}$	$7 \times z_0$	250	60

Ces paramètres sont ensuite utilisés dans le modèle de bilan d'énergie, et le modèle de dépôt.

### VI.3.1.2 Données climatiques

Les données météorologiques des stations d'Avignon et LeRheu près de Rennes ont été fournies par le STEFCE par valeurs horaires pour l'année 1998. Il est impossible vu le coût en calcul du modèle de calculer le dépôt local sur l'ensemble des données horaires. Nous avons donc trié les données de façon à pouvoir discerner l'impact d'un type de climat sur les dépôts secs, la question sous-jacente étant : y a-t-il plus de dépôts en climat méditerranéen ou océanique?

Le dépôt local est comme nous l'avons vu fortement dépendant de la vitesse du vent et de la stabilité (Figures VI.4 et VI.5), mais aussi de la température (à travers  $C_p$ ) et du rayonnement à travers  $R_s$  (Figure VI.6). Il est donc important de garder dans l'estimation des données moyenne une certaine variabilité temporelle à l'échelle de la journée. Il est également important de discerner les différentes saisons correspondant à des cycles végétatifs différents, et des conditions climatiques très dissemblables. La solution choisie a donc été d'utiliser des moyennes saisonnières de valeurs horaires. Les quatre saisons sont représentées : printemps, été, automne, et hiver, dont les limites sont définies par les équinoxes de printemps (21 mars) et d'automne (21 septembre), et les solstices d'été (21 juin) et d'hiver (21 décembre). Cette méthode permet ainsi d'étudier à la fois la *variabilité diurne et saisonnière* du dépôt.

Les données ainsi compilées ont été utilisées pour étudier et discuter la variabilité des paramètres du dépôt et leur corrélation, en fonction du climat local et de la saison. Voici ci-dessous, les moyennes saisonnières pour Rennes et Avignon. La Figure VI.8 montre l'évolution journalière des moyennes saisonnières du rayonnement global à Avignon et à Rennes en 1998.

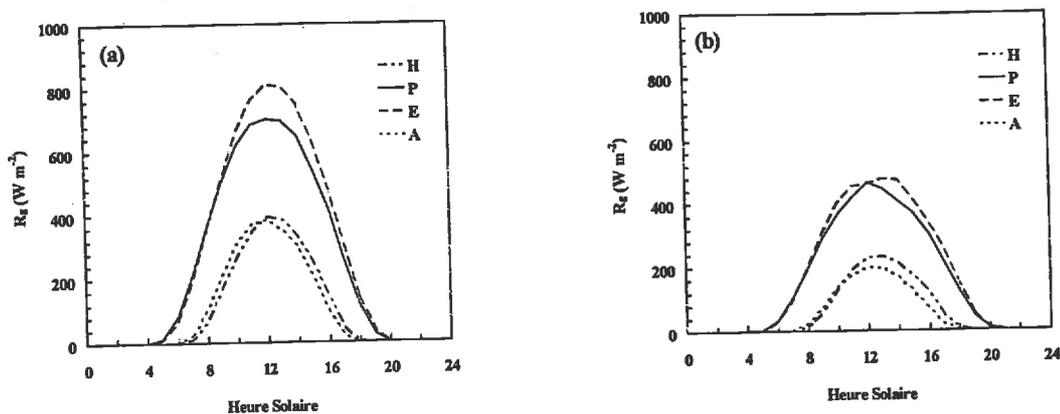


Figure VI.8. Evolution journalière du rayonnement global moyen (a) à Avignon et (b) à Rennes en 1998. Légende : H, hiver ; P, printemps ; E, été ; A, automne.

On constate que le rayonnement moyen reçu à Rennes à midi, est nettement inférieur à celui d'Avignon, qui est presque deux fois plus élevé. Le rayonnement moyen est comparable entre printemps et été, et automne et hiver, car les moyennes sont faites entre les équinoxes et les solstices, c'est à dire entre les valeurs extrêmes et non autour de celles-ci.

La Figure VI.9 montre les températures moyennes de l'air sur les mêmes périodes. Contrairement au rayonnement global, les différences de températures sont marquées entre toutes les saisons avec les températures les plus froides en hiver et plus chaudes en été. Cela illustre l'inertie thermique de la terre par rapport au rayonnement reçu (Figure VI.8).

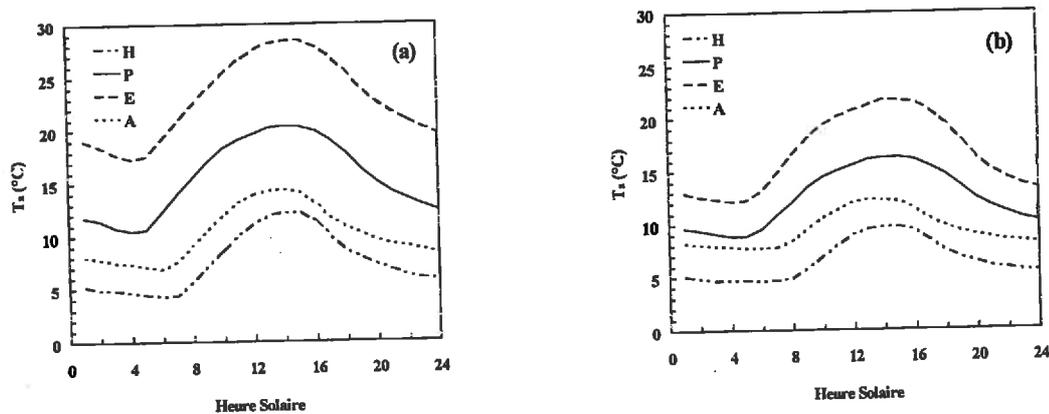


Figure VI.9. Evolution journalière de la température de l'air (a) à Avignon et (b) à Rennes en 1998. Légende : H, hiver ; P, printemps ; E, été ; A, automne. Les saisons sont définies par les périodes entre équinoxes et solstices.

On note que les écarts de température entre saisons sont plus importants à Avignon qu'à Rennes, du fait du rayonnement global plus important. De plus, les variations thermiques journalières sont plus marquées à Avignon traduisant un climat plus sec.

L'humidité relative moyenne de l'air (Figure VI.10) est plus grande à Rennes qu'à Avignon, et les écarts saisonniers y sont également moins importants. De même les variations journalières sont plus fortes à Avignon qu'à Rennes, traduisant le fait que Rennes soit influencé par les masses d'air océaniques. L'humidité relative est plus importante en automne

et en hiver qu'au printemps et qu'en été, ce qui est partiellement dû aux différences de températures de l'air.

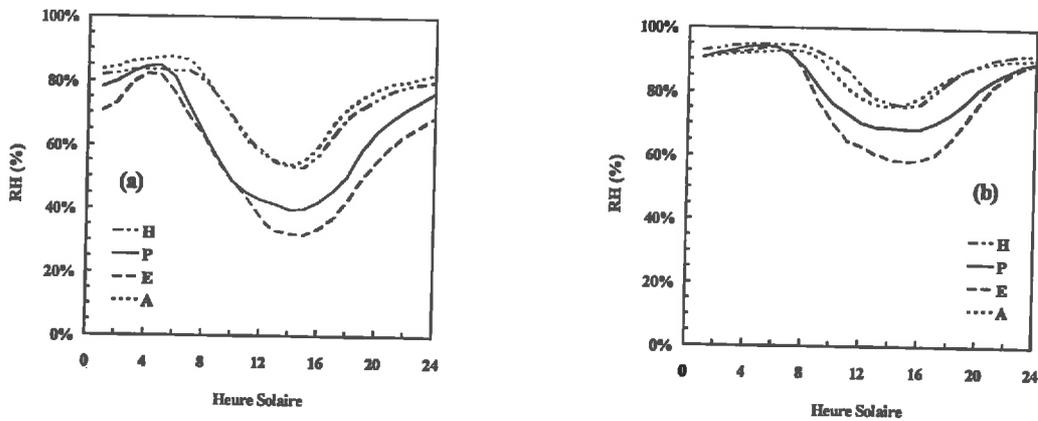


Figure VI.10. Evolution journalière de l'humidité relative de l'air (a) à Avignon et (b) à Rennes en 1998. Légende : H, hiver ; P, printemps ; E, été ; A, automne.

Un fait intéressant est que l'humidité relative moyenne à Rennes passe toujours par un minimum commun entre minuit et 5 heures du matin, quelle que soit la saison, indiquant que l'air est proche de la saturation. A Avignon, l'humidité relative en été est toujours moins forte que pendant les autres saisons, excepté entre 4 et 5 heures du matin où elle augmente brusquement, du fait du fort gradient thermique.

La vitesse moyenne du vent (Figure VI.11) présente des caractéristiques comparables entre Avignon et Rennes, avec un minimum vers 4 heures du matin et un maximum de jour entre 12 et 14 h. A Avignon les vitesses de jour étaient globalement identiques en 1998 entre les différentes saisons sauf en hiver où la vitesse du vent est plus faible. La vitesse du vent à Rennes présente des variations saisonnières plus marquées en 1998, avec des vents forts en été et au printemps et plus faibles en hiver et en automne.

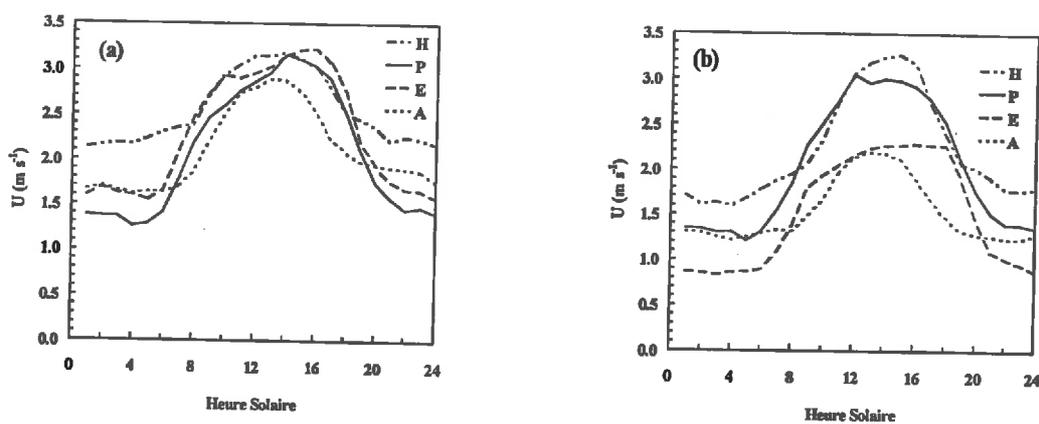


Figure VI.11. Evolution journalière de la vitesse moyenne du vent (a) à Avignon et (b) à Rennes en 1998. Légende : H, hiver ; P, printemps ; E, été ; A, automne.

Les précipitations annuelles étaient très différentes entre les deux sites en 1998, tant en quantité qu'en fréquence. Le Tableau VI.3 donne les précipitations annuelles et saisonnières et

la fréquence saisonnière des précipitations.

Tableau VI.3. Précipitations annuelles et saisonnières en mm, et fréquence de précipitation moyenne en heure/heure à Avignon et Rennes.

Site	Précipitations annuelles mm	Précipitations printemps mm	Précipitations été mm	Précipitations automne mm	Précipitations hiver mm	Fréquence journalière moyenne de précipitations pour chaque saison %			
						P	E	A	H
Avignon	476	180	119	80	57	3.8%	-1.8%	-2.3%	-2.1%
Rennes	838	218	141	275	204	9.8%	-5.7%	-11.4%	-8.1%

Le Tableau VI.3 montre que les précipitations annuelles à Rennes ont été deux fois plus importantes qu'à Avignon en 1998, mais aussi qu'elles y aient été mieux réparties dans l'année en quantités et en fréquence journalière moyenne. Au contraire à Avignon, les précipitations ont été 3 fois plus importantes au printemps qu'en hiver, et ont été en moyenne beaucoup moins fréquentes qu'à Rennes donc beaucoup plus intenses.

#### VI.3.1.3 Estimation des paramètres de la CLS à l'aide d'un modèle de bilan d'énergie

Plusieurs des paramètres essentiels du modèle sont liés aux caractéristiques de la couche limite de surface qui dépendent du couvert. Il s'agit de la température du couvert  $T_c$ , de la vitesse de frottement  $u_*$ , et de la longueur de Monin et Obukhov  $L$ . Nous avons donc utilisé un modèle de bilan d'énergie du couvert dans le but d'estimer ces paramètres. Le modèle est adapté de celui décrit en annexe de Guilioni *et al.* (1999).

Les adaptations ont principalement consisté à intégrer de nouvelles paramétrisations pour la forêt. En outre, la vitesse du vent, à 2 m au-dessus de chaque couvert, était estimée de la façon suivante : (i) la vitesse  $\bar{u}$  et la température de l'air  $T_a$  à 50 m d'altitude est estimée à partir de  $\bar{u}$  et de  $T_a$ , donnés par la station météorologique, à l'aide d'un profil logarithmique et en supposant la neutralité thermique au niveau de la station météorologique afin de simplifier le problème. Ensuite  $\bar{u}$  et  $T_a$  estimés à 50 m sont utilisés pour déterminer  $\bar{u}$  et  $T_a$  à 2 m au-dessus de chacun des couverts, en prenant cette fois en compte la stabilité thermique induite par ceux-ci.

Etant donné que les distributions de probabilité des différentes variables du modèle ne sont pas gaussiennes, nous avons estimé les valeurs de  $u_*$ ,  $T_c$  et  $L$  avec un pas de temps horaire pour ensuite estimer les moyennes saisonnières.

La Figure VI.12 montre la moyenne saisonnière de l'estimation de  $u_*$  sur forêt de chêne à Avignon et Rennes. Les courbes ont globalement la même forme que les profils de vent (Figure VI.11), mais les différences saisonnières sont plus marquées que pour le vent, en particulier à Avignon (Figure VI.12a). La vitesse de frottement est en effet plus importante en été qu'au printemps, à cause du LAI plus fort qui engendre un  $z_0$  plus grand.

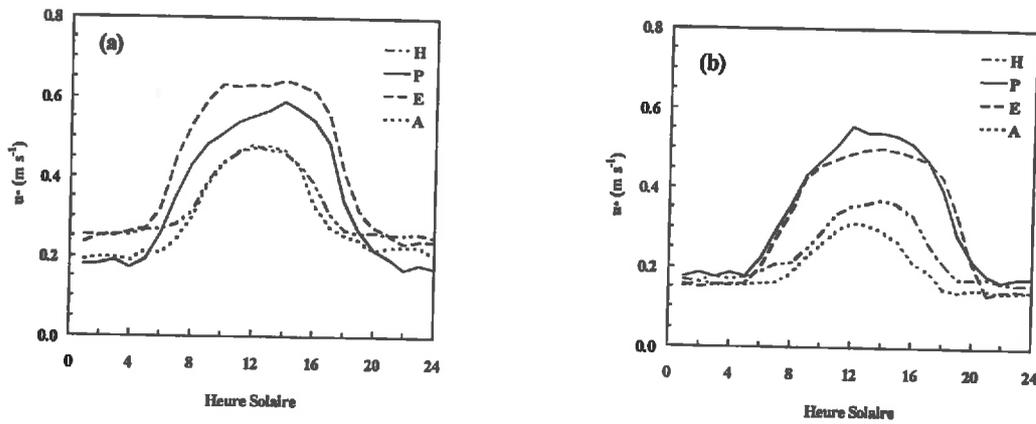


Figure VI.12. Evolution journalière de la vitesse de frottement  $u^*$ , calculée à l'aide du modèle de bilan d'énergie pour un couvert de forêt, (a) à Avignon et (b) à Rennes en 1998. Légende : H, hiver ; P, printemps ; E, été ; A, automne.

La Figure VI.13 montre les estimations du paramètre de stabilité  $1/L$  pour un couvert de forêt à Avignon et Rennes. Une valeur négative de  $1/L$  dénote une stratification instable et une valeur positive signifie que la stratification est stable. On note que l'amplitude des variations de  $1/L$  est bien plus grande à Avignon qu'à Rennes, ce qui ne fait que confirmer que le climat de Rennes est plus tempéré que celui d'Avignon. On note également que la période d'instabilité diurne diminue en hiver du fait de la diminution de la photopériode car la source d'instabilité thermique est, bien entendu, le rayonnement (voir Figure VI.8).

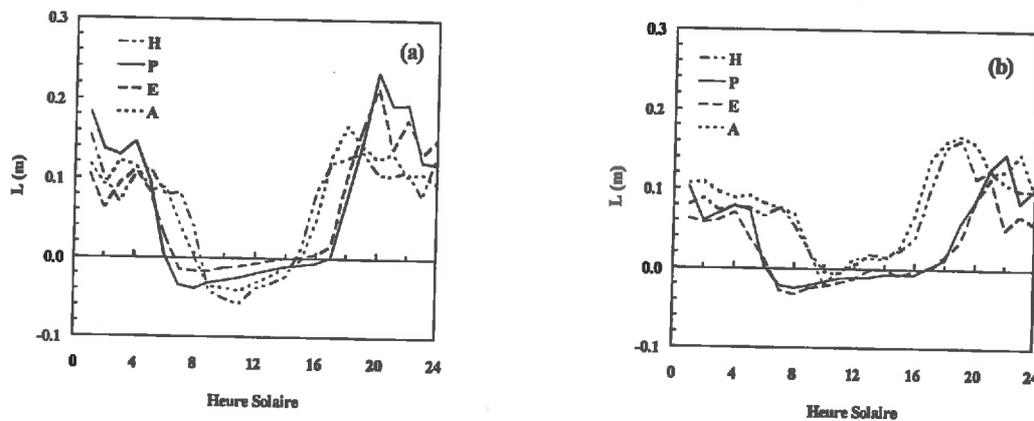


Figure VI.13. Evolution journalière du paramètre de stabilité  $z/L$  avec  $z = 1$ , calculé à l'aide du modèle de bilan d'énergie pour un couvert de forêt, (a) à Avignon et (b) à Rennes en 1998. Légende : H, hiver ; P, printemps ; E, été ; A, automne. On voit clairement les conditions instables de jour ( $z/L$  négatif), et stables de nuit (valeurs positives).

La Figure VI.13 nous indique également qu'à Avignon, les conditions en milieu de journée, sont en moyenne plus instables en hiver et en automne, qu'au printemps et en été. Cela peut être attribué au fait que l'évapotranspiration est faible en hiver sur forêt à Avignon du fait (i) de l'absence de transpiration foliaire et (ii) du faible des niveaux de précipitations hivernales à Avignon (Tableau VI.3). Par ailleurs, le fait que  $z_0$  soit plus fort en été contribue également à générer ces différences. A Rennes ce phénomène n'est pas observé, sans doute à cause des précipitations importantes au cours de l'hiver 1998.

La température du couvert ainsi que la température du sol et celle de l'air dans le couvert est également estimée par le modèle de Guilioni *et al.* (1999). La Figure VI.14 montre la différence relative entre la température de surface du couvert et la température de l'air à 2 m sur un couvert de maïs.

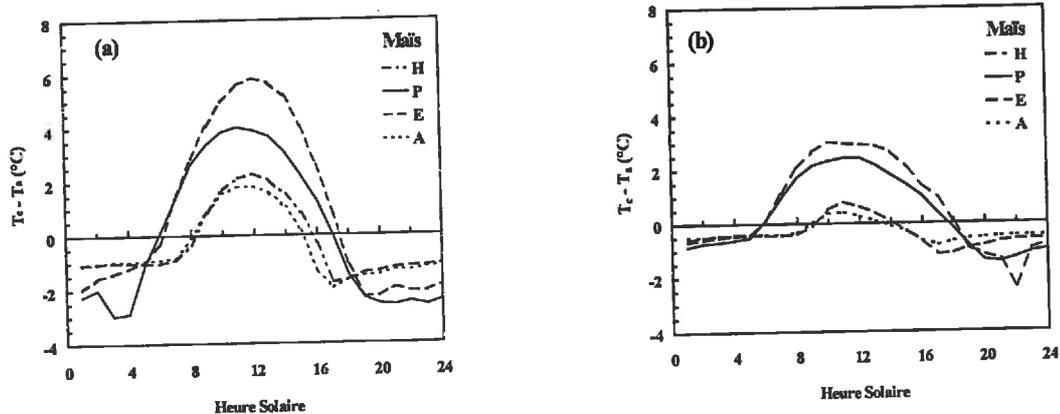


Figure VI.14. Evolution journalière de la différence entre la température du couvert  $T_c$ , calculé à partir du modèle de bilan d'énergie pour un couvert de maïs, et la température de l'air  $T_a$ , (a) à Avignon et (b) à Rennes en 1998. Légende : H, hiver ; P, printemps ; E, été ; A, automne.

La Figure VI.14 montre globalement que  $T_c - T_a$  est positif de jour et négatif de nuit. Ces variations suivent les variations de rayonnement net. On voit clairement qu'à Rennes les variations journalières sont moins importantes qu'à Avignon.

#### VI.3.1.4 Estimation des paramètres d'entrée du modèle

Les résistances du couvert  $R_b$ ,  $R_s$  et  $R_w$  ainsi que le point de compensation  $C_s$  peuvent être estimés à l'aide des paramètres  $u^*$ ,  $L$  et  $T_c$ , à partir des équations données dans le Chapitre III.

La Figure VI.15 montre la résistance stomatique du couvert pour l'ammoniac sur maïs, estimée avec l'Eqn. III.82, sans prendre en compte de stress hydrique, et en divisant par le LAI du couvert. La résistance stomatique estimée pour la forêt est équivalente, mais plus faible en journée d'automne puisque les feuilles sont encore actives alors que le maïs est déjà récolté.

C'est d'ailleurs ce qui explique les valeurs élevées de  $R_s$  en hiver et automne, puisque le maïs a été récolté. Nous supposons qu'une fois le maïs récolté, un LAI résiduel de 0.1 subsiste. C'est ce qui entraîne l'existence d'une résistance stomatique non infinie en hiver. Noter toutefois que cette résistance est environ 10 à 20 fois plus grande qu'en été et au printemps. Aucune fonction de stress hydrique n'est ici utilisée, ce qui pourrait engendrer une sous estimation de  $R_s$  en été à Avignon. A Rennes, le stress hydrique n'est sans doute pas un problème fréquent étant donné les précipitations importantes et fréquentes (Tableau VI.3).

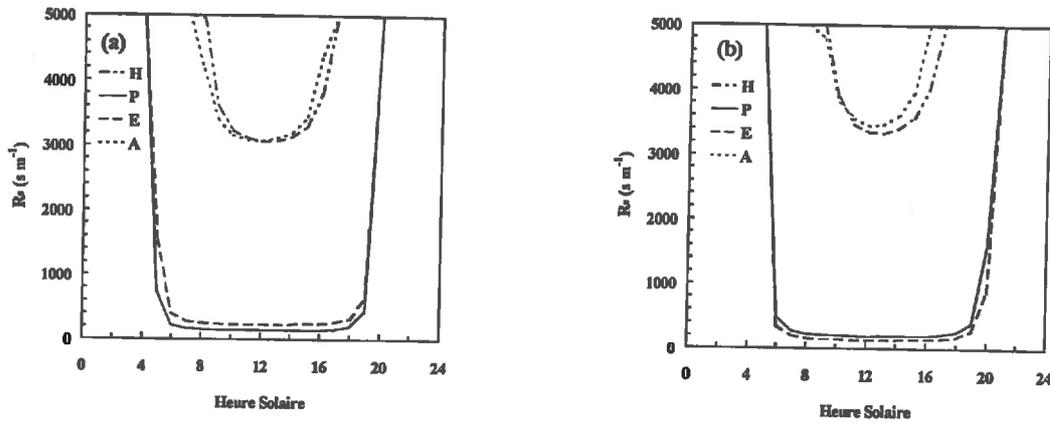


Figure VI.15. Evolution journalière de la résistance stomatique ( $R_s$ ) du maïs (a) à Avignon et (b) à Rennes en 1998. Légende : H, hiver ; P, printemps ; E, été ; A, automne.

La Figure VI.17 montre la résistance cuticulaire du couvert, estimée à partir de l'Eqn. III.80, avec  $\alpha_{rw} = 30 \text{ s m}^{-1}$  et  $\beta_{rw} = 7 \%$ , et en utilisant l'humidité relative de l'air. Ces paramètres ayant été établis sur des couverts de prairie de  $LAI = 4$  (Sutton *et al.*, 1997), la valeur de  $R_w$  est multipliée par le rapport  $4 / LAI$ . On voit sur la Figure VI.17 un effet potentiel très net du climat sur les dépôts. A Avignon,  $R_w$  tel que nous l'avons paramétré ne descend jamais en dessous de  $500 \text{ s m}^{-1}$ , alors qu'à Rennes, au printemps et en été, c'est à dire lorsque le couvert est développé,  $R_w$  est inférieure à  $500 \text{ s m}^{-1}$  en moyenne entre 22 h et 05 h.

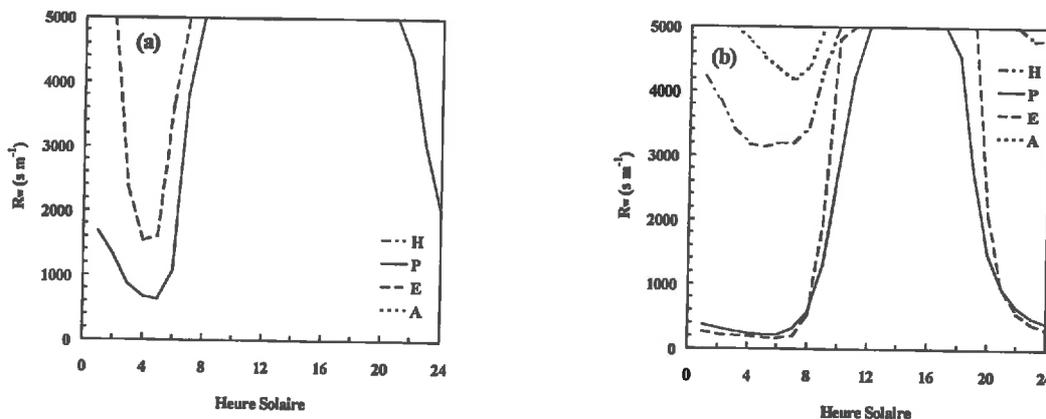


Figure VI.16. Evolution journalière de  $R_w$  pour le maïs (a) à Avignon et (b) à Rennes en 1998. Légende : H, hiver ; P, printemps ; E, été ; A, automne.

Sur forêt,  $R_w$  est plus faible en automne du fait d'une humidité relative plus importante et la présence de feuilles contrairement au maïs. La fréquence de précipitation devrait également être prise en compte dans la paramétrisation de  $R_w$ , puisque pendant et après une pluie, la surface des feuilles est humide, et la résistance  $R_w$  devrait alors tendre vers 0 (Eqn. III.80).

Nous avons donc cherché à estimer quel serait l'effet de la fréquence de précipitation sur les valeurs de  $R_w$ . Pour cela, nous avons simplement calculé la moyenne harmonique des résistances cuticulaire (i) à saturation, qui correspondent aux périodes de pluie ( $1 / R_{wmin}$ ) et (ii) à humidité ambiante, qui correspondent aux périodes non pluvieuses ( $1 / R_w$ ). Chaque

terme étant respectivement pondéré de la fréquence horaire de précipitations et de son complémentaire. Le résultat représenté sur la Figure VI.17 montre que la prise en compte des périodes pluvieuses entraîne une diminution très importante de  $R_w$  sur maïs. La variabilité observée sur les données d'Avignon traduit la faible fréquence de précipitation, qui entraîne une forte variabilité de la moyenne, excepté au printemps.

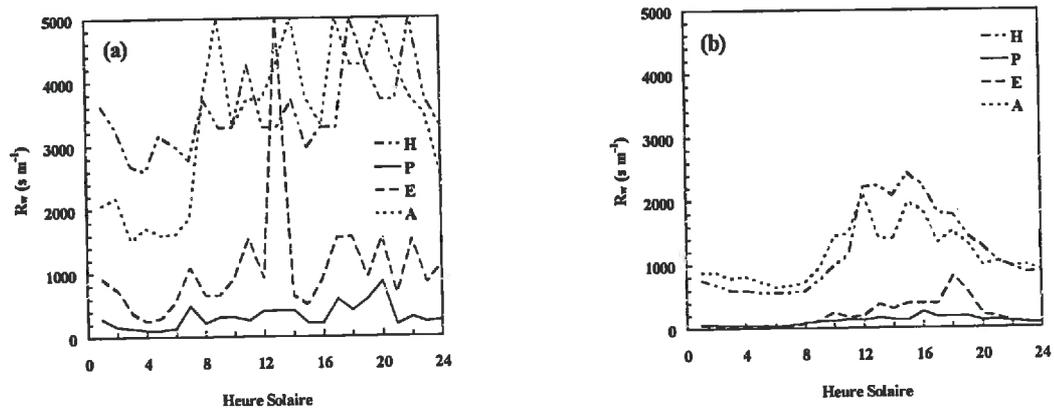


Figure VI.17. Evolution journalière de  $R_w$  avec prise en compte des précipitations (a) à Avignon et (b) à Rennes en 1998. Légende : H, hiver ; P, printemps ; E, été ; A, automne.

Le point de compensation stomatique  $C_s$  a été estimé à partir de l'Eqn. III.88. La valeur du paramètre  $\Gamma = [\text{NH}_4^+] / [\text{H}^+]$ , est fixée à 300 pour la forêt et 3000 pour le maïs, sur la base des résultats de la bibliographie (Tableau II.14) et des résultats de Loubet *et al.* (1999b) (Figure IV.28). La Figure VI.18 montre l'évolution journalière de  $C_s$ . On voit que le point de compensation est environ deux fois plus élevé en été qu'au printemps, et qu'il est très faible en automne.

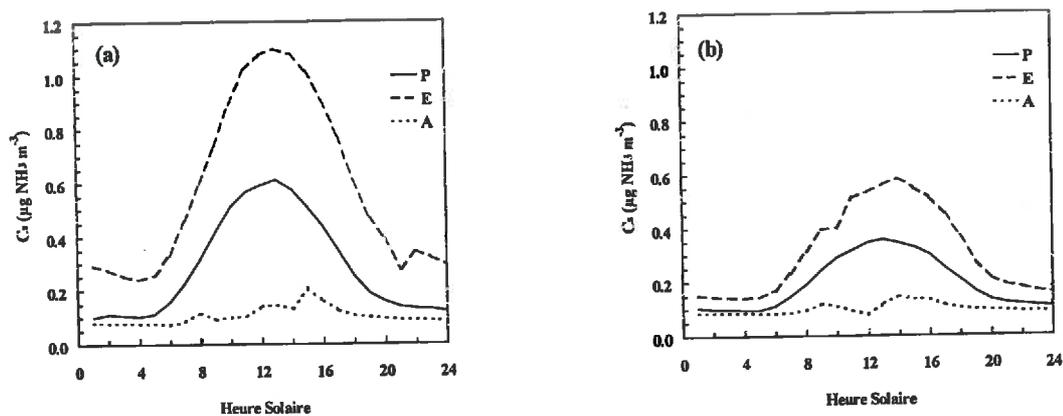


Figure VI.18. Evolution journalière du point de compensation stomatique pour la forêt,  $C_s$ . Moyennes saisonnières (a) à Avignon et (b) à Rennes en 1998. Ici  $\Gamma$  est égal à 300. Légende : P, printemps ; E, été ; A, automne. En hiver, il n'y a pas de point de compensation puisqu'il n'y a plus de feuilles.

Le point de compensation étant une fonction exponentielle de la température, il est très sensible aux variations saisonnières, et il est très différent à Avignon et à Rennes. Nous avons pris un  $\Gamma$  constant, mais celui-ci varie au cours de l'année en relation avec le cycle végétatif (Schjørring, 1997 ; Loubet *et al.*, 1999b), mais est également lié aux caractéristiques du sol, à

travers la présence de nutriments (Loubet *et al.*, 1999b).

#### VI.3.1.5 Méthode d'estimation des dépôts

Les données météorologiques, et les paramètres en découlant ont été utilisés comme variables d'entrée de notre modèle de dépôt afin d'estimer les dépôts locaux. Pour des problèmes de coût numérique, nous n'avons pas réalisé les simulations de chacune des moyennes horaires pour chaque saison. Afin de reproduire au mieux la variabilité diurne des paramètres et variables d'entrée, nous avons découpé chaque journée moyenne en trois périodes : nuit, 21 h - 6 h, matinée 6h - 12 h, et après-midi 12 h - 21 h. Afin de garder les valeurs les plus représentatives de chaque période, nous avons estimé chaque paramètre et variable d'entrée par sa médiane sur la période considérée. En effet, lorsqu'une distribution n'est pas gaussienne, comme par exemple une distribution log-normale, la moyenne arithmétique peut n'être pas du tout représentative des conditions les plus probables. La médiane est plus représentative.

Un cycle annuel entier a ainsi été simulé pour la forêt à Rennes. Afin de comparer l'effet des autres couverts et du climat, les simulations sur maïs et forêt ont été réalisées sur la saison végétative, printemps et été. Les variables et paramètres d'entrée sont données dans le Tableau VI.4.

Tableau VI.4. Paramètres et variables d'entrée du modèle pour chacune des 30 séries de simulation. Pour chaque saison, trois périodes sont définies correspondant à des situations d'échange contrastées. Les valeurs données ici sont les médianes calculées à partir des valeurs horaires pour chaque saison.

Couvert / Site	Série	Saison	Période	LAI m <sup>2</sup> m <sup>-2</sup>	h m	z <sub>0</sub> m	d m	u* m s <sup>-1</sup>	L m	PAR W m <sup>-2</sup>	RH %	T <sub>c</sub> °C
Forêt / Rennes	1	P	21h - 6h	2.8	10.0	0.53	5.3	0.13	12	0	92%	9.0
	2	P	6h - 12h	2.8	10.0	0.53	5.3	0.36	-72	83	86%	14.4
	3	P	12h - 21h	2.8	10.0	0.53	5.3	0.46	-127	96	72%	16.2
	4	E	21h - 6h	5.0	10.0	0.75	7.5	0.14	11	0	91%	12.6
	5	E	6h - 12h	5.0	10.0	0.75	7.5	0.34	-50	96	84%	19.0
	6	E	12h - 21h	5.0	10.0	0.75	7.5	0.43	-107	117	63%	21.1
	7	A	21h - 6h	1.8	10.0	0.43	4.3	0.15	-165	0	91%	7.5
	8	A	6h - 12h	1.8	10.0	0.43	4.3	0.21	-170	33	89%	8.3
	9	A	12h - 21h	1.8	10.0	0.43	4.3	0.22	-118	41	81%	9.8
	10	H	21h - 6h	0.5	10.0	0.30	3.0	0.10	11	0	95%	5.5
	11	H	6h - 12h	0.5	10.0	0.30	3.0	0.18	13	8	95%	6.6
	12	H	12h - 21h	0.5	10.0	0.30	3.0	0.25	16	32	81%	8.3
Maïs / Rennes	13	P	21h - 6h	1.5	0.8	0.08	0.5	0.08	8	0	92%	9.0
	14	P	6h - 12h	1.6	0.8	0.08	0.5	0.22	-31	83	86%	13.7
	15	P	12h - 21h	1.5	0.8	0.08	0.5	0.26	-153	125	72%	15.6
	16	E	21h - 6h	2.3	1.1	0.11	0.8	0.06	3	0	91%	12.4
	17	E	6h - 12h	2.2	1.1	0.11	0.7	0.18	-16	96	84%	18.9
	18	E	12h - 21h	2.2	1.1	0.11	0.7	0.24	-138	140	63%	21.4
Maïs / Avignon	19	P	21h - 6h	2.0	1.0	0.10	0.7	0.07	3	0	83%	9.4
	20	P	6h - 12h	2.1	1.0	0.10	0.7	0.21	-21	187	58%	19.3
	21	P	12h - 21h	2.0	1.0	0.10	0.7	0.28	-159	179	47%	19.4
	22	E	21h - 6h	1.4	0.7	0.07	0.5	0.06	6	0	71%	18.1
	23	E	6h - 12h	1.2	0.6	0.06	0.5	0.24	-14	236	49%	26.8
	24	E	12h - 21h	1.4	0.7	0.07	0.5	0.26	-122	198	40%	28.8
Forêt / Avignon	25	P	21h - 6h	2.8	10.0	0.53	5.3	0.11	4	0	83%	10.1
	26	P	6h - 12h	2.8	10.0	0.53	5.3	0.35	-47	187	58%	19.6
	27	P	12h - 21h	2.8	10.0	0.53	5.3	0.43	-74	151	43%	20.3
	28	E	21h - 6h	5.0	10.0	0.75	7.5	0.14	4	0	71%	18.5
	29	E	6h - 12h	5.0	10.0	0.75	7.5	0.47	-147	236	49%	25.5
	30	E	12h - 21h	5.0	10.0	0.75	7.5	0.49	-108	187	35%	27.0

La source est considérée constante au cours de l'année, afin d'une part de comparer les situations en s'affranchissant d'une variabilité supplémentaire, et d'autre part de reproduire des conditions d'émission à peu près équivalentes à celles d'un bâtiment d'élevage. La source est considérée émettre depuis une plage située entre 4 m et 5 m au-dessus du sol. Cela veut notamment dire que pour la forêt, la source se trouve à l'intérieur alors qu'elle est bien au-dessus du couvert dans le cas du maïs. Cela nous permettra de comparer également ces deux situations.

Le débit de source est fixé à 4000 kg a<sup>-1</sup>, ce qui correspond à une émission moyenne pour un bâtiment d'élevage (Pitcairn *et al.*, 1998). Afin d'estimer un terme source linéique (par unité de largeur) équivalent, nous avons rapporté ce débit de source à la largeur typique d'un bâtiment de taille moyenne (40 m). Cela correspond à une émission linéique de 3170 µg NH<sub>3</sub> m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>. Ce choix est arbitraire, mais il s'avère que les concentrations simulées sur maïs sont dans les gammes classiquement observées.

### VI.3.2 Résultats - discussion

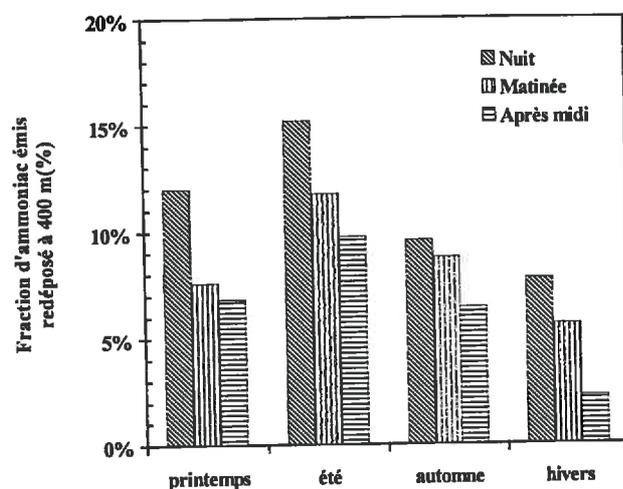
#### VI.3.2.1 Variabilité annuelle des dépôts sur forêt

La Figure VI.19 montre l'évolution annuelle des dépôts cumulés à 400 m de la source, en pourcentage des émissions, dans le cas de la forêt à Rennes. Pour chaque saison, trois estimations sont données, correspondant aux périodes journalières définies ci-dessus : nuit, matinée, et après-midi. Globalement, les dépôts moyens simulés à Rennes sur forêt varient entre 2% l'après-midi en hiver et 15% la nuit en été.

Ces estimations correspondraient à des dépôts moyens équivalents de 7 kg NH<sub>3</sub> jour<sup>-1</sup> et 52 kg NH<sub>3</sub> jour<sup>-1</sup> sur un périmètre de 400 m autour de la source, soit des dépôts annuels variant entre 50 kg NH<sub>3</sub> ha<sup>-1</sup> a<sup>-1</sup> et 375 kg NH<sub>3</sub> ha<sup>-1</sup> a<sup>-1</sup>. Ces quantités sont certainement excessives, et de 2 à 20 fois plus élevées que les estimations de Pitcairn *et al.* (1998) basées sur des mesures de concentration. Le modèle surestime très certainement les dépôts du fait (i) que la source se trouve dans le couvert, (ii) que le modèle soit en 2 dimensions et (iii) que la saturation de la plante n'est pas prise en compte (Voir discussion ci-dessus § VI.2.2.5 ; Tableau VI.1).

Les estimations sur maïs (voir plus loin) sont sans doute plus proches de la réalité car la source étant à l'extérieur du couvert, la concentration dans le couvert ne dépasse pas les seuils de saturation estimés dans le Tableau VI.1.

Les dépôts sont en moyenne plus forts en été et plus faibles en hiver. Cette tendance annuelle s'explique en premier lieu par le fait que le LAI est maximal en été et minimal en hiver (Tableau VI.4). Les dépôts observés en été correspondent donc essentiellement à de l'absorption foliaire, tandis qu'en hiver il ne s'agit que de dépôt cuticulaire. On note d'ailleurs que le dépôt hivernal est relativement important.



**Figure VI.19.** Evolution annuelle de la fraction d' $\text{NH}_3$  déposée à 400 m en aval de la source, sur forêt de chêne à Rennes. Les estimations sur les différentes périodes ont été réalisées à partir des valeurs médianes entre 21h et 6h (Nuit), 6h et 12h (Matinée) et 12h et 21h (Après-midi).

On constate que la variabilité journalière des dépôts évolue au cours de l'année : l'écart entre dépôts de nuit et de jour sont plus importants en été et au printemps qu'en automne et en hiver. A l'inverse, les différences de dépôts entre matinée et après-midi sont plus marquées en hiver qu'en automne, en été ou au printemps.

L'origine de ces différences est multiple. D'une part, les variations diurnes d'humidité relative de l'air sont plus importantes en été et au printemps (Figure VI.10b) qu'en automne et en hiver, principalement à cause de l'augmentation de température de l'air (Figure VI.9b). Cette variation d'humidité relative entraîne une variation de la résistance cuticulaire qui agit sur le dépôt sec.

Les variations diurnes de la vitesse de frottement  $u_*$  sont, elles aussi plus importantes au printemps et en été que pendant les autres saisons, puisqu'il y a plus de frottement lorsque le  $LAI$  est plus grand (Figure VI.12b). Cela est susceptible d'entraîner d'importantes variations du dépôt comme nous l'indique la Figure VI.4b.

Enfin, le point de compensation stomatique  $C_s$ , varie d'un facteur 3 au cours d'une journée d'été alors qu'il reste constant en automne, et qu'il est nul en hiver lorsque les feuilles sont tombées (Figure VI.18). Ce cycle diurne de  $C_s$  a tendance à diminuer les dépôts de jour et à les accroître de nuit. Toutefois le point de compensation de la forêt est très faible ( $\Gamma = 300$ ) et a peu d'influence sur le dépôt à proximité d'une source où la concentration atmosphérique est de quelques dizaines de  $\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$ .  $C_s$  doit en revanche jouer un rôle important dans le cas du maïs, dont le point de compensation est 10 fois plus élevé ( $\Gamma = 3000$ ).

On peut donc principalement attribuer la variabilité nuit/jour du dépôt observé au printemps et en été, aux variations de  $u_*$  et  $r_w$ . Ces deux paramètres de la couche de surface dépendent (i) de  $z_0$  et donc du  $LAI$  (pour  $u_*$ ), (ii) à nouveau du  $LAI$  pour  $r_w$  puisque la surface

réceptrice augmente lorsqu'il y a plus de feuille, et (iii)  $r_w$  dépend aussi de l'humidité relative  $HR$  dont les variations sont en grande partie induites par les changements de température de l'air  $T_a$ . Enfin, (iv)  $C_s$  dépend de  $T_c$ , dont les variations journalières sont induites par le rayonnement global, limitées par la transpiration de la plante qui dépend du LAI et est liée à  $T_a$ .

### VI.3.2.2 Comparaison des dépôts à Rennes et Avignon : influence du climat et du couvert

La Figure VI.20 compare les fractions déposées à 400 m en aval de la source à Avignon et Rennes au printemps et en été sur forêt. On constate que les dépôts sont très comparables pendant la journée sur les deux périodes, mais sont beaucoup plus faible de nuit à Avignon qu'à Rennes. De plus, à Avignon, les dépôts sont, en moyenne, plus faibles de nuit que de jour alors que c'est le contraire à Rennes.

Le fait que les dépôts soient égaux de jour à Avignon et Rennes montre que l'absorption stomatique est comparable dans les deux cas malgré un rayonnement plus important à Avignon (Figure VI.8a,b). Nous n'avons cependant pas tenu compte du stress hydrique qui aurait tendance à limiter les échanges stomatiques en milieu de journée, et donc à diminuer les dépôts à Avignon en été. Quoi qu'il en soit, dans notre simulation, les échanges stomatiques sont comparables.

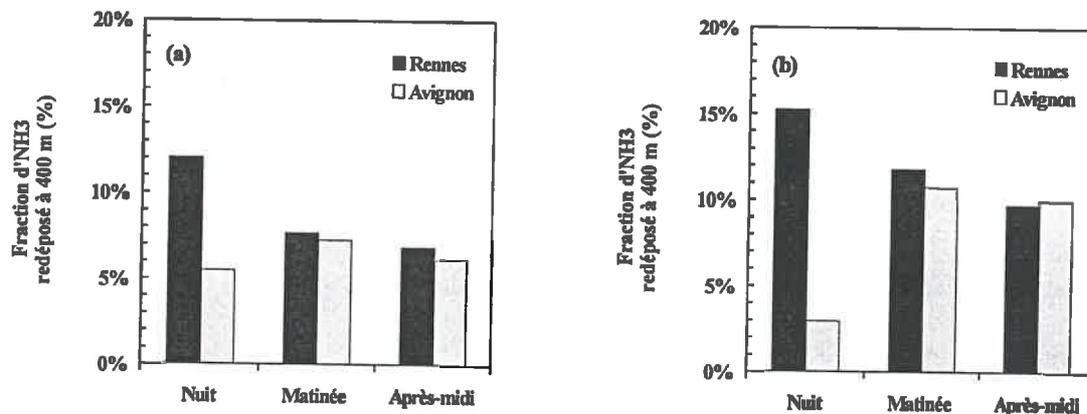


Figure VI.20. Comparaison des dépôts secs sur forêt de chêne à Rennes et Avignon (a) au printemps et (b) en été. Aucun stress hydrique n'est pris en compte dans ces simulations

Deux raisons permettent d'expliquer les différences de dépôts observés de nuit sur la Figure VI.20. Le point de compensation ne peut être à l'origine de ces différences, puisqu'il est de beaucoup plus faible que les concentrations dans le couvert la nuit, qui sont de plusieurs dizaines de  $\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$  (Figure VI.18) La vitesse de frottement  $u_*$  ne peut non plus être à l'origine de ces différences puisque de nuit les valeurs sont comparables entre Avignon et Rennes (Figure VI.12).

En revanche, de nuit, la stabilité étant plus forte à Avignon qu'à Rennes (Figure VI.13), elle aurait, d'après la Figure VI.5, tendance à diminuer les dépôts à Avignon. En effet, de nuit,

le paramètre de stabilité est en moyenne deux à trois fois plus élevé à Avignon qu'à Rennes (Figure VI.13), ce qui se retrouve sur ses valeurs médianes utilisées dans cette simulation (Tableau VI.4).

La résistance cuticulaire est l'autre terme expliquant les différences observées entre Avignon et Rennes. Etant une fonction exponentielle de l'humidité relative, elle est en effet bien plus faible à Rennes qu'à Avignon. Pour la forêt,  $r_w$  est comparable à celle du maïs présenté sur la Figure VI.16, mais est plus faible en automne et hiver, car les branches contribuent au dépôt. On voit sur le Tableau VI.4 que l'humidité relative est de 91% à Rennes et 71% à Avignon, de nuit, pour les séries considérées (séries 4 et 28). La résistance cuticulaire par unité de surface de feuille correspondante est respectivement de  $110 \text{ s m}^{-1}$  et  $1890 \text{ s m}^{-1}$  à Rennes et Avignon. Ces valeurs de  $R_w$  expliquent les différences de dépôt observées entre Avignon et Rennes. La Figure VI.20 confirme donc à nouveau le caractère stomatique des échanges de jour, et cuticulaire des dépôts de nuit sur forêt.

La figure VI.21 montre la comparaison entre dépôts sur maïs à Rennes et Avignon au printemps et en été. On constate avant tout que les quantités déposées sont environ 10 à 20 fois inférieures à celles estimées sur forêt pendant les mêmes périodes (Figure VI.20). En utilisant la méthode d'estimation précédente, on trouve que les dépôts annuels sont compris entre  $5 \text{ kg NH}_3 \text{ ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  et  $35 \text{ kg NH}_3 \text{ ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  sur les 400 m entourant la source. Ces valeurs sont bien plus réalistes, et sont comparables à celles de Pitcairn *et al.* (1998). Cela montre à nouveau le rôle très important de la position de la source relativement au couvert dans le déterminisme du dépôt sec local.

Au printemps, les variations diurnes du dépôt sur maïs à Rennes et Avignon sont qualitativement identiques entre elles (Figure VI.21a). Les dépôts sont plus importants de nuit et diminuent le jour. Par ailleurs, on retrouve des dépôts plus faibles de nuit à Avignon qu'à Rennes pour les mêmes raisons que sur forêt, c'est à dire la différence de résistance cuticulaire engendrée par la différence d'humidité relative entre les deux types de climats.

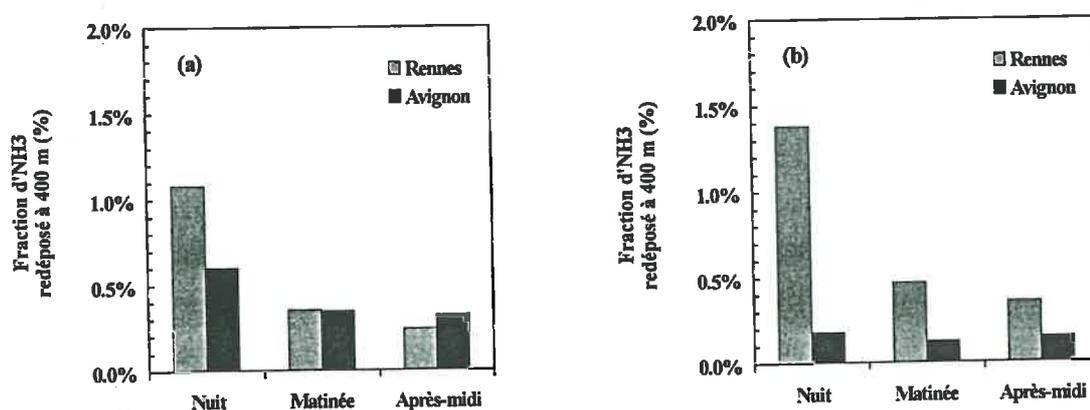


Figure VI.21. Comparaison des dépôts secs sur maïs à Rennes et Avignon (a) au printemps et (b) en été.

Mais on note surtout sur la Figure VI.21b, que contrairement à la Figure VI.21a, en été,

les dépôts de jour à Avignon sont bien moins importants qu'à Rennes. Une première explication vient de la différence entre  $LAI$ , qui pourrait expliquer jusqu'à 30% de l'écart. Mais ici, c'est surtout la température du couvert, qui à travers le point de compensation entraîne des différences de flux. En effet, il y avait en moyenne plus de  $7^{\circ}\text{C}$  d'écart entre la température du couvert en été à midi à Avignon et à Rennes en 1998 (Figures VI.9 et VI.14, Tableau VI.4). Cet écart de température engendre des points de compensation respectifs à Rennes et Avignon de  $13$  et  $34 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$  durant la matinée et de  $22$  et  $42 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$  l'après-midi. Or la concentration maximale dans le couvert est de  $150 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$  à  $50$  m de la source, et elle n'est que de quelques dizaines de  $\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$  à  $400$  m. Le point de compensation d'environ  $40 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$  observé à Avignon en milieu de journée va donc très fortement limiter les dépôts, voire engendrer des émissions. Sur forêt,  $\Gamma$  étant 10 fois plus faible,  $C_s$  n'a que peu de poids dans le contrôle des flux.

Cette discussion met en exergue l'importance fondamentale (i) de la position de la source sur les dépôts, puisque les différences engendrées sont d'un facteur 10 à 20, suivant que la source est au-dessus ou dans le couvert (Figure VI.20 et VI.20). Nous avons également montré l'importance (ii) de la résistance cuticulaire  $r_w$  dans le contrôle des flux la nuit, et (iii) de la résistance stomatique dans le contrôle des flux de jour. Enfin, nous avons vu l'importance (iv) du point de compensation stomatique  $C_s$  dans le contrôle des flux de jour, pour un couvert de maïs fertilisé (Figure VI.20b). Lorsque  $\Gamma$  est important, il entraîne des différences très marquées des flux diurnes entre des situations climatiques tempérées et méditerranéennes. Le stress hydrique, non pris en compte ici, aurait pour effet d'accroître ces différences en limitant la résistance stomatique.

#### VI.4 Conclusion

(1) La hauteur de la source relativement au couvert influence très fortement la concentration d' $\text{NH}_3$  dans le couvert, et donc les dépôts. On distingue deux cas : (i) lorsque la source est dans le couvert, le dépôt augmente avec la hauteur du couvert car le panache reste plus longtemps au contact du couvert, et (ii) lorsque la source est au-dessus, le dépôt lorsque la distance entre la source et le couvert diminue. Des variations de hauteur du couvert entre  $10$  cm et  $2.5$  m engendrent une augmentation des dépôts cumulés sur  $250$  m de  $2\%$  à  $5\%$  pour une source placée au-dessus, et de  $8$  à  $12\%$  pour une source placée dans le couvert

La vitesse du vent influe aussi beaucoup sur le dépôt local. Si la source est localisée près de la surface, lorsque la vitesse du vent double, tout autre paramètre égal par ailleurs, le dépôt diminue d'un facteur 1.5 environ. Ce résultat est contraire aux résultats classiques du dépôt sec (non local), et cela est dû au fait que la source est près de la surface. En effet dans ce cas, un accroissement de la vitesse du vent engendre une augmentation de la diffusion turbulente, ce qui a pour conséquence de diminuer la concentration de surface, et donc les dépôts.

Lorsque tous les autres paramètres sont constants par ailleurs, les stratifications stables

et instables de la CLS entraînent toutes deux une diminution du dépôt cumulé à 50 m. Celle-ci est faible comparée aux variations engendrées par les modifications de la vitesse du vent. En condition instable, cette diminution est due à l'augmentation de la turbulence et en conditions stables, cela est dû à la diminution des transferts turbulents.

Par ailleurs, les dépôts cumulés à 50 m de la source sont quasiment proportionnels à la conductance stomatique du couvert. En revanche l'effet de ce dépôt sur la concentration moyenne dans le couvert est négligeable près de la source.

Les dépôts estimés par le modèle sont souvent très importants près de la source. Or l'estimation de la capacité d'absorption et de métabolisation du maïs montre que de tels dépôts engendrerait une saturation de l'apoplasme, et peut-être aussi de la surface de la feuille. Cela indique donc qu'il serait nécessaire de modifier les paramétrisations du dépôt pour prendre en compte une telle saturation.

(2) L'analyse de l'évolution journalière et annuelle des paramètres  $R_w$  et  $C_s$  pour deux situations climatiques contrastées (Avignon et Rennes en 1998) indique que (i)  $R_w$  est plus faible d'un facteur 2 à 3 à Rennes qu'à Avignon, et (ii) que  $C_s$  est plus grand d'environ un facteur 2 à Avignon qu'à Rennes. Par ailleurs, la prise en compte de la fréquence de précipitation dans l'estimation de  $R_w$ , en décroît énormément la valeur journalière à Rennes, mais également à Avignon au printemps.

L'estimation des dépôts locaux saisonniers sur forêt avec les données climatiques de Rennes montre qu'ils sont les plus importants en été, lorsque le LAI est maximal, et les plus faibles en hivers, quand l'arbre a perdu ses feuilles. Les dépôts cumulés à 400 m sur forêt varient est de 2% à 15% des quantités émises.

Les dépôts sur forêt à Rennes sont maximums la nuit et minimum l'après-midi, du fait de la faible résistance cuticulaire de nuit dans ce climat humide. Ces variations journalières sont importantes. En revanche, à Avignon les dépôts sont minimums de nuit. Cela traduit le fait qu'avec le climat sec d'Avignon, les flux soient limités par l'ouverture stomatique, alors qu'en conditions humides, c'est le dépôt cuticulaire qui domine le dépôt de nuit.

Sur maïs, les dépôts cumulés à 400 m de la source varient entre 0.2 et 1.5 % des quantités émises. Ces valeurs sont bien plus faibles que celles obtenues sur forêt mais elles sont réalistes. Les différences sont dues à la position de la source qui est située au-dessus du couvert de maïs, mais dans le couvert de forêt.

A Rennes, le dépôt sur maïs présente les mêmes caractéristiques saisonnières et journalières que sur forêt : dépôt maximal en été, et de nuit. En revanche, à Avignon, contrairement au dépôt sur forêt, les dépôts sont plus importants la nuit. De plus, ils sont plus forts au printemps qu'en été où ils sont deux fois plus faibles qu'à Rennes. Cette variabilité journalière et saisonnière est due au point de compensation qui atteint  $40 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$  en

milieu de journée à Avignon et seulement  $20 \mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$  à Rennes.

Cette étude montre que le climat entraîne des variations importantes des dépôts locaux, et que ces variations sont engendrées par les paramètres  $R_w$  et  $C_s$ , qui sont aujourd'hui mal connus.

## VI.5 Bibliographie

- Akkal N., 1998: Pilotage de la fertilisation azotée du blé d'hiver sur la base d'une évaluation précoce de la réflectance radiométrique ou du taux de couverture du sol en vue d'une application à l'agriculture de précision. Thèse de doctorat, INA-PG.
- Asman W.A.H., 1998: Factors influencing local dry deposition of gases with special reference to ammonia. *Atmos. Environ.*, **32**(3): 415-421.
- Asman W.A.H., Pinksterboer E.F., Maas J.F.M, Erisman J.-W., Waijers-Ypelaan 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.
- Brunet Y., Collineau S., 1994: Wavelet analysis of diurnal and nocturnal turbulence above a maize crop. In *Wavelets in Geophysics*, Foufoula-Georgiou and P. Kumar Eds., Academic Press, New York, pp. 129-150.
- Burkhardt J., Eiden R., 1994: Thin water films on coniferous needles (With an Appendix "A new device for the study of water vapour condensation and gaseous deposition to plant surfaces and particle samples" by J. Burkhardt and J. Gerchau). *Atmos. Environ.*, **28**(12): 2001-2017.
- Burkhardt J., Kaiser H., Goldbach H., Kappen L., 1999: Measurements of electrical leaf surface conductance reveal recondensation of transpired water vapour on leaf surfaces. *Plant, Cell and Environ.*, **22**: 189-196.
- Flécharde C.R., 1998: Turbulent exchange of ammonia above vegetation. Thèse, Nottingham University.
- Flécharde C.R., Fowler D., 1998: Atmospheric ammonia at a moorland site. II: Long-term surface-atmosphere micrometeorological flux measurements. *Quart. J. R. Met. Soc.*, **124**: 759-791.
- Fowler D., Duyzer J.H., Baldocchi D.D., 1991: Inputs of trace gases, particles and cloud droplets to terrestrial surfaces. *Proc. Roy. Soc. Edinburgh*, **97B**: 35-59.
- Fowler D., Pitcairn C.E.R., Sutton M.A., Flecharde C., Loubet B., Coyle M., Munro R.C., 1998: The mass budget of atmospheric ammonia within 1 km of livestock buildings and deposition patterns within adjacent woodland. *Environ. Pollut.*, **102**(S1): 343-348.
- Génermont S., Cellier P., 1997: A mechanistic model for estimating ammonia volatilisation from slurry applied to a bare soil. *Agricultural and Forest Meteorol.*, **88**: 145-167.
- Glorennec P., Jouan M., Le Goaster C., Sauvaget G., Morvan T., Cellier P., Génermont S., Masson S., Loubet B., 1999: Evaluation du risque sanitaire lié aux expositions environnementales à l'ammoniac atmosphérique en zone rurale. Rapport de la Cellule Inter Régionale d'Epidémiologie (CIRE).
- Grundmann G.L., Lensi R., Chalamet A., 1993: Delayed  $\text{NH}_3$  and  $\text{N}_2\text{O}$  uptake by maize leaves. *New Phytol.*, **124**: 259-263.
- Guiloni S. Cellier P., 1999: A model to estimate the temperature of maize apex from meteorological data. *Agricultural and Forest Meteorology*, 1999: à paraître.
- Heinz S., Schaller E., 1996: On the influence of non-gaussianity on turbulent transport. *Boundary-Layer Meteorology*, **81**: 147-166.
- Jacobs A.F.G., van Boxel J.H., El-Kilani R.M., 1994b: Night-time free convection characteristics within a plant canopy. *Boundary-Layer Meteorology*, **71**: 375-391.
- Jacobs A.F.G., van Pul A., El-Kilani R.M.M., 1994a: Dew formation and the drying process within a maize

- canopy. *Boundary-Layer Meteorology*, **69**: 367-378.
- Leclerc M.Y., Beisner K.C., Shaw R.H., den Hartog G., Neumann H.H., 1991: The influence of buoyancy on third-order turbulent velocity statistics within a deciduous forest. *Boundary-Layer Meteorology*, **55**: 109-123.
- Loubet B., Cellier P., Milford C., Sutton M., 1999a: Short range ammonia deposition: investigating the effect of vegetation structure on local recapture. In *rapport du "10<sup>th</sup> Nitrogen Workshop"*, Vo. 1, Copenhague, 23-27 Aout 1999.
- Loubet B., Cellier P., 1999: Modèle de dépôt sec d'ammoniac atmosphérique à proximité des sources. In *Compte rendus de l'atelier de modélisation de l'atmosphère*, Toulouse 29 Novembre - 2 Décembre 1999.
- Loubet B., Hill P.W., Milford C., Sutton M., Tang Y.S., Cellier P., 1999b: Apoplastic, bulk ammonium and pH in leaves of *Lolium Perenne* L. and *Zea Mays* L. Effects of management practices and fertilisation. *En préparation*, voir annexe B.
- Mattson M., Schjørring J.K., 1996: Ammonia emission from young barley plants: influence of N source, light/dark interaction and inhibition of glutamine synthase. *J. Exp. Bot.*, **47(297)**: 477-484.
- Pitcairn C.E.R., Leith I.D., Sheppard L.J., Sutton M.A., Fowler D., Munro R.C., Tang S., Wilson D., 1998. The relationship between nitrogen deposition, species composition and foliar nitrogen concentrations in woodland flora in the vicinity of livestock farms. *Environ. Pollut.*, **102(S1)**: 41-48.
- Quilbé R., 1998: Développement d'un modèle de bilan hydrique en relation avec les risques d'émission du protoxyde d'azote (N<sub>2</sub>O). Mémoire de fin d'étude. INRA, Bioclimatologie, Grignon.
- Rauner J.U., 1977: Deciduous Forests. In *vegetation and the atmosphere vol. 2*, J.L. Monteith Ed., Academic Press, 439 pp.
- Ripley E.A., Redmann R.E., 1977: Grassland. In *vegetation and the atmosphere vol. 2*, J.L. Monteith Ed., Academic Press, 439 pp.
- Schjørring J.K., 1991: Ammonia emission from foliage of growing plants. In *Trace Gas Emissions by Plants*, Academic Press inc.
- Schjørring J.K., 1997: Plant-Atmosphere Ammonia Exchange. Quantification, Physiology regulation and interaction with environmental factors. *D.Sc. Degree*, Royal Veterinary and Agricultural University, Copenhagen, Denmark: 55p.
- Seinfeld J.H., Pandis S.N., 1998: Atmospheric Chemistry and Physics. From air pollution to climate change. Wiley-Interscience. pp 1326.
- Sommer S.G., Jensen E.S., 1991: Foliar absorption of atmospheric ammonia by ryegrass in the field. *J. Env. Qual.*, **20(1)**: 153-156.
- Sutton M.A., Asman W.A.H., Schjørring J.K., 1994: Dry deposition of reduced nitrogen. *Tellus*, **46B**: 255-273.
- Sutton M.A., Burkhardt J.K., Guerin D., Fowler D., 1995b: Measurement and modelling of ammonia exchange over arable croplands. In *Acid Rain Research: Do we have enough answers?*, Eds. Heij G.J., Erisman J.W., Elsevier Science BV. p71-80.
- Sutton M.A., Milford C., Dragosist 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(S1)**: 349-361.
- Sutton M.A., Milford C., Dragosits U., Singles R., Fowler D. Ross C., Hill. R., Jarvis S.C., Pain B.F., Moss D., Webb J. Espenhahn S., Halliwell C., Lee D.S., Wyers G.P., Hill J., ApSimon H.M., 1997 : Gradient of atmospheric ammonia concentrations and deposition downwind of ammonia emissions: first results of the ADEPT Burrington Moor Experiment. In : *Gaseous exchange with grassland systems*. (Eds Pain B.P. and Jarvis S.C.) CAB International.

- Sutton M.A., Schjørring J.K., Wyers G.P., 1995b: Plant-atmosphere exchange of ammonia. *Phil. Trans. Roy. Soc. Lond. A*, **351**: 261-278.
- Tuzet A., Perrier A., Leuning R., Perseone E., 1999: Déterminisme de la conductance stomatique dans un modèle de masse (H<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub>) et d'énergie. In *Atelier de modélisation de l'atmosphère*, Toulouse, 29 Novembre, 2 Octobre 1999, 328 pp.
- Wyers G.P., Erisman J.-W., 1998: Ammonia exchange over coniferous forest. *Atmos. Environ.*, **32(3)**: 441-451.
- Yin Z.-H., Kaiser W.M., Heber U., Raven J.A., 1996: Acquisition and assimilation of gaseous ammonia as revealed by intercellular pH changes in leaves of higher plants. *Planta*, **200**: 380-387.



## VII. CONCLUSIONS GÉNÉRALES

(1) Le dépôt sec d'ammoniac gazeux à proximité des source résulte de la combinaison (i) du processus de dispersion dans la couche limite de surface (CLS), (ii) de l'échange turbulent à l'interface entre la végétation et l'atmosphère, et (iii) de l'absorption foliaire d'ammoniac et de son dépôt sur les cuticules.

La dispersion dans la CLS est un processus de diffusion turbulente qui dépend principalement de la vitesse de frottement ( $u_*$ ) et de la stratification thermique ( $L$ ). Ces paramètres sont modifiés par les caractéristiques de la surface, et en premier lieu la hauteur du couvert  $h$ .

L'échange d' $\text{NH}_3$  entre la plante et l'atmosphère s'effectue selon deux voies : (i) une voie stomatique, dont l'intensité et le sens dépendent de  $r_b$ ,  $r_s$  et du point de compensation  $C_s$ , et (ii) une voie cuticulaire dans laquelle  $r_b$  joue un rôle important, et qui dépend de la présence d'eau à la surface des feuilles. La spécificité du dépôt sec d'ammoniac est donc d'être en réalité un processus bidirectionnel dans lequel  $r_w$  et  $C_s$  jouent un rôle prépondérant. Ces deux paramètres sont à la fois des fonctions du microclimat et de la plante.

(2) Nous avons développé un modèle de dépôt sec local d' $\text{NH}_3$  en deux dimensions. Il est basé sur le couplage d'un modèle de dispersion lagrangien stochastique (LS) et d'un modèle d'échange foliaire.

Le développement du modèle LS a mis en évidence la faiblesse conceptuelle de ces modèles qui réside dans le fait qu'ils nécessitent une "fermeture" des équations du mouvement. En revanche ils permettent de mieux reproduire les transferts non diffusifs dans la végétation que les modèles eulériens au premier ordre et sont faciles à mettre en œuvre. Etant donné l'importance de l'échelle de temps lagrangienne  $T_{Lw}$  comme paramètre du modèle, nous avons cherché à développer une paramétrisation plus détaillée de  $T_{Lw}$  dans le couvert. Celle-ci entraîne des modifications importantes de la dispersion dans le couvert lorsque la source est près de la surface.

Le modèle d'échange foliaire que nous avons développé prend en compte l'échange stomatique et le dépôt cuticulaire de l'ammoniac. Etant donné que la résistance au dépôt cuticulaire ( $r_w$ ) est souvent bien plus faible que la résistance stomatique ( $r_s$ ), la résistance de couche limite de feuille  $r_b$  joue un rôle prépondérant dans le dépôt local. Nous avons donc cherché à affiner la paramétrisation de  $r_b$  afin de prendre en compte l'intermittence des échanges dans le couvert ainsi que le régime de convection libre qui peut apparaître lorsque la température du couvert est très différente de celle de l'air. Il se trouve que ces situations correspondent aussi à celles où le point de compensation prend des valeurs extrêmes et où la paramétrisation des résistances du couvert est donc cruciale.

(3) Les mesures expérimentales réalisées pour valider le modèle montrent que l'écoulement dans le couvert de maïs était intermittent et qu'il était perturbé par la présence d'une transition de rugosité caractérisée par le bord du champ. Cette perturbation n'a toutefois qu'un effet sur les composantes horizontales de la vitesse du vent. Elle entraîne l'apparition de fluctuations basses fréquence des composantes horizontales du vent.

L'estimation des dépôts secs sur un couvert maïs en aval d'une source ligne, à partir des concentrations moyennes dans le couvert obtenues expérimentalement, donne des valeurs variant entre 1% et 17% des quantités émises. L'incertitude sur ces estimations est d'environ un facteur 2, montrant à quel point les paramètres  $R_w$  et  $C_s$  sont déterminants dans l'estimation des dépôts.

(4) La validation du modèle montre qu'il prédit avec une incertitude d'environ 50% les concentrations en aval d'une source ligne sur prairie, mais sans biais. En revanche sur maïs, le modèle est biaisé : il prédit des concentrations trop faibles près de la source et trop élevées loin de la source. La raison de ce biais semble lié en premier lieu au fait que la source n'ai pas été assez longue. Cela met en avant l'importance de la prise en compte de la dimension transversale du vent dans la modélisation du dépôt sec.

L'étude de la sensibilité aux paramètres montre que le modèle de dispersion est très sensible à  $\sigma_w$ . Cela n'a toutefois pas beaucoup d'importance car ce paramètre paraît être peu variable dans la CLS. Par ailleurs, nous avons mis en avant le fait que le modèle de dispersion est très sensible à  $T_{Lw}$ . Cela montre que plus généralement, le modèle est sensibles aux conditions initiales de dispersion et donc à la position de la source.

(5) L'application du modèle a permis de montrer que la hauteur de la source, la vitesse du vent et les résistance stomatiques et cuticulaires sont les facteurs qui ont le plus d'effet sur le dépôt sec local. Il ressort en particulier que la hauteur de la source est le facteur primordial puisqu'il détermine le sens dans lequel les autres paramètres agissent sur le dépôt. Par exemple si la source est près du sommet du couvert, lorsque  $u^*$  augmente les dépôts diminuent par diminution de la concentration de surface. A l'inverse, si la source est placée plus en altitude, lorsque  $u^*$  augmente les dépôts augmentent par accroissement de la concentration de surface.

L'utilisation de données météorologiques correspondant à un climat tempéré et un climat chaud et sec montre que les dépôts secs cumulés à 400 m autour d'un bâtiment d'élevage varient entre 0.2% et 15% des quantités émises. Les estimations maximales sont sans doute trop fortes car elles conduiraient à la saturation du couvert. La situation climatique influe sur le dépôt local essentiellement (i) de nuit à travers les dépôts cuticulaires qui dépendent de l'humidité relative, et (ii) de jour avec les émissions liées aux variations de  $C_s$  en fonction de la température. Cela montre que le dépôt local dépend en premier lieu des paramètres  $r_w$  et  $C_s$  qui sont aussi ceux qui sont le moins bien compris aujourd'hui.

A. ANNEXES

A.1 Diffusivités moléculaires et nombres adimensionnés associés

La diffusivité moléculaire d'un gaz dans l'air est un paramètre essentiel de la diffusion à travers les stomates des feuilles. De façon plus générale, il intervient dans tous les processus de transfert à proximité des surfaces et dans les éléments de rugosité de la surface. Par ailleurs, les coefficients de diffusion moléculaire sont déterminants dans le dimensionnement de capteurs passifs ou actifs tels que les tubes à diffusion ou les "denuders" (Ferm, 1979 ; Ferm, 1986 ; Wyers *et al.*, 1993). Il est donc important de connaître de façon précise les valeurs de ces diffusivités moléculaire lors de l'étude d'échanges de gaz-traçes entre l'atmosphère et la surface.

Les Tableaux A.1 et A.2 donnent les diffusivités et propriétés moléculaires de quelques gaz-traçes présentant un intérêt particulier pour l'environnement.

Tableau A.1. Diffusivité moléculaire de quelques gaz-traçes présentant un intérêt du point de vue de l'environnement. La masse moléculaire et le diamètre moléculaire sont également reportés. Les différentes colonnes correspondent à différentes sources. <sup>1</sup> Obtenu avec la formule de Hirschfelder ; <sup>2,3</sup> d'après Sutton (1993).

Composé	Masse moléculaire	Diamètre moléculaire	Diffusivité moléculaire à 20°C, 1013 mbar	Diffusivité <sup>1</sup> Moléculaire à 20°C	Diffusivité <sup>2</sup> Moléculaire à 10°C
	g mol <sup>-1</sup>	nm	(10 <sup>-5</sup> ) m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>	(10 <sup>-5</sup> ) m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>	(10 <sup>-5</sup> ) m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>
CO <sub>2</sub>	44.01	0.378	1.65	-	-
H <sub>2</sub> O	18.01	0.225	2.42	2.49	2.27
NH <sub>3</sub>	17.01	0.234	2.65	2.29	2.09
HNO <sub>3</sub>	63.00	0.427	1.18	-	-
O <sub>2</sub>	31.99	0.267	2.27	-	-
N <sub>2</sub>	28.01	0.260	2.31	-	-
O <sub>3</sub>	47.99	0.360	1.58	-	-
SO <sub>2</sub>	64.05	0.393	1.22	-	1.18
NO <sub>2</sub>	45.98	0.366	1.84	-	-
HCl	36.5	-	-	-	-
v <sub>air</sub> <sup>5</sup>	-	-	-	1.42	-

Tableau A.2. Quelques propriétés physiques de l'air et de la vapeur d'eau. D'après Monteith et Unsworth (1990).

T °C	ρ <sub>a</sub> kg m <sup>-3</sup>	λ J g <sup>-1</sup> eau	C <sub>p</sub> J g <sup>-1</sup> air K <sup>-1</sup>	k W m <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup>
0	1.292	2501	1.01	24300
10	1.246	2477	-	25000
20	1.204	2442	-	26000
40	1.128	2406	-	27000

## A.2 Température potentielle

La température potentielle  $\theta$  est souvent utilisée en météorologie, en voici la définition. L'équation d'état de l'air humide s'écrit  $p = \rho R_h \theta$ , où  $R_h$  est la constante massique des gaz parfaits pour l'air humide, qui peut-être très précisément estimée par  $R_a (1 + 0.61q)$ , où  $R_a$  est la constante des gaz parfaits pour l'air sec égale à  $287 \text{ J kg}^{-1} \text{ K}^{-1}$ ,  $q$  est l'humidité spécifique de l'air, et  $0.61 = (R_v - R_a) / R_a$ , où  $R_v$  est la constante massique des gaz parfaits pour la vapeur d'eau,  $462 \text{ J kg}^{-1} \text{ K}^{-1}$ . En définissant la *température virtuelle*  $\theta_v$  :

$$\theta_v = \theta (1 + 0.61q) \quad (A.1)$$

L'équation d'état s'écrit  $p = \rho R_a \theta_v$ . Cela permet de tenir compte de la variation de densité en fonction de l'humidité spécifique. En combinant la variation de pression hydrostatique et l'équation d'état la densité de l'air humide peut s'exprimer en bonne approximation à proximité de la surface par (Coantic, 1976):

$$\rho = \rho_0(T_0, q_0) \left\{ 1 - \frac{T - T_0}{T_0} - 0.61 (q - q_0) \right\} \quad (A.2)$$

Où  $\rho_0$  est une densité de l'air de référence,  $T_0, q_0$ . Cette équation est utile pour exprimer les variations de densité en fonction des variations locales de température et d'humidité.

L'humidité spécifique de l'air  $q$  est définie par

$$q = \frac{e_{sat}(T) R_a}{p_a R_v} = 0.62 \frac{e_{sat}(T)}{p_a} \quad (A.3)$$

où  $p_a$  est la pression atmosphérique.

### A.3 Equation différentielle stochastique (EDS) de Itô

Bien que les modèles lagrangiens stochastiques soient souvent utilisés (Wilson et Sawford, 1996), peu de détails sont donnés sur les bases mathématiques de ces modèles. Il nous a paru donc important de rappeler les principes mathématiques à l'origine du développement théorique de ces modèles (Thomson, 1987). Voici ici la définition d'une équation différentielle stochastique au sens de Itô (voir Soize, 1993).

Considérons l'équation différentielle stochastique (EDS) suivante (au sens de Itô)

$$dX(t) = a\{X(t), t\} dt + b\{X(t), t\} d\xi(t) \quad (A.4)$$

$$X(0) = X_0 \quad (A.5)$$

Ici  $X(t) = \{X_1(t), \dots, X_n(t)\}$  est un processus stochastique vectoriel, appelé processus de Itô. Les fonctions  $a$  et  $b$  sont mesurables à valeurs dans  $R^n$  et  $Mat_R(n, m)$  respectivement.  $\xi(t)$  est le processus de Wiener normalisé, c'est à dire que ses incréments ( $d\xi(t)$ ) sont des variables aléatoires gaussiennes.  $X_0$  est une variable aléatoire indépendante de  $\xi(t)$ .

#### A.4 Différentiation au sens de Itô

Les lois de différentiation des fonctions stochastiques au sens de Itô ne sont pas les mêmes que celles de la différentiation des fonctions classiques. Si l'on considère le processus stochastique de Itô  $X(t)$  défini dans les équations A.4 and A.5,  $f$  est une fonction, et  $Y(t) = f\{X(t), t\}$ . Alors  $Y(t)$  est définie par:

$$df(t) = \frac{\partial f}{\partial t} dt + \sum_{j=1}^n \frac{\partial f}{\partial x_j} dX_j(t) + \frac{1}{2} \sum_{j,k=1}^n \frac{\partial^2 f}{\partial x_j \partial x_k} \sum_{i=1}^m b_{ji} b_{ki} dt \quad (A.6)$$

Un exemple important de l'application de l'équation A.6 est le calcul de  $\overline{w^2(t)}$  à partir de l'équation de Langevin. La fonction à estimer, est alors  $f_{w^2}\{w(t), z(t), x(t), t\} = w^2(t)$ . L'application de l'équation A.6 donne :

$$dw^2(t) = 2 w(t) dw(t) + b_w^2 dt \quad (A.7)$$

$$dw^2(t) = 2 w(t) a_w dt + 2 w(t) b_w d\xi(t) + b_w^2 dt \quad (A.8)$$

$$d \overline{w^2(t)} = 2 \overline{w(t) a_w} dt + 2 \overline{w(t) b_w d\xi(t)} + \overline{b_w^2} dt \quad (A.9)$$

Comme  $w(t)$  et  $d\xi(t)$  sont indépendants,  $\overline{w(t) d\xi(t)} = 0$ . On a donc :

$$d \overline{w^2(t)} = 2 \overline{w(t) a_w} dt + \overline{b_w^2} dt \quad (A.10)$$

En turbulence homogène, comme  $a_w = -w(t) / T_{Lw}$  (Van Dop, 1985). L'équation A.10 se simplifie pour donner :

$$d \overline{w^2(t)} = -\frac{2}{T_L} \overline{w^2(t)} dt + \overline{b_w^2} dt \quad (A.11)$$

Comme les quantités dans l'équation A.11 sont non stochastiques (moyennes) on peut appliquer le formalisme normal de différentiation, et l'on a :

$$\frac{d \overline{w^2(t)}}{dt} + \frac{2}{T_L} \overline{w^2(t)} - \overline{b_w^2} = 0 \quad (A.12)$$

Si l'on suppose que  $b_w$  est constant avec le temps, on obtient alors :

$$\overline{w^2(t)} = \left( \overline{w^2(0)} - \frac{\overline{b_w^2} T_L}{2} \right) \exp\left(-\frac{2t}{T_L}\right) + \frac{\overline{b_w^2} T_L}{2} \quad (A.13)$$

Comme en turbulence homogène  $\overline{w^2(0)} = \sigma_w^2$ , alors pour tout  $t \geq 0$ ,  $b_w^2 = 2 \sigma_w / T_L$ .

#### A.5 Modélisations des fdp non gaussiennes

Comme nous l'avons vu au chapitre II, les distributions de vitesses de l'air dans les couverts végétaux ne sont pas Gaussiennes (Raupach *et al.*, 1991 ; Flesch et Wilson, 1992). De plus, même si la turbulence est gaussienne mais inhomogène, le forçage stochastique des modèles

Lagrangiens dits gaussiens est non gaussien (Thomson, 1984 ; Wilson et Sawford, 1996). Trouver une expression analytique qui représente ces distributions non-gaussiennes est un passage obligé pour définir un modèle de dispersion stochastique moderne, selon le critère d'entropie ("well mixed criteria") de Thomson (1987). Dans cette partie les différentes approches trouvées dans la littérature sont passées en revue.

La construction d'une fonction de densité de probabilité (fdp) ayant une forme analytique pose plusieurs difficultés. En effet, certaines méthodes aboutissent à des fdp non strictement positives, les problèmes apparaissant aux "bouts des distributions", là où les moments d'ordres supérieurs ont plus de poids (Flesch et Wilson, 1992). Baerentsen et Berkowicz (1984) ont proposé une méthode reprise par Luhar et Britter (1989), et équivalente à celle exposée dans Thomson (1984), pour générer des distributions non gaussiennes à partir de deux distributions gaussiennes, et donc éviter toute difficultés aux extrémités de la distribution :

$$P(w,z) = A(z) P_A(w,z) + B(z) P_B(w,z) \quad (A.14)$$

Où  $P(w,z)$  est la fonction de densité de probabilité de la vitesse verticale de l'air  $w$  à la hauteur  $z$ ,  $P_A$  et  $P_B$  sont deux fdp Gaussiennes de moments  $\overline{w_A}$ ,  $\overline{w_B}$  et  $\sigma_A^2$  et  $\sigma_B^2$  respectivement,  $A(z)$  et  $B(z)$  sont des fonctions de la hauteur.  $\overline{w_A}$ ,  $\overline{w_B}$ ,  $\sigma_A^2$ ,  $\sigma_B^2$ ,  $A$  et  $B$  sont déterminés par résolution d'un système d'équation exprimant l'égalité des moments d'ordre 0 à 4 de la fdp  $P(w,z)$  en tout point  $z$  (Luhar et Britter, 1989). Afin de fermer le système d'équation, l'hypothèse suivante est souvent faite (Luhar et Britter, 1989 ; Baerentsen et Berkowicz, 1984),  $\sigma_A = \overline{w_A}$  et  $\sigma_B = \overline{w_B}$  :

$$\overline{w_B} = \frac{\sqrt{(\overline{w^3})^2 + 8(\overline{w^2})^3} - \overline{w^3}}{4 \overline{w^2}} \quad (A.15a)$$

$$\overline{w_A} = \frac{\overline{w^2}}{2\overline{w_B}} \quad (A.15b)$$

$$A = 1 - B = \frac{\overline{w_B}}{\overline{w_A} + \overline{w_B}} \quad (A.15c)$$

Où les termes  $\overline{w^n}$  sont les moments d'ordre  $n$  des vitesses verticales eulériennes. Weil (1990), propose une hypothèse moins restrictive  $\sigma_A = R \overline{w_A}$  et  $\sigma_B = R \overline{w_B}$  :. La construction de  $P(w,z)$  peut-être vue comme la superposition des distributions Gaussiennes de vitesses ascendantes  $P_A$  et descendantes  $P_B$ , auquel cas les constantes  $A$  et  $B$  sont respectivement les probabilités d'occurrence des mouvements ascendants et descendants (Luhar et Britter, 1989). Une expression analytique différente à été proposée par Thomson (1987), pour représenter une distribution non-gaussienne, mais cette distribution n'est pas correcte pour les moments d'ordre supérieur à 3 :

$$P(w,z) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \sigma_w} \left( \frac{1}{2} s^2 v^2 - s v + 1 - \frac{1}{2} s^2 \right) \exp(-\frac{1}{2} v^2) \quad (A.16)$$

Où  $s$  est un paramètre dépendant de  $z$ , et  $v = w / \sigma_w - s$ . Pour obtenir la variance et le coefficient d'asymétrie voulu, il faut imposer  $\sigma_w^2 = \overline{w^2}$  et  $s^3 \sigma_w^3 = \overline{w^3}$ . Comme les caractéristiques statistiques des vitesses verticales et horizontales, et leurs couplages sont important, Wilson et Flesch (1992) ont appliqué la même méthode que (Eqn. A.16), mais pour des densités de probabilité jointes  $P(u, w, z)$ . La méthode est essentiellement la même à ceci près que les hypothèses de fermeture sont faites sur les composantes horizontales de la vitesse  $\sigma_{uA}^2 = (R \overline{u_A})^2$ , et  $\sigma_{uB}^2 = (R \overline{u_B})^2$ , et jusqu'à l'ordre 4.

Flesch et Wilson (1992) montrent que la méthode de Baerentsen et Berkowicz (1984) généralisée en 2 dimensions permet de retrouver les moments non croisés d'ordre 0 à 4, mais donne une représentation aberrante du moment d'ordre 3  $\overline{uw^2}$ . Or ce paramètre est représentatif de l'intermittence des échanges au niveau du couvert puisqu'il indique le couplage entre l'intensité de la fluctuation verticale et vitesse horizontale de l'air. Ils en concluent que l'utilisation de modèles complexes nécessite une formulation des fdp faisant intervenir les moments d'ordre supérieur à 4 (Wilson et Sawford, 1996).

La réponse à Wilson et Flesch vient de l'utilisation de densité de probabilité utilisant le maximum d'information connue (maximum missing information "mmi" ; Du *et al.*, 1994a). Du *et al.* (1994b) ont par ailleurs montré que l'utilisation de mmi dans les modèles de marche aléatoires basés sur le critère d'entropie (Thomson, 1987) constituait la meilleure solution possible. La densité de probabilité  $P(w,z)$  optimale, est celle qui minimise l'erreur commise sur les moments d'ordre supérieurs (inconnus), elle est obtenue en minimisant la fonction  $H(p)$  :

$$H(p) = \int_{-\infty}^{\infty} p(w) \ln[p(w)] dw \quad (A.17)$$

On obtient pour  $P(w,z)$  (Du *et al.*, 1994a) :

$$P(w,z) = \exp \left\{ - \sum_{k=0}^N \lambda_k(z) w^k \right\} \quad (A.18)$$

où  $N$  est le nombre de moments connus, les  $\lambda_k$  sont déterminés par comparaison avec les moments connus  $\overline{w^k}$ . (Du *et al.*, 1994a) :

$$(A.19)$$

Toutefois, comme le remarquent Van Dop *et al.* (1985) ou Thomson (1987), l'utilisation de fdp non-gaussiennes dans les modèles de marche aléatoire n'est pas mathématiquement juste, puisque nous obtiendrions des densités de probabilité de présence de particule  $p$  négatives.

### A.6 Origine, effets, et mesure de la stratification thermique dans la CLS

La CLS n'est pas toujours en état de neutralité thermique. Les gradients de densité de l'air qui s'établissent du fait du réchauffement de la surface, de jour, par absorption du rayonnement à grande longueur d'onde en provenance du soleil et le refroidissement de cette même surface de nuit, par émission de rayonnement thermique à grande longueur d'onde. Ces gradients de densité que la turbulence tend à réduire, influent eux-mêmes sur la turbulence par l'action du travail des forces d'Archimède sur le mouvement turbulent (Coatinc, 1976).

Considérons une situation où la densité décroît avec l'altitude, une particule que la turbulence a déplacée verticalement possède une densité différente de celle de l'air qui l'entoure, la force d'Archimède qui lui est opposée tend à ramener la particule à son niveau initial. Le travail développé par ces forces d'Archimède se fait au dépend de l'énergie cinétique de la turbulence (Coatinc, 1976). L'équation de conservation de l'énergie cinétique de la turbulence (ECT ; Kaimal et Finnigan, 1994) exprime de façon explicite l'action de ce terme de production / destruction gravitationnelle. On a dans la couche limite de surface :

$$\frac{\partial \bar{k}}{\partial t} = - \frac{\partial}{\partial z} \left\{ \overline{w'k} + \frac{1}{\rho} \overline{w'p'} - \nu \frac{\partial \bar{k}}{\partial z} \right\} - \overline{u'w'} \frac{\partial \bar{U}}{\partial z} - \frac{g}{\rho} \overline{\rho'w'} - \nu \frac{\partial u'_i}{\partial x_j} \frac{\partial u'_j}{\partial x_i} \quad (A.20)$$

I
II
III
IV

où  $\bar{k} = \frac{1}{2} (\overline{u'^2} + \overline{v'^2} + \overline{w'^2})$  est l'énergie cinétique de la turbulence, le terme I est la divergence des flux turbulents, et moléculaires d'ECT, et de travail de la force de pression sur le mouvement turbulent; II est le terme de production d'ECT par l'action de la tension de frottement sur le gradient de vitesse moyenne, il représente le transfert de l'énergie cinétique du mouvement moyen vers l'ECT, il est toujours positif dans la CLS, et est noté  $P$  ; III est le terme de production gravitationnelle correspondant au travail des forces d'Archimède sur le mouvement turbulent de l'ECT, que nous appellerons  $P_G$  ; IV est le terme de dissipation de l'ECT par frottement visqueux, noté  $\varepsilon$  ; et  $g$  est l'accélération due à la gravité. Le terme III est donc bien un terme source (ou puits selon le signe) d'ECT. En utilisant la différentielle de l'équation (A.2), on peut exprimer ce terme en fonction des flux de chaleur sensible et latente :

$$P_G = - \frac{g}{\rho} \overline{\rho'w'} = g \left\{ \frac{1}{T} \overline{w't'} + 0.61 \overline{w'q'} \right\} = g \left\{ \frac{H}{\rho C_p T} + \frac{0.61 E}{\rho} \right\} \quad (A.21)$$

Le terme de production gravitationnelle dépend donc des flux de chaleur sensible et du flux de chaleur latente, respectivement  $H$  et  $\lambda E$ , où  $\lambda$  est la chaleur latente de vaporisation. Le flux turbulent de densité est opposé au flux de chaleur sensible et latente. Le signe et l'importance relative de la production gravitationnelle, vis à vis de la production cinétique, sont caractérisés par le nombre de Richardson de flux  $R_f$  :

$$R_f = - \frac{P_G}{P} = - g \frac{H / (C_p T) + 0.61 E}{\tau \partial \bar{U} / \partial z} \quad (A.22)$$

Où le terme le terme  $-\overline{u'w'}$  a été remplacé par  $\tau/\rho$ . Dans la CLS, comme  $P$  est toujours positif,  $R_f$  est de signe opposé à  $P_G$ . Donc si  $R_f$  est positif,  $P_G$  est négatif, et tend donc à atténuer l'intensité de la turbulence, l'écoulement se stratifie, la *stratification est dite stable*. Si  $R_f$  est négatifs, c'est le contraire, le gradient de densité positif est fondamentalement instable et accroît donc la turbulence, la *stratification est dite instable*.

Le paramètre de stabilité aujourd'hui le plus utilisé en micrométéorologie est la longueur de Monin et Obukhov,  $L$  (m), qui est l'échelle de longueur définie dans la théorie des similitudes de Monin et Obukhov dans la CLS. Elle peut-être exprimée de la façon suivante :

$$\frac{z}{L} = -\frac{g}{\rho} \frac{H / (C_p T) + 0.61 E}{u_*^3 / kz} \quad (A.23)$$

$R_f$  et  $z/L$  sont essentiellement équivalents, à ceci près que  $\partial \overline{U} / \partial z$  est estimé par  $u_* / kz$ . Les deux grandeurs  $R_f$  et  $z/L$  ne sont toutefois pas toujours adaptés pour caractériser la stratification thermique dans certaines conditions particulières. En particulier, dans un couvert végétal, plusieurs auteurs ont montré que l'écoulement est très fortement intermittent (Collineau et Brunet, 1993; Raupach *et al.*, 1996; voir chapitre 3 pour plus de détails). Des phases très courtes de balayage (typiquement 2 à 4 secondes sur maïs, Brunet et Collineau, 1993) (incursion d'une masse d'air froid dans le couvert), et des périodes plus longues d'éjection ( $1.8 h / u_*$ , où  $h$  est la hauteur du couvert ; Collineau et Brunet, 1993), pendant lesquelles l'air dans le couvert se réchauffe essentiellement par diffusion. Pendant la phase d'éjection, dans la partie basse du couvert, l'air est stratifié de façon stable, avec un gradient de température positif (Denmead and Bradley, 1985)

L'erreur commise en négligeant  $LE$  est maximum de 7%, d'autant plus grande que la température est élevée, et que le couvert évapore (10% H et 80% LE). Globalement inférieur à 2% en conditions normales. C'est pourquoi, souvent en micrométéorologie, la contribution du flux de vapeur d'eau est négligée dans l'expression de  $R_f$  ou  $z/L$ .

## A.7 Equations bilans de la turbulence

Les équations de conservation de la turbulence nécessitent une fermeture pour pouvoir être résolue. Toutefois, l'identification des différents termes des bilans, et leur rôle, permet de mieux interpréter et comprendre le transport de scalaires dans le couvert végétal et la CLS. Cette Annexe présente les équations bilans auxquelles des discussions dans

### A.7.1 Bilan du flux turbulent de scalaire

L'équation de conservation du flux turbulent vertical d'un scalaire quelconque  $c$ , en deux dimensions peut être déduit de (Wyngaard, 1982; Businger, 1983) :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \overline{w'c'}}{\partial t} = & -U \frac{\partial \overline{w'c'}}{\partial x} - \left\{ \overline{u'w'} \frac{\partial C}{\partial x} + \overline{w'^2} \frac{\partial C}{\partial z} + \overline{w'c'} \frac{\partial U}{\partial z} \right\} + \\ & - \frac{\partial}{\partial x} \overline{u'^2 c'} - \frac{\partial}{\partial z} \overline{u'w'c'} - \frac{1}{\rho} \overline{c' \frac{\partial p'}{\partial z}} - g \frac{\overline{t'c'}}{T} \end{aligned} \quad (\text{A.24})$$

Où les termes de Coriolis, de dissipation moléculaire ont été négligés (Wyngaard, 1982). En se plaçant dans le cas où les termes d'advection, c'est à dire faisant intervenir  $\partial[]/\partial x$ , sont négligeables, et que la turbulence est quasi-stationnaire, l'équation (A.24) se simplifie pour donner :

$$0 = \underbrace{- \overline{w'^2} \frac{\partial C}{\partial z}}_{\text{I}} - \underbrace{\frac{\partial}{\partial z} \overline{u'w'c'}}_{\text{II}} - \underbrace{\frac{1}{\rho} \overline{c' \frac{\partial p'}{\partial z}}}_{\text{III}} - \underbrace{g \frac{\overline{t'c'}}{T}}_{\text{IV}} \quad (\text{A.25})$$

où le terme I est le terme de *production de flux turbulent par le gradient moyen de concentration*, II est le terme de *transport de flux par fluctuation turbulente*, III est le terme *d'interaction de pression et de concentration*, et IV est le terme de *production gravitationnelle de flux*.

### A.7.2 Non-validité des relations flux gradients

Il est intéressant à ce point de reprendre rapidement le raisonnement de Wyngaard, (1982) montrant dans quelles conditions le gradient moyen peut en effet, à partir de l'équation (A.25), être relié au flux turbulent de scalaire. Tout le raisonnement est basé sur une estimation du terme III de l'Eqn. A.25 dont on trouve une justification dans Wyngaard (1982) :

$$\frac{1}{\rho} \overline{c' \frac{\partial p'}{\partial z}} = \frac{\overline{w'c'}}{\tau} \quad (\text{A.26})$$

Où  $\tau$  est une échelle de temps caractéristique des tourbillons porteurs d'énergie, de l'ordre de  $l/\sqrt{k}$ , où  $l$  est une longueur caractérisant ces tourbillons. En remplaçant (A.26) dans (A.25), on obtient :

$$\overline{w'c'} = -\tau \overline{w'^2} \frac{\partial C}{\partial z} - \tau \frac{\partial}{\partial z} \overline{u'w'c'} - \tau g \frac{\overline{t'c'}}{T} \quad (\text{A.27})$$

En introduisant la diffusivité turbulente  $K_c = \tau \sigma_w^2$ , on a :

$$\overline{w'c'} = -K_c \frac{\partial C}{\partial z} - \tau \frac{\partial}{\partial z} \overline{u'w'c'} - \tau g \frac{\overline{t'c'}}{T} \quad (\text{A.28})$$

Où le premier terme du membre de droite est l'expression de la relation flux gradient utilisant la diffusivité turbulente. Il reste des termes qui sont liés à la production par transport turbulent de flux (terme II), et à la production gravitationnelle de flux (IV). On arrive donc à la conclusion que la relation flux gradient est justifiée si les termes de production gravitationnelle et de transport turbulent sont petits.

### A.7.3 Bilan des variances de la vitesse du vent

Les équations de Navier-Stokes moyennes donnent des indications intéressantes sur l'évolution des variances. En conditions advectives, dans la CLS elles se simplifient pour donner :

$$0 = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial P}{\partial x} - \frac{\partial \overline{u'^2}}{\partial x} - \frac{\partial \overline{u'w'}}{\partial z} \quad (\text{A.29})$$

$$0 = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial P}{\partial z} - g - \frac{\partial \overline{w'^2}}{\partial z} - \frac{\partial \overline{u'w'}}{\partial x} \quad (\text{A.30})$$

On voit d'une part que une évolution du flux frottement à la surface entraîne une variation des variances de vitesse du vent  $\sigma_{u,w}$ , mais également qu'en l'absence évolutions horizontale, le gradient de variance de vent vertical est en équilibre avec le gradient de pression non hydrostatique. Bilan d'ECT

$$\frac{\partial \overline{k}}{\partial t} = \underbrace{-\frac{\partial}{\partial z} \left\{ \overline{w'k} + \frac{1}{\rho} \overline{w'p'} - v \frac{\partial k}{\partial z} \right\}}_{\text{I}} - \underbrace{\overline{u'w'}}_{\text{II}} \frac{\partial \overline{U}}{\partial z} - \underbrace{\frac{g}{\rho} \overline{w'}}_{\text{III}} - \underbrace{v \frac{\partial u'_i}{\partial x_j} \frac{\partial u'_i}{\partial x_j}}_{\text{IV}} \quad (\text{A.31})$$

où est  $\overline{k} = \frac{1}{2} (\overline{u'^2} + \overline{v'^2} + \overline{w'^2})$  est l'énergie cinétique de la turbulence, le terme I est la divergence des flux turbulents, et moléculaires d'ECT, et de travail de la force de pression sur le mouvement turbulent; II est le terme de production d'ECT par l'action de la tension de frottement sur le gradient de vitesse moyenne, il représente le transfert de l'énergie cinétique du mouvement moyen vers l'ECT, il est toujours positif dans la CLS, et est noté  $P$  ; III est le terme de production gravitationnelle correspondant au travail des forces d'Archimède sur le mouvement turbulent de l'ECT, que nous appellerons  $P_G$  ; IV est le terme de dissipation de l'ECT par frottement visqueux, noté  $\varepsilon$  ; et  $g$  est l'accélération due à la gravité.

## A.8 Bibliographie des annexes

- Wyngaard J.C., 1982: Boundary Layer Modelling. Pp. 69-105 in *Atmospheric Turbulence and Air Pollution Modelling*. Ed. F.T.M. Nieuwstadt and H. Van Dop. D Reidel publishing Company, Dordrecht Holland.
- Businger J.A., 1983: Equation and Concepts. Pp. 1-33 in *Atmospheric Turbulence and Air Pollution Modelling*. Ed. F.T.M. Nieuwstadt and H. Van Dop. D Reidel publishing Company, Dordrecht Holland.
- Wyers G.P., Otjes R.P., Slanina J., 1993: A continuous-flow denuder for the measurement of ambient concentrations and surface-exchange fluxes of ammonia. *Atmos. Environ.*, 27A: 2085-2090.
- Ferm M. 1979: Method for determination of atmospheric ammonia. *Atmos. Environ.*, 13: 1385-1393.
- Ferm M. 1986 :A Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>- Coated denuder and filter for determination of gaseous HNO<sub>3</sub> and particulate NO<sub>3</sub><sup>-</sup> in the atmosphere. *Atmos. Environ.*, 20(6): 1193-1201.
- Monteith J.L., Unsworth M.H., 1990: Principles of Environmental Physics. 2nd edn., E. Arnold ed., 291 pp.
- Wilson J.D., Sawford B.L., 1996: Review of lagrangian stochastic models for trajectories in the turbulent atmosphere. *Boundary Layer Meteorology*, 78: 191-210.
- Thomson D.J., 1987 : Criteria for the selection of stochastic models of particle trajectories in turbulent flows. *J. Fluid Mech.*, 180: 529-556.
- Soize C., 1993, Méthodes mathématiques en analyse du signal, 1993, Masson.
- Thomson D.J., 1984: Random Walk modelling of diffusion in inhomogeneous turbulence. *Quart. J. R. Met. Soc.*, 110: 1107-1120.
- Flesch T.K., Wilson J.D., 1992: A two-dimensional trajectory-simulation model for non-Gaussian, inhomogeneous turbulence within plant canopy. *Boundary-Layer Meteorol.*, 61: 349-374.
- Raupach M.R., Antonia R.A., Rajagopalan S., 1991: Rough-wall turbulent boundary layers. *Appl. Mech. Revs.*, 44(1): 1-24.
- Baerentsen J.H., Berckowitz R., 1984: Monte Carlo simulation of plume dispersion in the convective boundary layer. *Atmos. Environ.*, 18: 701-712.
- Luhar A.K., Britter R.E., 1989: A random walk model for dispersion in inhomogeneous turbulence in a convective boundary layer. *Atmos. Environ.*, 23: 1911-1924.
- Du S., Wilson J.D., Yee E., 1994a: Probability density functions for velocity in the convective boundary layer, and implied trajectory models. *Atmos. Environ.*, 28: 1211-1217.
- Du S., Wilson J.D., Yee E., 1994b: On the moment approximation method for constructing a lagrangian stochastic model. *Boundary-Layer Meteorol.*, 70: 273-292.
- Van Dop H., Nieuwstadt F.T.M, Hunt J.C.R., 1985, Random walk models of particle displacements in inhomogeneous unsteady turbulent flows. *Phys. Fluid*, 28(6): 1639-1653.
- Coantic M., 1976: La turbulence dans la couche de surface atmosphérique. In *la turbulence en mécanique des fluides*, Favre A., Kovaszny L.S.G, Dumas R., Gaviglio J., Coantic M., gauthier-villars, Bordas, Paris, pp 411.
- Collineau S., 1993: Etude Expérimentale des mouvements cohérents turbulents au voisinage des couvert végétaux. Thèse de doctorat, 286pp.
- Collineau S., Brunet Y., 1993: Detection of turbulent coherent motions in a forest canopy, Part I: Wavelet analysis. *Boundary-Layer Meteorol.*, 65: 357-379.
- Kaimal J.C., Finnigan J.J., 1994: Atmospheric Boundary Layer Flows, Their structure and measurement. Oxford University Press.
- Raupach M.R., Finnigan J.J., Brunet Y., 1996: Coherent eddies and turbulence in vegetation canopies: the mixing-layer analogy. *Boundary-Layer Meteorol.*, 78: 351-382.

Denmead O.T., Bradley E.F., 1985: Flux-gradient relationships in a forest canopy. *The Forest-Atmosphere Interaction* (B.A. Hutchison and B.B. Hicks, Eds.). D. Reidel publishing Co. Dordrecht, The Netherlands, 421-442.