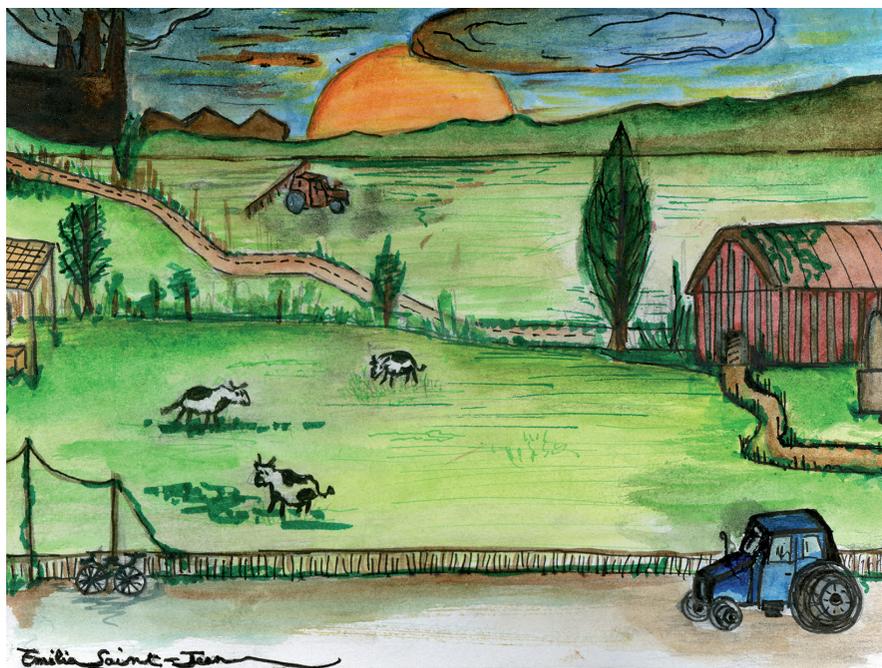


AGRICULTURE ET QUALITÉ DE L'AIR

Comprendre, évaluer, agir

C. Bedos, S. Générmont, J.-F. Castell, P. Cellier, coord.



Agriculture et qualité de l'air

Comprendre, évaluer, agir

Agriculture et qualité de l'air

Comprendre, évaluer, agir

Carole Bedos, Sophie Générmont,
Jean-François Castell, Pierre Cellier, coordinateurs

Éditions Quæ
RD 10, 78026 Versailles Cedex

Collection Synthèses

Consommation et digestion des végétaux. Rôles des microbiotes et fonctions essentielles à la biodiversité

G. Fonty, A. Bernalier-Donadille, E. Forano, P. Mosoni

2019, 176 p.

Gestion durable de la flore adventice des cultures

B. Chauvel, H. Darmency, N. Munier-Jolain et A. Rodriguez, coord.

2018, 352 p.

Histoire de la génétique et de l'amélioration des plantes

A. Gallais

2018, 288 p.

Pour citer l'ouvrage :

Bedos C., Générumont S., Castell J.-F. et Cellier P., coord., 2019. *Agriculture et qualité de l'air. Comprendre, évaluer, agir*. Versailles, Éditions Quæ, 324 p.

Né d'une volonté de conjuguer production agricole et protection de l'environnement, le département Environnement et agronomie de l'Institut national de la recherche agronomique fête ses 20 ans. Pour l'occasion, une série d'ouvrages dédiés à des thématiques emblématiques du département sont publiés. Le présent ouvrage est consacré à la relation entre l'agriculture et la qualité de l'air.



Cet ouvrage a reçu le soutien du département Environnement et agronomie de l'Inra, de l'Ademe, d'AgroParisTech et du labex Biodiversité, agroécosystèmes, société, climat (BASC).



Éditions Quæ

RD 10

78026 Versailles Cedex

www.quae.com

© Éditions Quæ, 2019

ISBN papier : 978-2-7592-3009-9

ISBN PDF : 978-2-7592-3010-5

ISBN ePub : 978-2-7592-3011-2

ISSN : 1777-4624

Cet ouvrage est diffusé sous licence CC-by-NC-ND 4.0.

Table des matières

Remerciements	7
Préface	9
Préambule	13
Agriculture et qualité de l'air : éléments de mise en contexte	17
La qualité de l'air, une préoccupation de premier plan.....	17
Différents cadres d'appréhension de la pollution de l'air et de ses impacts	19
Agriculture et qualité de l'air : positionnements relatifs	23
Pour la suite.....	28
Agriculture, environnement et qualité de l'air : regard historique et appréhension sociale	31
Brève histoire de l'activité agricole.....	34
L'environnement et la qualité de l'air	38
Conclusion.....	42

PARTIE I

COMPOSÉS, MÉCANISMES, IMPACTS

Chapitre 1. Les principaux polluants et leurs impacts sur l'agriculture, les écosystèmes et la santé	45
Les principaux polluants concernés.....	46
Les principaux impacts sur l'agriculture.....	55
Les impacts sur les écosystèmes et la biodiversité.....	57
Les effets des polluants d'origine agricole sur la santé.....	65
Les conséquences pour le climat.....	71
Chapitre 2. Mécanismes : échanges de polluants aux interfaces sol-végétation-atmosphère et devenir dans l'atmosphère	73
Émissions.....	75
Transferts atmosphériques.....	88
Chimie atmosphérique.....	90
Dépôts	97
Annexe. Éléments fondamentaux sur le microclimat aux interfaces sol-végétation-atmosphère, des conditions de sol et de physiologie des cultures	101
Bilan d'énergie.....	101
Transferts hydrique et thermique dans le sol.....	102

Conditions bio-physico-chimiques du sol.....	103
Fonctionnement biologique des plantes et du couvert végétal	103
Effets des pratiques	105
Chapitre 3. De nécessaires approches intégratives	107
Intégration des processus : effet des pratiques agricoles.....	108
Intégrations des processus à différentes échelles spatiales selon les impacts étudiés.....	113
Influences de la pollution de l'air d'origine agricole sur d'autres problématiques environnementales.....	117
Pour conclure.....	121

PARTIE II

MÉTHODES DE MESURE ET DE MODÉLISATION

Chapitre 4. Mesures des concentrations et des flux de polluants atmosphériques.....	127
Méthodes de mesure des familles de composés chimiques et biologiques dans l'atmosphère.....	128
Méthodes de mesure des flux d'émission et des dépôts de polluants atmosphériques.....	132
Méthodes d'attribution des sources.....	139
Méthodes de mesure de la réactivité des composés atmosphériques.....	144
Méthodes de mesure futures	148
Chapitre 5. Modélisation des échanges : de l'échelle des processus aux échelles régionales.....	157
Échelle de la feuille et de l'élément de sol (0D)	160
Échelle de la parcelle agricole (1D)	170
Échelles supérieures (2D-3D).....	181
Pour conclure.....	199

PARTIE III

DU DIAGNOSTIC À L'ACTION

Chapitre 6. Diagnostiquer : inventorier, surveiller et évaluer.....	205
Inventaires.....	206
Les dispositifs nationaux de surveillance de la qualité de l'air.....	218
Indicateurs d'émission, de niveau de contamination de l'air et d'impacts environnementaux	221
Chapitre 7. Réduire l'impact de l'agriculture sur la qualité de l'air	233
Pratiques élémentaires à l'échelle de l'exploitation	234
Leviers d'action à des niveaux d'intégration supérieurs	244

Vision croisée des acteurs agricoles et de la société civile sur l'agriculture et la qualité de l'air	249
Réglementation et politiques publiques.....	259
Pour conclure.....	269
Fiches synthétiques sur les composés	273
Grille de lecture	273
Ammoniac	275
Composés non agricoles acidifiants	276
Composés organiques volatils non méthaniques.....	277
Composés oxydants	278
Méthane	279
Oxydes d'azote	280
Particules abiotiques.....	281
Particules biotiques	282
Produits phytopharmaceutiques (PPP)	283
Références bibliographiques.....	285
Liste des composés chimiques	313
Liste des acronymes	315
Liste des auteurs	319

Remerciements

Les coordinateurs de cet ouvrage tiennent à adresser leurs remerciements à tous ceux qui ont contribué à sa réalisation, et en premier lieu à *Guy Richard* qui a impulsé la collection à laquelle se rattache cet ouvrage.

Ce travail collectif a mobilisé de nombreux auteurs appartenant à des communautés scientifiques diverses. Ils ont su harmoniser leurs approches pour traiter de questions interdisciplinaires complexes. Tout ceci n'aurait pu être mis en œuvre sans l'orchestration efficace des coordinateurs de chapitres. Le travail de documentation et de référencement des sources bibliographiques sans lequel cet ouvrage ne serait pas complet a été réalisé par *Marina Pavlides*. Nous sommes également reconnaissants à *Thomas Eglin* et ses collègues de l'Ademe pour leur investissement dans l'élaboration et le suivi de ce projet. Nous remercions aussi *Marie-Christine Prémartin* pour la rédaction de la préface.

Un grand merci à *Jean Boiffin* et *Daniel Martin*, qui ont accepté de relire l'intégralité de l'ouvrage. Leurs précieux conseils ont alimenté notre réflexion. De même, nos remerciements s'adressent aux relecteurs de chapitres, qui par leurs remarques et suggestions ont apporté leur pierre à l'édifice : *Sophie Agasse*, *Armelle Baeza*, *Thierry Doré*, *Chris Fléchar*, *Marion Hulin*, *Joseph Kleinpeter*, *Michel Rossi*, *Dominique Serça* ainsi que nos collègues de l'UMR Écosys, *Brigitte Durand*, *Céline Décuq* et *Florence Lafouge*. Nous n'oublions pas *Enrique Barriuso*, directeur de l'UMR Écosys, pour son soutien indéfectible.

Ce projet a reçu le soutien financier du département Environnement et Agronomie de l'Inra, d'AgroParisTech, de l'Ademe et du Labex Basc.

Enfin, ces remerciements ne seraient pas complets sans une mention spéciale que nous adressons à la jeune artiste *Émilie Saint-Jean*, auteure de l'illustration de la page de couverture.

Préface

« Je pense sincèrement que la pollution de la planète
ce n'est pas aussi grave qu'on le dit... C'est beaucoup plus grave qu'on le dit. »

Philippe Geluck,
Le Tour du chat en 365 jours (2006)

C'est un réflexe, nous respirons pour vivre.

Naturellement incolore et inodore, l'air nous est indispensable. Bien que l'on observe une amélioration générale de la qualité de l'air en France depuis plusieurs années, la pollution de l'air y est encore à l'origine d'une baisse de l'espérance de vie et d'environ 48 000 décès par an, 7 millions à l'échelle mondiale. Les impacts importants sur la biodiversité, les rendements agricoles (avec des baisses pouvant aller jusqu'à 20 %) et le bâti sont également prouvés. Cette pollution engendre un impact économique considérable : la Commission des comptes et de l'économie de l'environnement a chiffré en juillet 2012 le coût de la pollution de l'air extérieur à une valeur comprise entre 20 et 30 Mds € par an pour la France métropolitaine (un rapport sénatorial de 2015 a même porté ce chiffre à une valeur comprise entre 68 et 97 Mds €). Selon un sondage Opinion Way réalisé en 2018 par l'Agence de l'environnement et de la maîtrise de l'énergie (Ademe), la pollution de l'air est l'un des trois enjeux environnementaux préoccupant le plus les Français, avec le réchauffement climatique et la dégradation de la faune et de la flore, d'autant plus que les pollutions aériennes ne connaissent pas les frontières, quoi que l'on ait pu penser en 1986.

Depuis mai 2018, la France est portée devant la Cour de justice européenne pour non-respect des valeurs limites dans l'air ambiant pour le dioxyde d'azote (NO₂). À ce contentieux européen vient s'ajouter un contentieux devant la juridiction française (décision du Conseil d'État de juillet 2017 et nouvelle attaque de l'État en octobre 2018 par 78 associations écologistes et de médecins pour insuffisance d'exécution de ladite décision). Au total, ce sont 15 territoires implantés dans 6 régions qui sont concernés par ces contentieux. Les activités humaines polluantes sont nombreuses. Si certaines sont bien identifiées, comme l'industrie, le transport, les activités domestiques (chauffage, brûlage...), d'autres le sont moins. C'est pourquoi cet ouvrage fait le choix de se focaliser sur les relations entre agriculture et qualité de l'air.

Impactante et impactée, l'agriculture est à la croisée des chemins en matière de pollutions :

- impactante, car elle participe aux émissions vers l'air (et les autres milieux) de contaminants tels que l'ammoniac, les composés organiques volatils et les produits phytosanitaires ainsi qu'à la formation d'ozone et de particules secondaires ;
- impactée, car l'accumulation d'ozone affaiblit les plantes et entraîne des pertes de rendements, le dépôt d'éléments métalliques peut affecter la qualité des productions. Une trop forte accumulation d'ammoniac et de particules dans les bâtiments d'élevage peut aussi affecter les conditions de travail des éleveurs ainsi que la santé des animaux et leur bien-être.

En mai 2017, la France s'est dotée d'un Plan national de réduction des émissions de polluants atmosphériques (Prepa), qui établit les lignes directrices permettant de réduire les émissions atmosphériques de cinq polluants majeurs (le dioxyde de soufre, SO₂, les oxydes d'azote, NO_x, les composés organiques volatils non méthaniques, COVNM, les particules, ou *particulate matter*, de diamètre inférieur à 2,5 µm, PM_{2,5}, et l'ammoniac, NH₃). Ce plan combine les différents outils de politique publique : réglementations sectorielles, mesures fiscales, incitatives, actions de sensibilisation et de mobilisation des acteurs, action d'amélioration des connaissances. Il inclut la mise en œuvre d'actions de réduction sur l'agriculture, en particulier dans l'objectif de réduire de 13 % les émissions d'ammoniac issues des fertilisants minéraux et des effluents d'élevage à l'horizon 2030. Ainsi, sont notamment prévus un guide national des bonnes pratiques, un plan d'action visant à interdire l'usage des épandeurs les plus émissifs, une étude sur la réduction des émissions liées aux engrais azotés.

Engagée depuis plusieurs années dans l'amélioration de la qualité de l'air intérieur et extérieur, l'Ademe apporte son expertise et son soutien actif à la recherche et au transfert des connaissances. En particulier, aux côtés des autres financeurs de la recherche, l'agence soutient depuis près de vingt ans les organismes de recherche et de développement travaillant sur la connaissance des émissions agricoles et leur réduction. L'Institut national de la recherche agronomique (Inra) a, quant à lui, développé depuis le milieu des années 1990 des compétences scientifiques et techniques et conduit de nombreux projets de recherche sur la contribution de l'agriculture et de l'élevage à la pollution de l'air et sur l'impact de la pollution de l'air sur l'agriculture. Cette expertise lui permet de coordonner aujourd'hui cet ouvrage, qui présente une large synthèse des connaissances acquises : il fait le point sur le contexte historique, sociétal, et retrace l'évolution de la prise en compte réglementaire de la pollution de l'air d'origine agricole jusqu'à aujourd'hui. Il synthétise de façon détaillée l'état des connaissances sur les composés concernés, les mécanismes et interactions en jeu à différentes échelles entre ces éléments (émissions primaires, secondaires, transport atmosphérique, recombinaison...), tout en décrivant les méthodes récentes d'observation et de modélisation des interactions entre l'agriculture et la chimie de l'atmosphère. L'ensemble de ces éléments a permis d'étayer une section majeure de ce document, dédiée aux leviers d'action et aux stratégies opérationnelles à déployer afin de réduire l'impact de l'agriculture sur la qualité de l'air. En résumé, selon les besoins du lecteur, cet ouvrage apporte des éclairages historiques, sociologiques et techniques afin d'offrir une vision d'ensemble de la problématique agricole et pouvoir alors passer à l'action et lutter efficacement contre la pollution de l'air.

La diversité des situations sur le terrain rend le passage à l'acte complexe, d'autant plus que la réglementation évolue rapidement, à l'instar des connaissances techniques des processus et des leviers d'action. Ces différents éléments montrent à quel point la parution de cet ouvrage s'inscrit dans une actualité foisonnante voyant émerger un sujet jusqu'alors négligé. Pour reprendre les termes du ministère de la Transition écologique et solidaire, « la politique en faveur de la qualité de l'air nécessite des actions ambitieuses, au niveau international comme au niveau local, dans tous les secteurs d'activité. L'État, les collectivités territoriales, les entreprises, les citoyens et les organisations non gouvernementales doivent conjuguer leurs efforts pour garantir à chacun le droit de respirer un air qui ne nuise pas à sa santé. Cette politique est engagée, elle s'inscrit dans la durée et ses effets sont progressifs ».

Marie-Christine Prémartin,
directrice exécutive de l'expertise et des programmes, Ademe

Préambule

L'agriculture est directement exposée à différentes composantes des changements globaux et, à l'inverse, contribue à certaines d'entre elles : changement climatique, dégradation de la qualité des sols, des eaux et de l'air, atteintes à la biodiversité... Parmi celles-ci, la dégradation de la qualité de l'air revient de plus en plus souvent sur le devant de la scène médiatique. C'est une composante des changements globaux qui peut à la fois affecter les activités agricoles et être altérée par les polluants que celles-ci émettent. En effet, comme toutes les activités anthropiques, l'agriculture est une source de polluants atmosphériques, en premier lieu ceux qui sont liés à l'utilisation des intrants : engrais azotés et produits phytopharmaceutiques. Pourtant, l'effet de l'agriculture sur la qualité de l'air n'a été mis en évidence et n'est entré dans les préoccupations des milieux professionnels agricoles et politiques que récemment, bien après l'apparition des problèmes des pluies acides, auxquelles l'agriculture contribue pourtant significativement. C'est après l'occurrence de pics printaniers de pollution aux particules et la mise en évidence de contaminations locales et à grande échelle par les produits phytopharmaceutiques que ces questions ont émergé au premier plan. Mais l'agriculture se distingue de beaucoup d'autres activités humaines par le fait qu'elle est elle-même impactée par la pollution de l'air provoquée par d'autres sources : l'exemple de l'ozone est le plus parlant. Sur ce point, la prise de conscience des professionnels est encore plus récente. Ainsi, l'agriculture doit se préoccuper à la fois de la sécurité alimentaire, en maintenant son potentiel de production tant quantitatif que qualitatif, et de la préservation de l'environnement, en limitant notamment les émissions de polluants atmosphériques dans ses pratiques de production. Dans ce contexte, il était essentiel d'éclairer tant le débat que l'action par une synthèse des connaissances couvrant l'ensemble des domaines scientifiques, des processus et des échelles concernés.

Cet ouvrage vise à donner aux étudiants, aux acteurs de la recherche et de l'agriculture et aux décideurs publics une synthèse des connaissances pour appréhender, d'une part, la complexité des processus de toutes natures qui sont mis en cause et, d'autre part, les possibilités et les limites des moyens d'action dans la diversité des conditions des activités agricoles. Mais le domaine est vaste, et il est nécessaire de considérer les phénomènes complexes mis en jeu sous des angles très différents, à la fois disciplinaires (agronomie, sciences de l'atmosphère et de l'environnement, physiologie et écophysiologie, chimie, métrologie, sociologie, sciences économiques et politiques...) et sur toute une gamme d'échelles et de niveaux d'organisation, allant de la parcelle agricole ou du bâtiment d'élevage jusqu'au paysage, à la région ou au globe, voire même à l'organisation en filières. Cet ouvrage est structuré à partir de l'inventaire et de l'analyse des principales sources de polluants

d'origine agricole qui impactent la qualité de l'air ambiant (sans inclure la qualité de l'air intérieur), en mettant en avant leurs spécificités, ainsi qu'à partir des modalités d'impact de la pollution de l'air sur les productions végétales. Il apporte les éléments pour comprendre les déterminants des niveaux de concentration auxquels les populations et les agroécosystèmes sont exposés, sans faire un diagnostic précis de la dégradation de la qualité de l'air. L'évaluation de leur exposition comme l'identification et la caractérisation des différentes populations ou écosystèmes concernés ne sont pas abordées, car elles relèvent de démarches spécifiques qui sortent du cadre de cet ouvrage.

Lorsqu'on parle d'évolution de la composition de l'atmosphère, se pose bien évidemment la question du changement climatique. Si de nombreux liens existent entre la dégradation de la qualité de l'air et le changement climatique en ce qui concerne les processus d'émissions et les moyens d'action, ces deux problématiques se distinguent toutefois par les échelles de temps et d'espace : alors que les actions mises en place aujourd'hui sont destinées à produire des effets sur plusieurs décennies, voire plusieurs siècles à l'échelle globale (avec des déclinaisons régionales) pour le changement climatique, les enjeux afférents à la qualité de l'air se caractérisent par des échelles de temps courtes (de l'ordre de l'heure pour des pics de pollution à quelques années pour les pollutions plus chroniques, du type « pluies acides ») et par une diversité d'échelles d'espace allant de la centaine de mètres (impact d'une source ponctuelle sur la population ou son environnement proche) à la région (ozone) et au continent (transfert transfrontalier de polluants). Cette dualité a des implications fortes en termes de politiques publiques : celles-ci doivent impulser des actions à la fois sur le long terme (limiter les émissions) et le court terme (parer à des pics de pollution).

Cet ouvrage traite des composés chimiquement actifs, c'est-à-dire ayant un impact sur les processus chimiques au sein de l'atmosphère et/ou de la biosphère. La question de l'impact des activités agricoles sur le changement climatique n'entre pas dans le champ de l'ouvrage. Les interactions entre la pollution de l'air et le changement climatique sont toutefois de son ressort dans la mesure où le réchauffement a des effets sur les émissions de polluants, mais aussi parce que les mesures d'atténuation peuvent avoir un effet simultané, synergique ou antagoniste, direct ou indirect, sur le changement climatique et la pollution de l'air.

Les polluants atmosphériques considérés sont, d'une part, les polluants d'origine agricole, comme, par exemple, l'ammoniac (NH_3), les produits phytopharmaceutiques (PPP), les oxydes d'azote ($\text{NO} + \text{NO}_2 = \text{NO}_x$), les composés organiques volatils (COV) biogéniques (COVb), ou les particules primaires et secondaires (PM), et, d'autre part, les polluants atmosphériques impactant l'agriculture, le cas le plus significatif étant l'ozone (O_3). Certains polluants, et en particulier le méthane (CH_4), qui sont plus connus comme gaz à effet de serre (GES), ne sont considérés, dans cet ouvrage, que sur le plan de la qualité de l'air. D'autres polluants, non impliqués dans la qualité de l'air mais appartenant au même cycle biogéochimique que des polluants atmosphériques, sont évoqués dans la mesure où ces composés sont produits par les mêmes réactions ou soumis aux mêmes équilibres que les polluants d'intérêt, ou sont consommés de manière compétitive aux processus impliqués dans la pollution atmosphérique. C'est typiquement le cas du nitrate (NO_3^-) et du protoxyde d'azote

(N₂O), éléments du cycle biogéochimique de l'azote. Le nitrate est impliqué dans la problématique de la qualité de l'eau, alors que le protoxyde d'azote est connu pour son fort pouvoir réchauffant, et l'on entrevoit ici toute la complexité des interactions en jeu dans les transferts de pollution entre compartiments et entre types d'impact : les éléments pour mieux les comprendre sont explicités.

L'ouvrage traite plus particulièrement des productions végétales, à la fois les cultures et les prairies, et il s'attache moins aux productions animales. La sylviculture n'est également abordée que ponctuellement. Le contexte est majoritairement celui de systèmes de production agricole de France et d'Europe de l'Ouest. Un certain nombre de volets abordés dans l'ouvrage sont toutefois généralisables à d'autres types de productions et à d'autres contextes géographiques (processus, outils développés...). Par ailleurs, la combustion de biomasse dans le domaine de la pratique agricole n'est pas traitée.

Enfin, les approches qui ont été développées dans cet ouvrage partent de l'étude des processus et vont jusqu'à l'étude des moyens d'action, surtout à l'échelle de la parcelle agricole ou du bâtiment d'élevage. L'organisation des activités agricoles au sein de l'exploitation ou de la filière est peu, voire pas prise en compte, en reflet des politiques publiques qui ne mettent jusque-là en avant des leviers qu'aux échelles des parcelles et des bâtiments. De manière similaire, l'analyse de la dynamique et de la chimie atmosphérique est peu détaillée car non spécifique des polluants considérés, et elle est disponible dans des ouvrages plus généraux.

L'ouvrage se décline en trois parties, elles-mêmes subdivisées en chapitres, qui font suite à une partie introductive présentée en deux temps. Cette dernière aborde en premier lieu la problématisation globale dans laquelle s'inscrit la thématique « Agriculture et qualité de l'air ». Elle met ensuite en perspective de manière plus générale la montée en puissance de la prise en compte des problématiques environnementales dans les préoccupations de l'agriculture, tout en éclairant la question des relations entre agriculture et pollution de l'air.

La première partie traite des bases théoriques concernant les polluants atmosphériques d'intérêt soit parce qu'émis par les activités agricoles, soit parce que les impactant. Le chapitre 1 présente ces polluants, en précisant la contribution des activités agricoles à leurs émissions ainsi que leurs impacts sur la production végétale, les écosystèmes et la santé, justifiant la pertinence de la sélection de ces composés. Les mécanismes sous-jacents aux processus d'ordre biologique, physique et chimique impliqués dans les échanges de ces polluants au sein des systèmes de productions végétales et dans leur devenir dans l'atmosphère sont détaillés dans le chapitre 2. Une vision intégrative est donnée dans le chapitre 3 *via* la présentation des interactions de ces mécanismes au sein des écosystèmes et à des échelles supérieures ainsi que des liens avec le changement climatique, la qualité de l'eau et la biodiversité. Ce chapitre présente également les processus spécifiques aux bâtiments d'élevage.

La deuxième partie détaille les outils développés pour mesurer et modéliser les échanges de polluants entre l'atmosphère et les parcelles cultivées, les bâtiments d'élevage et les paysages agricoles ainsi que leur devenir dans l'atmosphère. Le chapitre 4 présente les méthodes de mesure permettant d'étudier les processus qui déterminent la qualité de l'air en lien avec la biosphère en détaillant également les

mesures de concentrations requises. Le chapitre 5 montre comment notre niveau de connaissance actuel est retranscrit dans des outils mathématiques pour modéliser les processus d'échange des différents polluants entre les différents agroécosystèmes ou les différentes composantes d'une exploitation et l'atmosphère (émissions et dépôts), ainsi que le devenir de ces polluants dans l'atmosphère (transport et chimie).

La troisième partie s'attache à analyser les aspects opérationnels en vue de l'action. Le chapitre 6 traite des différentes méthodologies d'évaluation environnementale de la contribution de l'agriculture à la qualité de l'air et aux impacts associés, en matière de réglementation, de surveillance de la qualité de l'air ou d'estimation des impacts. Enfin, le chapitre 7 montre comment, connaissant les processus d'émission, de transformation, de transport et dépôt de polluants, ainsi que leurs interactions, il est possible d'identifier des mesures de réduction de ces émissions pour chacun des postes concernés (dont l'élevage, poste plus largement développé dans ce chapitre que précédemment), à différentes échelles d'organisation. Sont également abordées l'évaluation environnementale des politiques publiques mises en œuvre ainsi que leur appréhension par les populations rurales et urbaines.

Des éléments synthétiques et prospectifs sont présentés en conclusion de chaque partie. Enfin, pour permettre au lecteur s'intéressant spécifiquement à un composé ou à un type de composé d'en avoir une vision globale, des fiches synthétiques par composé, disponibles à la fin de l'ouvrage, reprennent de manière transversale les éléments développés successivement dans les chapitres de l'ouvrage.

Carole Bedos, Sophie Générmont,
Jean-François Castell, Pierre Cellier

Agriculture et qualité de l'air : éléments de mise en contexte

Pierre Cellier, Carole Bedos,
Jean-François Castell, Sophie Générmont

- La question de la pollution de l'air a émergé dans le monde agricole à la charnière
- des xx^e et xxi^e siècles. Elle est devenue aujourd'hui une préoccupation majeure
- des professionnels et des institutionnels qui accompagnent le milieu agricole dans
- la mise en œuvre et l'anticipation des politiques agricoles et environnementales.
- Cette partie introductive resitue les relations entre agriculture et qualité de l'air
- à la lumière des évolutions récentes à la fois de la pollution de l'air et de l'activité
- agricole.

» La qualité de l'air, une préoccupation de premier plan

Les questions environnementales sont aujourd'hui au premier plan des préoccupations dans l'opinion publique en France et en Europe de l'Ouest. Parmi celles-ci, le changement climatique vient en première place, suivi de près par les questions de la qualité de l'air, tandis que la qualité des eaux et les déchets voient leur importance décroître (Insee, 2015¹) depuis les années 2010. La pollution de l'air est définie dans l'article L220-2 du code de l'environnement (modifié par l'article 179 de la loi 2010-788 du 10 juillet 2010) : « Constitue une pollution atmosphérique au sens du présent titre l'introduction par l'homme, directement ou indirectement, ou la présence, dans l'atmosphère et les espaces clos, d'agents chimiques, biologiques ou physiques ayant

1. <https://www.statistiques.developpement-durable.gouv.fr/opinions-et-pratiques-environnementales-des-francais-en-2015>.

des conséquences préjudiciables de nature à mettre en danger la santé humaine, à nuire aux ressources biologiques et aux écosystèmes, à influencer sur les changements climatiques, à détériorer les biens matériels, à provoquer des nuisances olfactives excessives. » Ainsi, ce n'est pas la qualité de l'air *sensu stricto* qui est définie explicitement, mais bien la pollution de l'air, et les seuils² au-dessus desquels la qualité de l'air est jugée « dégradée » au regard des impacts, en particulier sanitaires, conduisant à la définition de plafonds d'émissions censés garantir le respect de ces concentrations seuils.

Amorcée dès la révolution industrielle, la dégradation de la qualité de l'air ambiant s'est accentuée de manière exponentielle après le milieu du xx^e siècle. L'épisode de *smog* de Londres en décembre 1952 a frappé les esprits en provoquant la mort prématurée de plus de 10 000 personnes et des problèmes de santé pour plus de 100 000 personnes en quelques jours. Dans les années 1970-1980 en Europe et en Amérique du Nord, la médiatisation des pluies acides à l'origine du dépérissement des forêts alerte l'opinion publique sur les effets néfastes de la pollution de fond. La découverte du « trou » dans la couche d'ozone stratosphérique, même s'il ne relève pas directement de la qualité de l'air ambiant, a renforcé, vers la même période et à l'échelle planétaire, la prise de conscience par les acteurs politiques et la société de la fragilité et de la finitude de l'atmosphère. Plus récemment, ont émergé, dans le débat public, des questions relatives à l'ozone troposphérique, aux particules fines et à des composés tels que les pesticides. Il est actuellement admis que les impacts sur la santé humaine (maladies respiratoires, cardio-vasculaires, effets cancérigènes...), dus notamment à la pollution par l'ozone et les particules PM_{2,5}³, se traduisent par plusieurs millions de morts prématurées par an à l'échelle mondiale, et plusieurs dizaines de milliers en France. En raison de ces impacts multiples, notamment ceux touchant à la santé humaine, les coûts de la pollution de l'air sont très élevés. Le rapport Husson⁴ en 2015 a évalué ce coût pour la France à près de 100 millions d'euros par an, l'essentiel étant lié aux impacts sanitaires, qui sont mieux connus et quantifiés que ceux concernant les écosystèmes naturels ou agricoles ou le climat. Les impacts de l'ozone sur les cultures et sur la production agricole commencent toutefois à être mieux cernés (Mills *et al.*, 2011) et mieux relayés dans la presse (épisodes en Inde en 2014). Dans le cadre de l'European Nitrogen Assessment (Sutton *et al.*, 2011), une évaluation de l'impact économique de l'azote sous ses différentes formes réactives (azote réduit $\text{NH}_x = \text{NH}_3 + \text{NH}_4^+$; et azote oxydé qui regroupe NO et NO₂, N₂O et nitrate) a été réalisée à l'échelle européenne. Les coûts globaux liés à l'ensemble de ces formes sont estimés entre 70 et 320 milliards d'euros par an, dont 75 % reliés aux effets de la pollution de l'air. Concernant les émissions d'ammoniac, très majoritairement d'origine agricole comme nous le verrons dans cet ouvrage, leurs coûts sont liés surtout à des impacts sur la santé humaine car c'est un précurseur de particules fines, mais aussi à des impacts sur les écosystèmes (acidification, eutrophisation, atteinte à la biodiversité).

2. <https://www.respire-asso.org/comprendre-les-types-de-seuil-des-polluants/>.

3. PM_{2,5} : particules (PM : *particulate matter*) de diamètre aérodynamique inférieur à 2,5 µm.

4. <http://www.senat.fr/rap/r14-610-1/r14-610-1.html>.

► Différents cadres d'appréhension de la pollution de l'air et de ses impacts

La définition de la pollution de l'air et les exemples cités précédemment mettent en exergue toute la complexité du sujet : diversité des composés, des impacts et des sources, donc des activités anthropiques concernées. Différentes approches sont possibles pour appréhender cette diversité, chacune avec ses finalités.

Un cadre de représentation des processus pour identifier les sources et les puits et prévoir la qualité de l'air

La figure 1 illustre une représentation schématique mais explicite du devenir des polluants atmosphériques dans les environnements naturels et anthropiques, allant de leur source primaire (émission) ou secondaire (incluant au moins une étape de transformation), jusqu'à leur destruction (puits). Ce schéma permet de visualiser la diversité des sources d'émission de polluants atmosphériques, les processus de dispersion, de transport et de dégradation des polluants (transformations chimiques dans l'atmosphère), ainsi que les voies de dépôts. Il représente également le cadre conceptuel des modèles de prévision de la qualité de l'air et de l'évaluation quantitative des impacts. Ce cadre peut s'appliquer sur toute une gamme d'échelles allant du local, pour évaluer par exemple l'impact d'une source de pollution sur son environnement proche, à l'échelle continentale, pour évaluer les transferts transfrontaliers de polluants. Ce schéma montre également la diversité des composés concernés, auxquels il faudrait ajouter de nombreux composés intermédiaires à courte durée de vie, ayant un rôle essentiel dans la chimie de l'atmosphère. Il montre aussi qu'un composé peut jouer le rôle de précurseur d'un autre composé polluant.

L'objectif final de ce cadre intégratif est l'évaluation de l'exposition des organismes, que ce soit les écosystèmes ou l'homme, et *in fine* les impacts de la pollution sur ces organismes. Cette évaluation requiert d'estimer deux grandeurs :

- les concentrations en polluants au niveau des organismes exposés (homme ou écosystèmes), qui représentent une des composantes de leur exposition et qui résultent d'un bilan local entre émissions, transferts, transformations et dépôts. La concentration des polluants dans l'atmosphère est une variable intermédiaire essentielle, en particulier au voisinage du sol où se trouvent les organismes vivants exposés, au premier rang desquels les populations humaines, car c'est une variable explicative primordiale de l'exposition à la pollution de l'air et donc de ses impacts, les autres variables portant sur la description des organismes (localisation, caractéristiques) et les différentes voies d'exposition. Ces concentrations sont en outre l'une des principales variables permettant de calculer les dépôts sur les écosystèmes ;
- les dépôts sur les surfaces naturelles ou agricoles. Outre le fait que ces dépôts sont à l'origine des impacts de la pollution de l'air sur les écosystèmes naturels ou agricoles, ils sont un terme essentiel de la dynamique des polluants puisqu'ils représentent généralement une phase ultime, le polluant quittant le compartiment atmosphérique.

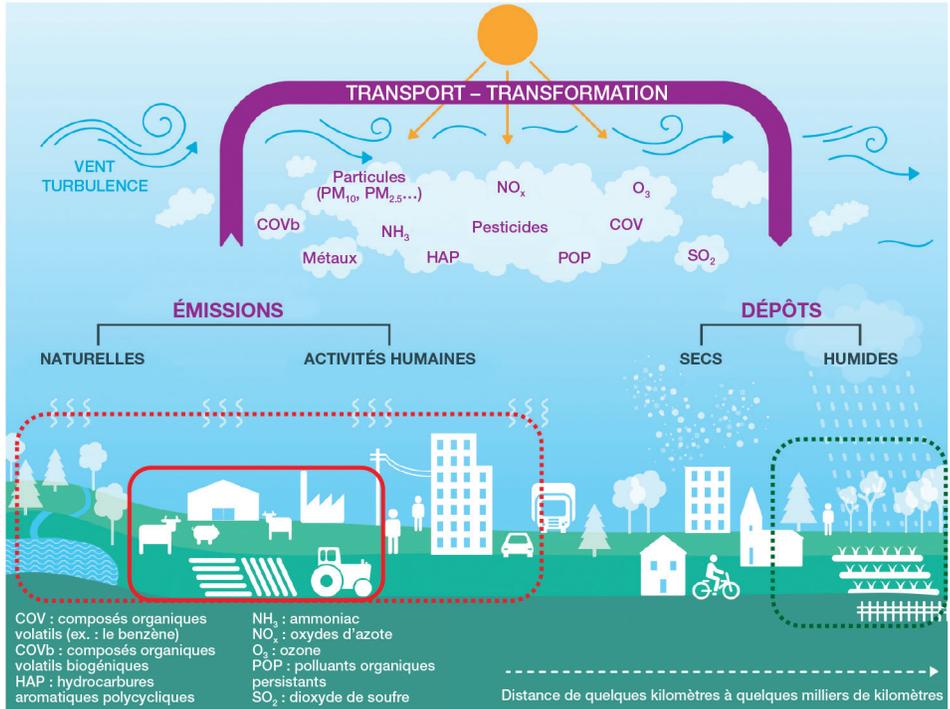


Figure 1. Dynamique des polluants atmosphériques montrant la place des activités agricoles comme zone source de polluants (cadre rouge continu), dans leurs relations de proximité avec l’environnement rural ou urbain (cadre rouge pointillé) et comme zone impactée par les dépôts atmosphériques de polluants (cadre vert pointillé) (source : Ademe).

Dans les deux cas, on voit bien que l’estimation des concentrations ou des dépôts demande de pouvoir quantifier une chaîne de processus physiques (microclimat, dispersion, transport), chimiques (transformations chimiques et photochimiques, réactivité aux interfaces) et biologiques (métabolisme des êtres vivants vis-à-vis des polluants) et de les intégrer dans un cadre de modélisation commun. Dans ce domaine, la modélisation est rendue indispensable par la complexité du système à décrire et par la diversité des situations à explorer.

La figure 1 nous rappelle aussi, s’il en était besoin, que les activités agricoles se positionnent à l’interface surface-atmosphère, avec des composantes fortes sur la partie végétale, l’animal et le sol. Les processus sont semblables à ce qui peut se passer dans des écosystèmes non agricoles, les principales différences portant sur la nature et les quantités des intrants apportés (principales origines des polluants émis) et sur les pratiques de gestion du milieu (par exemple travail du sol, récolte, gestion des résidus, gestion des déjections animales, pâturage). C’est dans ce cadre que l’ouvrage se positionne délibérément, tout en abordant aussi les leviers d’action pour limiter les émissions et les impacts.

Un cadre pour l'élaboration des politiques publiques

Une autre approche, donnant plutôt le cadre de construction des politiques publiques dans le domaine de la pollution de l'air, est illustrée sur la figure 2. Les politiques publiques partent des impacts et remontent la chaîne pour aller jusqu'aux secteurs responsables des émissions. On pourrait ajouter à cette figure la contribution dominante des activités agricoles à la contamination de l'atmosphère par les produits phytopharmaceutiques (pesticides spécifiquement utilisés pour protéger les cultures et leurs productions) et ses conséquences pour la santé humaine et l'état des écosystèmes. Cette approche a conduit à la relative efficacité des politiques publiques sur la qualité de l'air. Elle permet par exemple de partir d'objectifs de réduction des impacts pour évaluer, par le biais de divers outils de modélisation physique, chimique mais aussi économique, sur quelles activités et dans quelles zones géographiques faire porter les efforts de réduction.

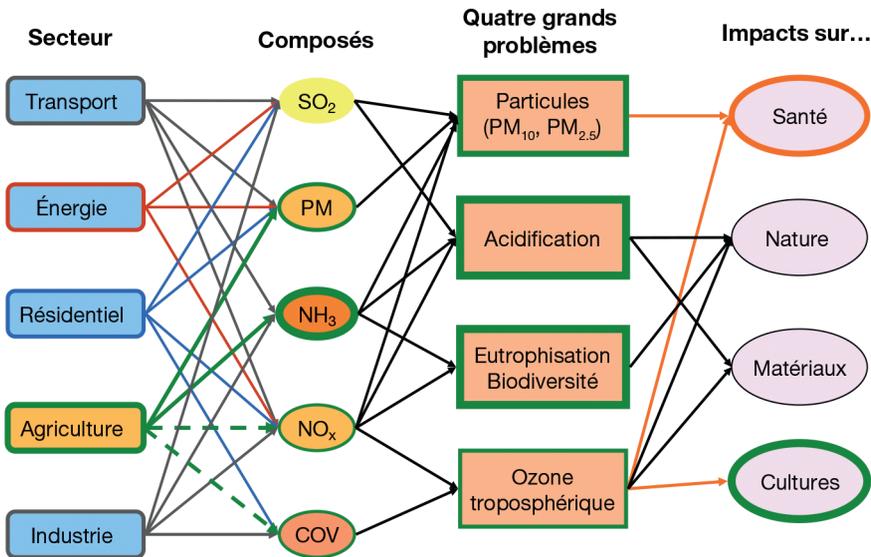


Figure 2. Pollution atmosphérique : origine des composés et impacts occasionnés (d'après EEA, 2012).

Les composés cerclés de vert concernent l'agriculture, l'épaisseur du trait étant fonction de l'importance des émissions agricoles pour ce composé. Les PPP ne sont pas représentés sur cette figure car ils ne font, à ce jour, pas l'objet d'une réglementation pour le compartiment atmosphérique. Quant au CH₄, il est ici intégré dans les COV.

Un cadre pour faire le lien entre déterminants, impacts et action publique

Une autre manière d'analyser ce cadre complexe des relations entre agriculture et qualité de l'air est de situer celles-ci dans un schéma conceptuel tel que le schéma

DPSIR⁵, souvent mis en avant par l'Agence européenne de l'environnement pour les décideurs.

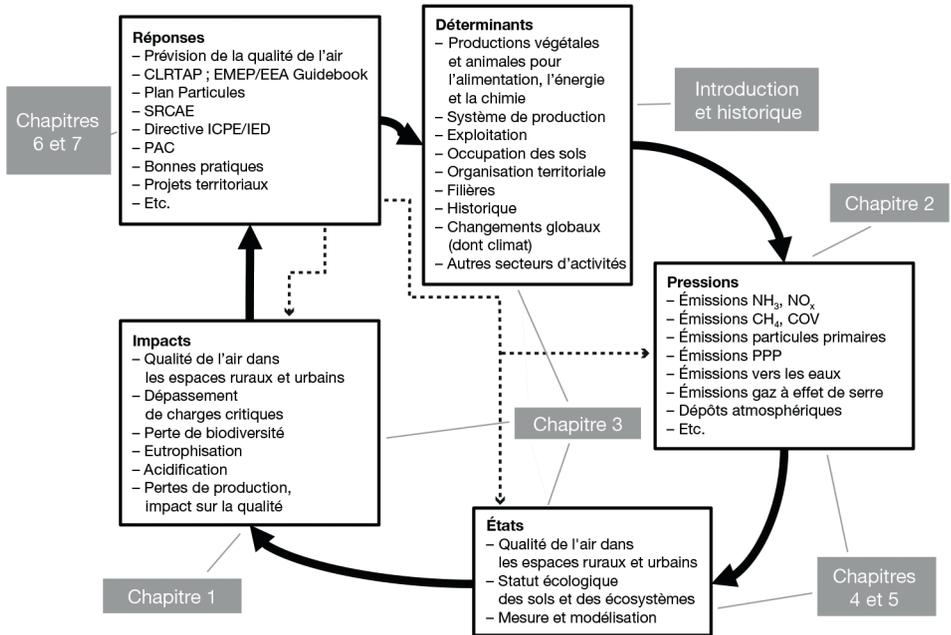


Figure 3. Présentation de la problématique de l'agriculture et de la qualité de l'air sous la forme d'un schéma DPSIR (généralement utilisé pour décrire les interactions entre l'environnement et la société ; EEA, 1999b).

Ce schéma, adapté pour notre cas sur la figure 3, met en évidence :

- la multiplicité des déterminants, qu'ils concernent l'occupation des sols, les caractéristiques des systèmes de production, les interactions avec les autres secteurs d'activité ou les tendances liées à l'histoire ;
- la diversité des pressions que les activités agricoles exercent sur l'environnement par le biais des émissions de différentes natures vers l'atmosphère, mais aussi vers les eaux et les sols ;
- le fait qu'il faille considérer les états d'une diversité de milieux (air, ville, écosystèmes voisins ou lointains...) ;
- la diversité des impacts consécutifs aux émissions et aux dépôts de polluants atmosphériques ;
- un contexte politique et réglementaire qui mobilise de multiples directives traitant directement ou indirectement de la qualité de l'air, et de divers panels d'acteurs et d'experts. Les décisions prises dans ces domaines peuvent concerner l'ensemble des points évoqués précédemment (flèches en pointillés depuis la case Réponses vers les autres cases).

5. DPSIR : *Driving forces, pressures, states, impacts, responses* (en français, déterminants, pressions, états, impacts, réponses).

► Agriculture et qualité de l'air : positionnements relatifs

Ainsi, diverses activités anthropiques sont-elles impliquées dans la dégradation de la qualité de l'air. L'agriculture, activité économique dont le but principal est de nourrir les hommes (en quantité et en qualité), présente une empreinte écologique forte, touchant l'ensemble des compartiments environnementaux que sont les sols, les eaux, la biodiversité et bien sûr l'atmosphère (Guyomard *et al.*, 2017).

L'agriculture, une activité marquée par des évolutions récentes...

Une activité très présente dans les cadres de vie de toutes nos sociétés, et en forte évolution

Les paysages du monde ont été largement façonnés par les activités agricoles. C'est le cas de l'Europe de l'Ouest et en particulier de la France, largement couverte de forêts jusqu'au Moyen Âge avant que les activités agricoles et pastorales n'occasionnent des défrichements massifs. Les surfaces agricoles sont donc un élément très structurant de nos cadres de vie dans les espaces ruraux, mais aussi en zones périurbaines, où se produisent des interactions fortes entre les activités agricoles et le reste des activités anthropiques (zones résidentielles et industrielles, zones d'activités économiques et commerciales, voies de transport).

Tout en restant une activité économique de premier plan en France, forte exportatrice de produits bruts et de produits agroalimentaires, l'agriculture a connu depuis la seconde moitié du xx^e siècle une chute vertigineuse du nombre d'actifs (de 27 % de la population active en 1955 à 3,5 % en 2010) et d'exploitations agricoles (nombre divisé par dix entre la fin du xix^e et le début du xxi^e siècle). Cette évolution s'est accompagnée d'une augmentation de la surface moyenne de chaque exploitation et souvent d'opérations de remembrement conduisant à l'agrandissement des parcelles et à une moindre proportion d'écosystèmes semi-naturels et de structures telles que les haies ou les fossés. Dans l'ouvrage *Les clés des champs. L'agriculture en question* (Réchauchère *et al.*, 2008), Jacques Diouf fait le constat que l'agriculture se voit confrontée à trois défis majeurs : produire une alimentation en quantité et qualité, respecter une compatibilité entre production suffisante et survie des écosystèmes et s'insérer dans un monde « qui bouge, très vite, sur tous les fronts : modifications des conditions naturelles comme les changements climatiques, ou des conditions économiques et sociales de la production, comme l'internationalisation croissante des échanges ». C'est bien dans ce contexte d'un monde agricole sous contraintes, où les facteurs de production deviennent des facteurs de pollution, où la réglementation ou les plans d'action se diversifient et se densifient afin de tenter de répondre aux diverses exigences de respect de la qualité de l'environnement, que s'inscrivent les liens entre agriculture et qualité de l'air. En effet, afin d'assurer un niveau de production satisfaisant, l'agriculture a fait appel à des intrants, produits fertilisants et phytopharmaceutiques permettant d'augmenter cette production, et ce, de manière intensive au cours de la seconde moitié du xx^e siècle. Au début du xx^e siècle, le procédé Haber-Bosch a rendu possible la fixation industrielle de l'azote atmosphérique par combinaison avec l'hydrogène du gaz naturel. La production en masse d'engrais azotés de synthèse a

permis de répondre aux besoins humains en protéines et de contribuer à soutenir la croissance démographique observée depuis, ainsi que d'assurer une nécessaire sécurité alimentaire au sortir de la Seconde Guerre mondiale (Erisman *et al.*, 2008). Ce recours massif aux engrais azotés de synthèse, qui a fortement contribué à l'intensification des productions végétales et animales, a cependant entraîné des modifications drastiques du cycle de l'azote, se traduisant par une rupture des équilibres préexistants et des fuites importantes vers l'environnement à l'origine de multiples impacts sur la biodiversité, la qualité des eaux, de l'air et des sols, la productivité des écosystèmes et le climat (Sutton *et al.*, 2011). À la différence de l'azote, dont les différentes formes en cause sont naturellement présentes dans l'environnement, les PPP sont des molécules non préexistantes qui apparaissent dans l'environnement, par exemple en lien avec la protection des cultures, sur lesquels portent de fortes présomptions d'effets sur la santé de l'homme (Inserm, 2013). Le constat des impacts environnementaux et sanitaires liés à l'usage de ces intrants et les réglementations mises en place pour les limiter ont conduit à une évolution des pratiques vers un usage raisonné des intrants jusqu'aux pratiques d'agriculture biologique, ancrant ainsi l'activité agricole dans une démarche de transition agroécologique.

Une activité imbriquée avec d'autres activités et confrontée à de nouveaux acteurs

Après une longue période d'exode rural après la Seconde Guerre mondiale, qui a correspondu à la mécanisation et à l'intensification de l'agriculture, le mouvement s'est inversé à partir des années 1980 sous l'effet de l'étalement urbain en direction de la campagne en grignotant l'espace rural. Les activités de ces nouveaux arrivants ne relèvent souvent pas de l'agriculture. Dans ce contexte, les interfaces entre l'agriculture et les autres secteurs d'activités anthropiques, notamment le secteur résidentiel, ont fortement évolué au cours des dernières décennies, d'une part, en raison des mouvements des populations urbaines vers les zones rurales, et, d'autre part, du fait de la part grandissante des surfaces occupées par les autres activités anthropiques et de leur imbrication avec les activités agricoles au sein même des espaces ruraux (voies de circulation, extension urbaine, zones d'activité). Une proportion croissante de la population est donc confrontée aux externalités positives et négatives des activités agricoles proches, sans en être partie prenante : épandage de PPP, d'effluents d'élevage, de composts et de fertilisants minéraux, proximité de bâtiments d'élevage ou d'animaux au champ. Les désagréments engendrés peuvent générer des tensions assez fortes (Amiet, 2018). Mais, à l'inverse, les activités agricoles subissent en retour tout un ensemble de contraintes (transport, distance de protection...) et de contaminations liées à la proximité des zones habitées et des zones d'activité, ainsi que des axes de transport.

Enfin, de par sa finalité — produire l'alimentation nécessaire à chacun —, l'agriculture est une activité incontournable et concerne de près chaque citoyen. C'est ainsi un ensemble d'acteurs qui gravitent directement autour de l'activité agricole (agriculteurs, agro-industriels, consommateurs, décideurs politiques...) ou de manière plus lointaine (acteurs non agricoles et résidents des territoires) et qui sont des partenaires à considérer à un niveau ou à un autre dans l'analyse des relations agriculture-qualité de l'air.

... révélant ses liens avec la qualité de l'air...

L'irruption de la question de la pollution de l'air pour l'agriculture

Dans ce contexte, si la question de l'impact des activités agricoles sur la qualité des eaux a émergé dès les années 1970-1980, les relations entre agriculture et pollution de l'air, partiellement évoquées ci-dessus, ne sont l'objet que de préoccupations plus récentes puisqu'elles n'ont vraiment émergé en Europe que dans les années 1990 et en France qu'au début du XXI^e siècle. On voit sur la figure 2 que l'agriculture est très impliquée dans tous les grands enjeux environnementaux, essentiellement par le biais des émissions de NH₃ et de NO_x, auxquelles il faudrait rajouter celles de PPP. De manière générale, la contribution de l'agriculture est aujourd'hui plus sur le devant de la scène du point de vue réglementaire et de celui de l'opinion publique. L'exemple le plus marquant sur le plan réglementaire est celui de l'importance des émissions d'origine agricole dans le cadre de la Convention sur le transport à longue distance de la pollution atmosphérique (CLRTAP, en date de 1979), qui vise à résoudre le problème des pluies acides en réduisant les flux de pollutions transfrontalières. Après la forte décroissance des émissions de dioxyde de soufre (SO₂), gaz d'origine industrielle, l'azote réactif atmosphérique (azote réduit NH_x et azote oxydé NO_x) est devenu l'agent principal d'acidification des écosystèmes en Europe. Les impacts environnementaux du NH₃, masqués jusqu'alors par la pollution acide industrielle, deviennent plus manifestes du fait des réductions des émissions de cette dernière. Il faudra toutefois attendre le Protocole « multi-polluants » (concernant les SO_x, NO_x, NH_x, COV) et « multi-effets » (acidification, eutrophisation, ozone) de Göteborg (1999)⁶ pour que des plafonds d'émission nationaux soient imposés (Sliggers *et al.*, 2004). Les années 1990 voient en parallèle la montée en puissance de la pollution photochimique à l'ozone (O₃). En France, la loi sur l'air et l'utilisation rationnelle de l'énergie (Laure, loi n° 96-1236 du 30 décembre 1996) a marqué une étape importante en instaurant l'obligation du suivi des concentrations des polluants majeurs et l'établissement de plans visant à améliorer la qualité de l'air aux échelles locales (généralement urbaines) et régionales. Nombre de ces plans comprennent un volet agricole. Divers groupes de travail européens, en particulier dans le contexte de la Convention de Genève, appuyés par des groupes techniques associant des acteurs de la recherche, du développement agricole et de la pollution de l'air, ont élaboré de nombreuses recommandations pour réduire les émissions. Celles-ci sont toutefois de nature et de niveau de détail très différents selon les polluants considérés : assez détaillées pour l'ammoniac, elles sont plus frustes pour des composés tels que les PPP ou les COV.

Ces directives et lois, et les actions qui en ont résulté, ont contribué à mobiliser les acteurs agricoles sur les questions liées à la qualité de l'air. Plus directement, la mise en évidence de la contribution de l'activité agricole aux épisodes de pollution printaniers par les particules, identifiée depuis le milieu des années 2000, ainsi que des impacts supposés d'application de PPP à proximité d'écoles, ont été des éléments déclencheurs d'une prise de conscience de la société civile de l'existence d'une problématique

6. http://www.unece.org/env/lrtap/multi_h1.html.

« pollution de l'air » liée aux activités agricoles. Ces deux exemples ont été fortement relayés dans les médias dans les années 2010. Dans cette ligne, un numéro spécial de la revue *Pollution atmosphérique* a été consacré au sujet des liens entre agriculture et qualité de l'air, intitulé « Agriculture et qualité de l'air entre villes et campagnes » en 2016 (Roussel, 2016). Les programmes de recherche tels que Primequal ont lancé des appels à projets de recherche dédiés, comme par exemple l'appel à projets nationaux « Agriculture et qualité de l'air » de 2016, qui faisait suite à un séminaire national sur ce sujet en 2014. Le suivi et la réduction de la contamination aérienne liée à l'agriculture sont à présent inscrits dans les politiques publiques en France. Citons entre autres les mesures concernant l'agriculture dans le plan Particules de 2010, les opérations pilotes de la feuille de route 2015 issue de la Conférence environnementale 2014, les recommandations du rapport Potier (2014) relatives au plan Écophyto ainsi que celles de la Cour des comptes en 2015 quant à l'organisation d'une surveillance obligatoire des pesticides dans l'air, les actions immédiates portées par les ministres chargés de l'Écologie et de la Santé dans le cadre du 3^e Plan national Santé Environnement, la saisine Anses sur la méthodologie d'une surveillance des pesticides dans l'atmosphère (2017), le renforcement des objectifs nationaux de réduction des émissions d'ammoniac dans le cadre de la directive NEC (National Emission Ceilings, 2016/2284/UE) ou des actions du dernier Plan de réduction des émissions de polluants atmosphériques (Prepa, mai 2017, concernant les cinq polluants majeurs SO₂, NO_x, COVNM, PM_{2,5} et NH₃).

Ce n'est en revanche qu'au début des années 2010 qu'émerge la prise de conscience que l'agriculture subit de façon significative l'impact de pollutions dont elle n'est pas toujours à l'origine. Par exemple, le rendement des cultures peut se trouver affecté de manière significative par l'ozone. Un autre cas est celui de certaines surfaces agricoles proches de sources polluantes (par exemple routes à forte densité de circulation), où les cultures à vocation alimentaire pourraient être interdites. L'implantation de cultures à vocation énergétique par exemple peut constituer une autre voie de valorisation de ces terres.

Complexité et spécificités des relations entre agriculture et qualité de l'air

L'analyse du contexte des relations entre agriculture et pollution de l'air a mis en exergue la complexité et la multitude des questions posées et des acteurs concernés, agricoles ou non. Par ailleurs, ce contexte s'inscrit dans un milieu ambiant en évolution et présente des spécificités à prendre en compte.

En premier lieu, l'agriculture est confrontée à des changements de diverses natures :

- le changement climatique, que les activités agricoles peuvent aggraver (par les émissions de GES) ou atténuer (piégeage du carbone), et par lequel elles sont fortement impactées (modification des cycles culturaux, de la pression des ravageurs...);
- les changements d'usage des sols, qui se traduit par des modifications des cultures (légumineuses, cultures énergétiques...) ou qui résulte d'une compétition avec l'extension urbaine ;
- la transition agroécologique, avec des incitations à réduire l'usage des pesticides, ou grâce à une contribution plus forte à l'économie circulaire notamment grâce à

ses capacités de recyclage de produits résiduels organiques (PRO), encore appelés « matières fertilisantes d'origine résiduelle » (Mafor), toujours plus variés ;

- les changements de mode de consommation (moins de viande en Europe, plus en Asie ; qualité des produits) ;
- des interrogations sur les modes de production, tels que les différentes formes d'agriculture, y compris urbaine, l'agriculture de conservation, une visibilité accrue de l'agriculture biologique, les agricultures multiperformantes.

Toutes ces évolutions majeures modifient les relations entre agriculture et qualité de l'air, soit en accroissant les risques d'émissions depuis les activités agricoles, soit en offrant des opportunités de solution pour réduire les impacts.

L'une des spécificités les plus évidentes de la relation entre agriculture et qualité de l'air porte sur les composés atmosphériques concernés, dont certains peuvent être associés quasi exclusivement à l'activité agricole car émis principalement par celle-ci : c'est le cas de l'ammoniac, polluant agricole par excellence dans une agriculture intensive, et des produits phytopharmaceutiques. Une autre spécificité de l'agriculture est qu'elle repose en grande partie sur le fonctionnement biologique des cultures et des animaux d'élevage, fonctionnement lui-même soumis à la variabilité des sols et du climat. Par ailleurs, l'activité agricole s'exerce sur de grandes étendues (la surface agricole utile couvre actuellement 51 % du territoire français), conduisant à des émissions à la fois diffuses (champs) ou ponctuelles (bâtiments), alors que les sources des autres activités sont plutôt ponctuelles (industrie, production d'énergie) ou linéaires (transports). Enfin, la coexistence de l'agriculture avec les autres activités dans les espaces ruraux et périurbains induit des interactions entre les polluants émis par l'agriculture et ceux émis par ces autres activités qui participent ainsi à une chimie atmosphérique complexe. Par exemple, la production de particules fines à partir d'ammoniac, très majoritairement émis par l'agriculture, nécessite une réaction avec des composés acides (comme HNO_3 ou H_2SO_4) produits par de multiples secteurs, surtout les transports, la production d'énergie et le secteur résidentiel. Sans oublier la complexité des impacts combinés de ces différents polluants.

... et nécessitant de nouvelles évolutions dans un objectif de réduction

Des acteurs agricoles de plus en plus concernés mais une mise en pratique encore balbutiante

Le lien avec l'activité agricole doit être aussi explicite que possible dans l'analyse de la chaîne allant des émissions de polluants atmosphériques ou de leurs précurseurs aux impacts et aux réponses. En effet, des mesures de réduction des émissions ont forcément des conséquences sur l'organisation du travail, les équipements nécessaires et l'équilibre économique de l'exploitation agricole. Ces différentes conséquences peuvent être des points de blocage pour l'adoption de mesures environnementales. De la même manière, les réductions de rendement ou de qualité des produits liés à la pollution de l'air peuvent avoir un impact économique significatif. Mais force est de constater que cette contrainte, malgré des estimations d'impacts importants

(par exemple de l'ordre de 10 % de pertes de rendement sur le blé dus à l'ozone en Europe ; Mills *et al.*, 2016), n'est que peu, voire pas prise en compte jusqu'ici par les acteurs de l'agriculture et de l'élevage. De manière générale, la pollution est une préoccupation importante, mais elle ne se traduit encore que rarement dans les faits par des décisions stratégiques ou tactiques au niveau des exploitations ou des filières. De plus, la question de la pollution de l'air s'ajoute à tout un ensemble de questions environnementales qui concernent l'agriculture et l'élevage, en particulier la qualité des eaux (nitrate, pesticides) et le changement climatique (émission de N₂O et de CH₄, stockage de carbone par les sols, évolution du climat et de la phénologie des cultures). On voit donc bien la nécessité de considérer les problèmes à la fois à l'échelle de l'exploitation agricole et à des niveaux d'intégration plus larges : collectifs d'agriculteurs, petites régions, filières, bassin d'approvisionnement... De plus, même si les acteurs de l'agriculture et de l'élevage sont les plus directement visibles, tous les acteurs des filières, en amont (fournisseurs) et en aval (transformation, distribution, consommateurs), peuvent être également concernés.

Des recommandations à élargir pour réduire les émissions agricoles

Jusqu'ici, les mesures préconisées dans les guides de bonnes pratiques des politiques publiques relatives à la pollution de l'air ne concernent quasiment que des pratiques élémentaires à l'échelle de l'animal, du bâtiment, de la zone de stockage ou de la parcelle (culture ou prairie). À un premier niveau assez immédiat, les liens entre les différents postes d'émissions ne sont pas comptabilisés, alors que dans la réalité d'une exploitation agricole ils s'enchaînent de manière logique et souvent dans un contexte spatial marqué (bâtiments, parcours, parcelles de culture, pâtures), avec tout ce que cela peut impliquer pour ces sources et pour l'évaluation des impacts sur l'environnement. Ces enchaînements peuvent être très variables selon les systèmes de production, les choix de l'agriculteur ou de l'éleveur et les conditions du milieu (climat, sol, environnement).

À un niveau plus large, la dimension systémique de l'activité agricole, avec ses choix stratégiques en matière de systèmes de production, de types d'agriculture mobilisant plus ou moins des intrants externes et de pilotage, n'est actuellement pas prise en compte. C'est pourtant peut-être à l'aune de ce type de choix qu'il pourrait être possible d'infléchir de manière significative les émissions du secteur agricole, ou tout au moins d'évaluer dans un premier temps les potentiels de réduction réels d'émissions, puisque c'est à ce niveau que se construit la cohérence entre l'ensemble des pratiques de gestion à l'échelle d'une exploitation agricole. Faute de références suffisantes, cette dimension ne pourra pas être abordée dans cet ouvrage.

►► Pour la suite...

Ces éléments de mise en contexte montrent les multiples facettes des relations entre agriculture et qualité de l'air qui mettent en exergue le besoin d'aborder leur étude *via* des approches pluridisciplinaires, intégratives, multi-échelles, multipolluants,

multi-acteurs, en prenant en compte ses spécificités en matière de polluants, de surface d'échange, d'acteurs, de fonctionnement des activités agricoles, tout en faisant le lien avec les autres problématiques environnementales et les réglementations associées.

Avant d'entrer dans le vif du sujet, nous proposons au lecteur de resituer la problématique des interactions entre agriculture et qualité de l'air dans la dimension historique et sociale de l'évolution de l'activité agricole et de ses liens avec l'environnement au sens plus large.

Agriculture, environnement et qualité de l'air : regard historique et appréhension sociale

Lionel Charles

⋮ Nous présenterons ici l'émergence des questionnements sur les liens entre agriculture et qualité de l'air en les resituant dans le contexte général des relations entre agriculture et environnement, faisant ressortir la complexité de cette problématique. Pour ce faire, les origines mêmes de l'agriculture, son évolution historique, ses transformations récentes et les interrogations quant à son futur sont présentées, ainsi que ses spécificités tant du point de vue de ses relations à l'environnement qu'avec le champ social et économique dans son ensemble. Au sein même de la problématique environnementale, la diversité des modes d'émergence, des processus, des acteurs impliqués en matière de qualité de l'air est illustrée *via* les thématiques les plus importantes du domaine (pollution aux particules de nitrate d'ammonium, exposition des riverains aux pesticides, impact de la pollution atmosphérique sur la production agricole *via* l'ozone), et leurs implications pour l'avenir de l'activité agricole examinées.

Emblématique de la problématique environnementale dans son ensemble, la question de la qualité de l'air est particulièrement complexe et délicate. La multiplicité des sources et des phénomènes à l'origine des pollutions, leur lien étroit avec

l'activité techno-économique, le fait que ceux-ci échappent très largement à la perception sensible, la sophistication des mécanismes physiques, chimiques et biologiques impliqués dans leur impact sanitaire ou sur les écosystèmes longtemps très mal appréhendés et compris⁷, leur dimension évolutive expliquent pour une large part la difficulté des sociétés humaines à en réguler les manifestations et l'extension (Brimblecombe, 1987). L'émergence des théories néo-hippocratiques⁸ aux xvii^e et xviii^e siècles et la part qu'elles donnent à l'air et à l'environnement introduisent une première appréhension, largement erronée dans ses fondements, des pathologies liées à l'air et l'élaboration de mises en œuvre pour y répondre (Charles, 2014). Depuis la fin du xviii^e siècle, le développement considérable de l'industrialisation et l'urbanisation qui l'a accompagnée ont considérablement élargi l'échelle du problème⁹. En France, en dépit d'initiatives assez anciennes (loi de 1810), on peut considérer que ce n'est que depuis la fin des années 1950 (Charvolin et *al.*, 2015) que la question de la qualité de l'air a commencé à faire l'objet d'une prise en considération systématisée significative (loi de 1961)¹⁰, à la suite de la catastrophe de Londres en 1952, de ses milliers de décès et des initiatives anglaises pour y faire face (Clean Air Act, 1956) ou des mises en cause californiennes¹¹. Elle est essentiellement envisagée comme liée à l'industrie, mais également urbaine à un moment où l'activité industrielle, alors source principale des émissions, avec le chauffage, est encore largement implantée en ville et dans ses périphéries. Ce questionnement est à replacer dans le contexte des transformations très rapides de la société française d'après-guerre (Bess, 2003), soumise à un puissant mouvement de modernisation. L'idéologie industrialiste et modernisatrice s'accompagne, dès la fin des années 1940, d'une reprise en main par l'État de l'appareil productif à travers un vaste programme de nationalisations qui fait de celui-ci un acteur industriel majeur. Le contrôle qu'il est amené à exercer en matière de pollution se montre restreint à un champ étroitement technique, lié au rôle très important de la technostucture dans ces développements, qui marquera tous les développements ultérieurs en matière de pollution, et plus largement d'environnement. Cette approche tient aussi à ce que la France ne dispose que d'une faible culture en matière de santé publique et de prévention (Jorland, 2010), affiche un retard important en matière d'écologie par rapport au monde anglo-saxon¹², ne possède pas de tradition

7. Ce n'est que très récemment, au tournant des années 2000, que l'impact sanitaire des particules fines a été véritablement démontré et compris, ces avancées constituant un tournant majeur dans l'appréhension sanitaire de la pollution atmosphérique. Sur la base de ces travaux, l'OMS a évalué, dans des rapports récents, à plus de sept millions de décès annuels à l'échelle mondiale l'impact sanitaire de la pollution atmosphérique intérieure et extérieure. Voir également la synthèse publiée dans *The Lancet* (Landrigan et *al.*, 2017).

8. Le terme désigne le mouvement de renouveau médical qui s'amorce au xvii^e siècle, inspiré par un retour à l'approche développée dans le Corpus hippocratique, en particulier le traité *Airs, eaux, lieux*, et la place qu'il fait à l'air, aux saisons, au climat et à la topographie, de fait à l'environnement, dans l'origine des maladies. Il réintroduit l'épidémiologie, ignorée par Galien, et amorce, au xviii^e siècle, le développement de l'hygiène publique, en particulier en Grande-Bretagne.

9. Différents travaux (Uekoetter, 2009 ; Thorsheim, 2006) offrent une bonne appréhension de la problématique industrielle de la qualité de l'air sur la longue durée dans certains grands pays industrialisés.

10. Pour une approche de la situation française sur le long terme, voir Massard-Guilbaud (2010), Le Roux (2011), Jarrige et Le Roux (2017).

11. Dès la fin des années 1940, le développement de la circulation automobile à Los Angeles génère un *smog* photochimique, dont les processus sont analysés par A. Haagen-Smith au début des années 1950.

12. Pour rappel, la Société française d'écologie n'a été créée qu'en 1968, alors que la British Ecological Society l'a été en 1913, et l'Ecological Society of America en 1915.

environnementale affirmée¹³ et ancre son approche sociopolitique dans un *ethos* d'objectivation rationnelle méconnaissant la subjectivité. Les différentes initiatives mises en œuvre dans les années 1960 et 1970, jointes aux transformations du système de production énergétique français avec le développement du nucléaire après 1974, aboutissent progressivement à des réductions très significatives des émissions de dioxyde de soufre et de particules liées aux sources industrielles.

Avec la croissance considérable du parc automobile à partir des années 1950 vient progressivement s'adjoindre à la dimension industrielle un questionnement lié aux transports, essentiellement en contexte urbain, dont la prise en compte institutionnelle ne s'opère cependant que très lentement et difficilement, à partir des années 1980 (Roussel et Charles, 2007) : ce n'est qu'avec la loi sur l'air de 1996, vingt ans après celle sur les installations classées, que la qualité de l'air fait l'objet d'un dispositif législatif intégrant explicitement les préoccupations automobiles, sanitaires et urbaines, dont la mise en œuvre ne s'effectue cependant qu'avec retard et très partiellement, comme n'a cessé de le rappeler Lepage (1998 ; 2017), et de façon très technique et normative. Le premier plan santé-environnement français n'est mis en place qu'en 2004. Et ce n'est que depuis quelques années que, parallèlement aux initiatives de l'État, à travers de multiples dispositifs successifs (plans de protection de l'atmosphère, PPA ; plan de déplacement urbain, PDU ; plan Particules ; Plan national de réduction des polluants atmosphériques, Prepa ; Plans climat-air-énergie territoriaux, PCAET, etc.), l'on assiste à une mobilisation plus directement opératoire autour de cette question, de plus en plus nettement prise en charge par les structures urbaines elles-mêmes (zones basses émissions, ZBE ; écomobilité et révision des politiques municipales de transport, etc.). La lenteur des avancées et l'ampleur limitée des résultats enregistrés témoignent cependant de la difficulté du problème, de l'insuffisance des politiques publiques dans ce domaine¹⁴, de l'ampleur des investissements nécessaires tant sur le plan matériel que comportemental et social, rejointes en cela par la montée en puissance de la question climatique.

L'émergence auprès du grand public de la question des pollutions atmosphériques en relation avec l'agriculture, de leur impact sur les populations urbaines et rurales et les écosystèmes est, en France, beaucoup plus récente encore, portée à l'attention collective par plusieurs épisodes printaniers impliquant les épandages (Rouil et *al.*, 2015), en dépit des alarmes récurrentes concernant l'usage des pesticides et leurs impacts sanitaires¹⁵. Si ce retard résulte pour une part de la complexité de la problématique de la qualité de l'air évoquée précédemment, il est aussi le fruit des spécificités techniques, économiques, sociales, des ancrages historiques de l'activité agricole et de ses relations difficiles (en France notamment) avec l'environnement. Il interroge l'appréhension de la question de l'air, dont la dimension écologique et

13. Divers travaux récents (Fureix et Jarrige, 2015) se sont efforcés de faire ressortir les inquiétudes et les doutes qui ont marqué le XIX^e siècle français, cherchant à en produire une image plus contrastée que celle proposée en général de siècle du progrès, tout en confirmant la faible part qu'y a l'environnement. Dans le mémoire *La mortalité dans les divers quartiers de Paris* publié en 1830, Villermé met en concurrence approches sociale et environnementale, disqualifiant cette dernière. Barles a montré (2010) le rôle de rectification du milieu dévolu, tout au long du XIX^e siècle, à l'ingénierie en matière d'assainissement.

14. Rapport de la Cour des comptes, 2015. Le 17 mai 2018, la France a été assignée, avec plusieurs autres pays, devant la Cour de justice de l'Union européenne pour non-respect des normes sur la qualité de l'air.

15. Dès 1962, l'ouvrage de Carson *Silent Spring* avait donné l'alerte sur cette question.

la façon dont elle affecte l'ensemble des espèces et des écosystèmes sont restées relativement peu prises en considération, sans ignorer cependant la question des pluies acides et de leur impact sur les forêts ou les lacs dans les années 1970-1980 (Roqueplo, 1988). Appréhender la question des relations entre agriculture et qualité de l'air dans sa pleine extension demande de revenir aux origines mêmes de l'agriculture et d'en préciser la spécificité, en particulier dans sa relation à l'environnement, mais aussi au champ social dans son ensemble. Ce sont ces différents aspects que nous nous attacherons à présenter maintenant.

► Brève histoire de l'activité agricole

De toutes les activités humaines, l'agriculture est sans doute celle qui, depuis plus de dix millénaires et son émergence au Néolithique, a le plus largement engagé un nouveau rapport des humains avec l'environnement, installant une situation d'interdépendance sans précédent par son échelle et l'extension de ses développements, entre le monde humain et les capacités productives de la nature.

Depuis les années 1970, les travaux des archéologues et des anthropologues ont permis de développer une appréhension à la fois biologique, technique et sociale plus concrète de l'apparition de l'agriculture. Les populations de chasseurs-cueilleurs nomades, qui ont précédé depuis les origines de l'humanité les chasseurs-cueilleurs sédentarisés, sont des sociétés égalitaires, y compris du point de vue du genre (Dryble *et al.*, 2015). Leurs caractéristiques sont largement conditionnées par la mobilité : ce sont des groupes de petite taille, avec des naissances espacées de plusieurs années et des biens matériels très limités de façon à réduire tout obstacle aux déplacements, recours essentiel dans l'accès aux ressources. Les chasseurs-cueilleurs sédentaires, comme l'a montré Testart (1982), ont développé des caractéristiques très différentes : d'une part, l'accumulation de biens avec le développement de systèmes de stockage permettant de bénéficier de réserves pour faire face aux pénuries, mais aussi le développement de structures sociales plus différenciées et inégalitaires, y compris entre hommes et femmes, avec des naissances plus rapprochées et donc plus nombreuses, entraînant une croissance des populations et donc de fait une pression démographique plus importante. Et c'est dans ce contexte de sédentarisation préalable que se situe l'origine de l'agriculture, qui a, à son tour, amplifié les processus déjà mis en place par la sédentarisation¹⁶, favorisant en cela le développement agricole lui-même, selon la thèse développée par Boserup (1965), et sa dissémination¹⁷.

L'agriculture apparaît ainsi comme le fruit d'une série d'enchaînements qui ont favorisé la croissance des groupes humains tout en les soumettant à un régime d'exigences biologiques, économiques, organisationnelles et sociales beaucoup plus étroites et contraignantes. De nombreux travaux ont apporté un éclairage sur ces

16. Après avoir connu un premier accroissement au Paléolithique supérieur, où elle atteint environ six millions d'individus, la population humaine voit son effectif passer en 10 000 ans, avec la néolithisation, à cent millions d'individus au début de notre ère.

17. On peut mentionner l'approche assez différente développée par J. Scott dans son récent ouvrage (Scott, 2019).

aspects, mettant en évidence une diminution de la taille des individus au sein des premières populations agricoles, signe des restrictions alimentaires pesant sur ces sociétés¹⁸, et de multiples vulnérabilités : vulnérabilité accrue aux épidémies, liée à l'accroissement de la densité des populations, vulnérabilité, rendue cruciale par la sédentarité et la croissance des populations, aux variations des ressources agricoles et aux risques de pénurie¹⁹, vulnérabilité enfin aux risques d'agression (Guilaine, 2015). Si donc l'agriculture a permis la constitution de groupements humains beaucoup plus importants et pérennes, qui donnent naissance aux premiers villages, puis à des villes et à l'essor des civilisations, ces transformations demandent cependant à être vues dans la multiplicité de leurs implications. De fait, par rapport aux groupes restreints de chasseurs-cueilleurs nomades liés entre eux par une dynamique inter-subjective égalitaire forte, le passage à l'agriculture implique l'élaboration d'un cadre collectif beaucoup plus complexe, différencié et hiérarchisé, nécessaire pour assurer la cohérence d'un groupe lui-même différencié (Scott, 2019). Cette socialisation, dont l'élaboration l'emporte sur la relation plus immédiate des populations antérieures à l'environnement, a pour effet de recentrer les communautés humaines sur leurs propres spécificités et sur les dynamiques contraignantes liées à leur développement.

Comme l'ont développé Mazoyer et Roudart (1997), les agricultures anciennes sont peu productives, avec des rendements très faibles et aléatoires, et qui ne progresseront que très lentement au fil des siècles, des évolutions des techniques et des pratiques agricoles. Sur le plan social, ces systèmes agricoles reposent largement, en particulier en Grèce ou à Rome, sur l'esclavage ou le servage et la colonisation d'espaces périphériques pour accroître les ressources et en asservir les populations. Les agriculteurs, pénalisés par les contraintes spécifiques liées à l'activité agricole, sont aussi les premières victimes des processus inégalitaires attachés à l'agriculture, livrés à la domination de forces et de hiérarchies militaires, économiques ou sociales qui les dépossèdent de son bénéfice et de son contrôle.

Regard historique sur l'agriculture française

Ces caractéristiques marquent également l'histoire française de l'agriculture. Les travaux de Duby, comme ceux, postérieurs, de Malassis, soulignent la situation de vassalité et d'exploitation récurrente des populations agricoles qui s'installe très tôt. Duby (1975) écrit : « En revanche, on distingue de manière fort nette que dès sa formation peut-être, dès l'avènement d'une agriculture stable, la paysannerie fut dominée par d'autres corps sociaux dont elle n'a cessé de subir le joug. Cette domination, lorsque des conquérants étrangers ne l'imposèrent pas, fut celle de spécialistes nécessaires, les prêtres, les guerriers, les artisans, les trafiquants. Tous parasites de la

18. Diamond a évoqué dans un article (1987) qui a fait date les désavantages introduits par le passage de la chasse-cueillette à l'agriculture, dont il a approfondi ensuite l'analyse dans l'ouvrage *De l'inégalité parmi les sociétés* (1997). L'ouvrage récent (2016) de Deaton a apporté un éclairage particulièrement riche sur cette question.

19. Le développement du nomadisme pastoral a constitué pour une part une réponse à ce type d'aléa. Au Moyen Âge, les périodes de disette s'accompagnent d'un retour au vagabondage des populations paysannes et d'un développement du brigandage.

production villageoise, et qui fondèrent leur relative prospérité sur une exploitation du labour agricole. » Se développent de façon précoce (Duby, 1978) des configurations figeant la place des agriculteurs, « ceux qui travaillent » (*agricolarii-laborare* selon le terme latin), au sein d'un cadre social englobant rigide, les trois ordres de la société d'Ancien Régime, d'où émerge, au xvii^e siècle, l'absolutisme. Pour Duby, l'inscription de cette structure sur plus de huit siècles est particulièrement éclairante et symptomatique d'une vision close et figée de la société, soumise à un cadre général maintenu par les élites dirigeantes, et de l'obstacle que celui-ci a constitué à toute évolution et transformation. Un premier accroissement de la production agricole à partir de l'an mille aboutit à une importante régression du servage au xiv^e siècle, qui ne sera aboli en droit qu'en 1779. Ce lourd héritage²⁰ pèse d'un poids très important sur le devenir de l'agriculture, de la condition paysanne (Malassis, 2004) comme de la société française, et explique sans doute largement l'inertie du monde agricole au xix^e siècle, que traduit le compromis politique passé entre agriculture, ruralité et III^e République, au terme duquel cette dernière s'engage à ne pas porter atteinte à la paysannerie en échange de son ralliement à l'ordre républicain.

Une mutation accélérée d'une grande brutalité

Le poids de l'agriculture et de la ruralité dans l'économie et la société française est resté longtemps dominant, bien que mis au second plan dans l'imaginaire social et culturel (Elias, 1985), et ce n'est qu'après la Seconde Guerre mondiale que l'agriculture s'est trouvée entraînée dans un puissant mouvement de transformation et de modernisation, se traduisant par l'exode de la plus grande part des populations agricoles et rurales vers les villes. Cette mutation radicale de l'activité agricole s'inscrit dans la dynamique générale de modernisation évoquée précédemment. Cette mutation s'est ainsi effectuée de façon d'autant plus brutale socialement qu'elle était tardive, massive et rapide. Comme le résume Mendras dans la postface rédigée pour la réédition en 1992 de *La fin des paysans* : « En une génération, la France a vu disparaître une civilisation millénaire. »

Quelques données concernant l'évolution de l'agriculture française et des populations agricoles après la guerre permettent de mieux cerner l'ampleur de ces transformations. En 1946, où la population française est évaluée à 40,5 millions d'individus, l'emploi agricole représente encore plus du tiers des emplois (36,4 %), avec 7,5 millions d'actifs²¹ et une population de ménages agricoles de 10,2 millions d'individus, contre 29,2 % pour l'industrie et le solde pour les services. En 1986, selon l'Insee, l'emploi agricole ne représente plus que 7,7 % des emplois, avec 1,65 million d'actifs, et 3,6 % aujourd'hui avec 900 000 emplois environ²². Depuis 1946, le nombre d'exploitations agricoles a été divisé par cinq, passant de 2,5 millions environ à l'époque à 450 000 en 2013, alors que la taille moyenne de

20. Voir le parallèle dressé par Mendras (1967) entre les évolutions relatives des agricultures anglaises et françaises à partir du xviii^e siècle.

21. Le nombre d'actifs agricoles a atteint son maximum historique en 1906, avec 8,4 millions d'actifs.

22. La population française était évaluée à 57,1 millions d'individus en 1986 et à 67,2 millions au 1^{er} janvier 2018.

ces exploitations a considérablement augmenté, passant de 14 hectares en 1955 à 61 hectares aujourd'hui.

Une idéologie du progrès à tout crin et l'accroissement des capacités productives visant l'autosuffisance alimentaire et, plus généralement, l'amélioration des conditions matérielles ont été les principales réponses apportées au retard antérieur, associant mutation agricole, exode rural, massification des transports et industrialisation accélérée. Concernant l'agriculture, on peut distinguer deux moments : d'une part, la période de reconstruction qui a suivi la guerre, avec la mise en œuvre de grands aménagements favorisant en particulier l'irrigation (canal du Bas-Rhône Languedoc) et un premier développement de la mécanisation²³, et d'autre part, à la suite des lois d'orientation agricole de 1960 et 1962 qui jettent les bases d'une modernisation de grande ampleur de l'agriculture, le développement de la PAC, la politique agricole commune (1962). Celle-ci associe cette mutation à une dynamique plus large, à la fois européenne mais aussi mondiale, visant à renforcer les capacités productives²⁴ d'un système capable de nourrir une population non seulement européenne, mais dont les excédents pouvaient être diffusés sur les marchés mondiaux.

Cette évolution s'est faite *via* une pression très importante exercée sur les exploitants avec la contrainte d'adapter leur mode de production ou de disparaître, en même temps qu'étaient mis en place des systèmes d'aide permettant aux agriculteurs qui le souhaitaient de se retirer. Elle s'est aussi faite à travers le développement d'un environnement technique et financier qui s'est révélé très fortement contraignant. Sur le plan technique, s'ajoutent à la mécanisation la sélection des semences et l'usage généralisé d'intrants de synthèse, fertilisants et produits phytosanitaires, qui vont permettre un accroissement considérable des rendements, mais déterminent aussi le schéma d'un productivisme généralisé comme cadre de référence de la pratique agricole. Ils génèrent également de profondes perturbations sur le plan écologique et sont à l'origine d'une large part du flux des émissions polluantes désormais liées à l'activité agricole. Sur le plan financier, le recours à l'emprunt pour permettre la modernisation, l'achat de matériel et d'équipement introduisent la dépendance vis-à-vis des banques et du secteur financier, en même temps que croissent parallèlement le poids de la grande distribution et celui d'un puissant secteur agroalimentaire qui reconfigurent massivement les cadres et les circuits de commercialisation. Ces transformations se traduisent également par le développement de très grandes disparités et inégalités au sein du monde agricole, entre filières, mais aussi entre taille et revenus des exploitations. Elles bénéficient du soutien du syndicalisme agricole, lui-même lié dans certaines de ses composantes aux intérêts des plus gros exploitants et d'entreprises de l'agroalimentaire qui ont largement su bénéficier de cette dynamique économique. Cette évolution présente plusieurs effets paradoxaux : une baisse importante de la valeur de la production agricole due à la baisse des prix liée à l'augmentation des productions, qui ont doublé entre 1960 et 2004 (Desriers, 2007), mais aussi une baisse de la part de l'agriculture dans le PIB, passée de 10 % en 1960

23. La France comptait un peu plus d'une centaine de milliers de tracteurs de puissance modeste en 1948, et 859 000 en 1962, avec déjà une amorce d'évolution quant à leur puissance.

24. Ce schéma est à l'origine de la révolution verte, avec la visée de combler le retard de la production agricole dans des pays comme l'Inde à partir de modèles occidentaux, profondément remis en question par la suite.

à 1,7 %. Si l'on y ajoute l'agroalimentaire, avec 3,5 % du PIB (à peu près équivalent à celui de la culture), le secteur pèse d'un poids économique limité, ce qui contribue aussi à en réduire la visibilité, en même temps qu'il est massivement excédentaire du point de vue du commerce extérieur avec environ 7 milliards d'euros d'excédent en 2015, en dépit du recul d'un certain nombre d'exportations. Ces processus expliquent aussi la baisse des revenus des agriculteurs, qu'il est possible d'évaluer à 56 % entre 1960 et 2004.

C'est dans ce contexte très contraint et largement dominé par les exigences économiques qu'émergent très tôt les préoccupations environnementales non seulement générales (protection de la nature face à la régression de la faune et de la flore, pollutions industrielles et urbaines, déchets), mais aussi directement liées à l'agriculture, aux mutations des pratiques agricoles et à la sous-appréhension de sa dimension écologique et paysagère (pollution des eaux par les nitrates, dégradation des sols, destruction des haies avec le remembrement, etc.)²⁵.

► L'environnement et la qualité de l'air

Domaine de l'action publique, l'environnement désigne de façon générique une spécificité du vivant, de son individuation et de son autonomie, l'univers extérieur (air, eau, ressources, autres espèces, etc.) avec lequel il est en relation et dont il est tributaire du point de vue de son existence dans ses multiples aspects. La notion d'environnement, d'origine largement anthropocentrique, amorce de prendre le sens que nous lui connaissons avec la modernité. Elle trouve ses racines dans l'empirisme baconien et lockien et ses dimensions individuées et opératoires. Elle s'affirme progressivement comme soubassement au champ de la santé avec le néo-hippocratismes et comme vecteur d'une approche renouvelée, sensible de la nature, initiée, dans la suite de Locke, par le philosophe anglais Shaftesbury. Sur le plan biologique, et de fait existentiel, elle prend pleinement forme et consistance avec la théorie darwinienne de l'évolution²⁶ et l'idée, désormais dégagée de toute référence religieuse, d'un développement immanent du vivant, faisant de celui-ci l'opérateur autonome de sa propre transformation dans le jeu de ses relations. Celle-ci donne son cadre théorique à l'écologie en tant que discipline scientifique, laquelle généralise à l'ensemble du vivant la notion d'environnement²⁷.

25. L'appréhension française de l'environnement s'est aussi trouvée fortement marquée dans ses développements par les mutations de la ruralité, la prégnance d'un imaginaire de la nature cultivée et une nostalgie pour un monde menacé de disparition. Ces éléments ont sans doute constitué un frein à une ouverture vers des horizons thématiques plus larges, vers une approche à la fois plus immatérielle, plus décentrée, multiforme, fonctionnelle et ouverte de l'environnement.

26. Dont il faut rappeler l'ancrage dans une approche populationnelle *via* Malthus, dans la logique des développements de la démographie en Angleterre depuis les premiers travaux de Graunt, Petty et Haley.

27. L'écologie est aussi une incitation majeure à reconsidérer le modèle culturaliste proposé pour interpréter la bifurcation qui s'est installée avec la sédentarisation et la néolithisation en tant que régime de production alimentaire dominé par l'agriculture, rejetant l'environnement à la périphérie d'un monde de fait centré de façon prédominante sur ses registres spécifiques d'élaboration collective, techniques, sociaux, religieux, politiques.

Comme nous l'avons indiqué dès le départ, la question de la qualité de l'air illustre mieux qu'aucune autre cette problématique environnementale dans la production non intentionnelle mais néanmoins massive par une large gamme d'activités humaines d'émissions polluantes susceptibles d'impacter la santé des populations humaines et animales, d'affecter les écosystèmes ou d'intervenir dans la problématique du climat. De tous les compartiments de l'environnement, l'atmosphère est celui qui permet la diffusion la plus large des différents composants qui y sont émis et donc leur transfert sur de très grandes distances, comme en témoignent les problématiques de l'azote, avec pour conséquence l'eutrophisation des écosystèmes, ou encore la dissémination des polluants organiques persistants (POP), que l'on retrouve jusque dans les régions arctiques. Par ailleurs, loin d'être neutre comme on le croit souvent, l'atmosphère est aussi le lieu potentiel d'un large jeu de réactions physico-chimiques dont le plus connu est celui de la formation d'ozone sous l'action du rayonnement solaire. De ce point de vue, comme le présentent en détail les divers chapitres de cet ouvrage dont nous ne ferons qu'évoquer rapidement ici les thématiques, les activités agricoles constituent des sources multiples de polluants solides, liquides ou gazeux, susceptibles d'affecter à des échelles très diverses les autres compartiments de l'environnement, sols, eaux, espèces et écosystèmes. Ces émissions sont très largement liées aux transformations des pratiques agricoles issues de sa technicisation massive depuis la guerre. Elles peuvent se combiner avec d'autres sources, en particulier urbaines, pour produire des épisodes spécifiques comme ceux observés en France ces dernières années, cités précédemment. En même temps, les productions agricoles sont aussi elles-mêmes susceptibles d'être impactées par des émissions polluantes provenant d'autres sources, industrielles, urbaines ou résultant d'interactions entre elles des émissions émanant de ces sources, comme c'est le cas avec l'ozone. D'un autre côté, l'usage massif par l'agriculture d'une large gamme de produits phytosanitaires (herbicides, insecticides, fongicides) ou de biocides susceptibles d'être véhiculés par l'atmosphère au terme de divers mécanismes (transport, remise en suspension, volatilisation) peut affecter directement des populations non cibles (insectes pollinisateurs, faune aviaire, etc.), y compris humaines, avec des conséquences potentielles très graves pour la santé. Cette diffusion peut aussi participer à la contamination des chaînes alimentaires, renforcée par des phénomènes de bioaccumulation, de telle sorte que l'on retrouve les traces de ces composés à des niveaux préoccupants dans les organismes humains ou animaux.

Les enjeux contemporains en matière d'environnement

Les divers éléments que nous avons avancés permettent d'éclairer les enjeux contemporains tant en ce qui concerne la problématique environnementale telle qu'elle se pose à l'agriculture que plus spécifiquement la question de la qualité de l'air. Les évolutions des politiques européennes, puisque, depuis 1962, c'est à ce niveau que s'élaborent les orientations en matière agricole, apparaissent particulièrement éclairantes sur ce point (Scarwell, 2016). La PAC s'est mise en place à un moment où les politiques environnementales françaises et européennes étaient encore balbutiantes. Avec les garanties de revenu qu'elle apportait aux agriculteurs, elle s'est traduite en

quelques années par le développement d'excédents considérables, et la nécessité d'en reconditionner les orientations. Ce n'est qu'à partir du milieu des années 1980 que l'environnement est progressivement intégré comme un champ des politiques européennes avec l'Acte unique européen (1986) et le traité de Maastricht (1992)²⁸ et introduit comme une composante des politiques agricoles. Mais si les différentes initiatives et mesures développées et mises en place ont progressivement réussi à faire avancer la prise de conscience par les agriculteurs comme par les institutions et les parties prenantes des limites et des impacts négatifs du productivisme agricole, au prix également de multiples crises et scandales, ces tentatives de verdissement de la politique agricole sont loin d'avoir abouti aux avancées escomptées. La PAC laisse aux États des marges significatives de manœuvre. C'est dans ce contexte que la France a mis en place à la suite du Grenelle de l'environnement un plan Écophyto, qui s'est cependant révélé un échec en matière de réduction des usages, même s'il a permis des avancées dans la mise en place de cadres d'action, alors que se multipliaient les alertes concernant l'utilisation des produits phytosanitaires et leurs impacts, en particulier sur la santé des agriculteurs (Inserm, 2013 ; Marano et al., 2015 ; Anses, 2016) ou des populations.

La question de la pollution atmosphérique et de sa dynamique complexe, son intrication avec la problématique du changement climatique, la façon dont celui-ci a commencé à impacter l'activité agricole et est susceptible de le faire à l'avenir, sans compter l'impact de l'activité agricole sur le cycle du carbone, traduisent une réalité qui reste, pour les raisons que nous avons évoquées, encore mal reconnue par une large part des acteurs du monde agricole : l'agriculture ne peut constituer un isolat environnemental pas plus qu'un isolat social, un simple champ productif et technique sans articulation multiforme avec les champs environnementaux et sociaux dans lesquels elle est de fait imbriquée. L'environnement apparaît ici comme un élément majeur pour désenclaver, resocialiser, réintégrer dans la dynamique collective dans sa signification la plus large en l'écologisant, une agriculture trop massivement réduite à un champ de production et de commercialisation segmenté et dominé par la seule dimension économique, au détriment de la multiplicité des fonctions qu'elle recouvre, par-delà l'alimentation (Dufumier, 2012). Mais cela implique de profondes transformations, dont la moindre n'est pas celle de la remise en question de cette segmentation avec ses implications sur les plans techniques, économiques et sociaux, qui constituent un obstacle très important à une vision plus intégrée propre à l'environnement.

28. Des initiatives européennes en matière de qualité de l'air sont mises en place très tôt, en relation avec divers organismes internationaux, l'Organisation de coopération et de développement économique (OCDE), la Commission économique des Nations unies pour l'Europe, l'Organisation mondiale pour la santé (OMS), le Conseil de l'Europe. Une première directive concernant les émissions automobiles est publiée dès 1970, amorçant la constitution d'un dispositif législatif qui ne cessera de se développer par la suite en s'étendant à un nombre toujours plus large de polluants et de problématiques, industrielles, de transport, etc. En 1979 est signée la Convention sur la pollution atmosphérique transfrontière à longue distance (Convention de Genève) et, à partir de 1985, est mis en place un inventaire des émissions des États membres de la Communauté européenne (Corinair), incluant trois composés, réalisé tous les cinq ans, qui ne cessera de s'étoffer par la suite. Dès 1990, cet inventaire intègre l'ammoniac. L'Europe constituera pour les États membres un moteur dans le développement de politiques nationales, y compris le vote de la loi sur l'air française en 1996.

De ce point de vue, il semble qu'une évolution des attitudes et des comportements est à attendre d'une acculturation à ce que l'écologie permet de connaître concernant le fonctionnement du vivant et ses multiples déclinaisons, y compris agricoles (Barbault et Weber, 2010). Au sein du monde agricole comme aux marges de celui-ci, de multiples pistes tant théoriques que pratiques se développent, dont certaines ont introduit des reconfigurations significatives vers des types de fonctionnements profondément modifiés (Lamine, 2017). L'agriculture biologique en particulier, longtemps peu considérée, apparaît offrir de véritables perspectives économiques et constituer une voie prometteuse pour des producteurs agricoles fragilisés par les aléas et les vicissitudes du jeu des marchés (Dufumier, 2012)²⁹. Elle constitue également un socle de pratiques aujourd'hui largement éprouvées³⁰ sur lequel prennent appui de nombreuses initiatives nouvelles.

La question d'une mutation agricole est cependant d'autant plus complexe et délicate qu'elle ne peut être envisagée à la seule échelle française, mais demande à être replacée dans le cadre d'une dynamique européenne et mondiale, qui voit les modes de production et de consommation évoluer de façon très significative sur fond d'inégalités et de précarité auxquelles reste soumise une part très importante des populations humaines³¹ : on observe une hausse rapide du niveau de vie dans un certain nombre de pays qui sortent progressivement de la pauvreté et dans lesquels se développent des classes de consommateurs analogues à celles des pays avancés (Lange et Meier, 2009). Cette évolution a de profondes répercussions sur les modes de consommation (alimentation carnée) qui, à leur tour, ont un impact important sur la production agricole et ses conditions d'élaboration. La question des migrations en relation avec les aléas des productions agricoles liées aux évolutions climatiques constitue un puissant facteur d'instabilité. On peut également rappeler la crise alimentaire et les émeutes de la faim en 2007-2008, qui ont constitué un sévère avertissement quant aux vulnérabilités de la situation mondiale sur le plan alimentaire. C'est donc à l'échelle mondiale, et pas simplement française ou européenne, que la problématique agricole demande à être envisagée dans la perspective d'une transformation elle-même très importante des sociétés. Dans un tel contexte, la seule logique de régulation, telle que nous l'avons décrite rapidement précédemment, apparaît très insuffisante face au défi d'une évolution massive des modes de production et de distribution et la nécessité de répondre à la fois aux enjeux environnementaux, mais aussi économiques et sociaux. On peut évoquer de ce point de vue, parallèlement à la réflexion développée dans l'International Assessment of Agricultural Knowledge, Science and Technology for Development (IAASTD, 2009), les idées de Griffon en France (2006 ; 2010 ; 2013), depuis la promotion de la notion de révolution doublement verte (Conway et al., 1994 ; Conway, 1997) à celle

29. Bien que marginale à l'échelle mondiale (0,9 % de la production mondiale), celle-ci ne cesse de progresser, en France, au rythme de 4 % environ par an. La France comptait en 2015 environ 26 500 exploitations bio.

30. Une étude récente (Ponisio et al., 2015) a montré que, indépendamment de l'ensemble des fonctions qu'assure l'agriculture biologique sur le plan environnemental, l'écart de productivité entre agriculture conventionnelle et biologique était globalement moins important qu'on ne l'avait mis en évidence jusque-là (un peu inférieur à 20 %), et se réduisait encore très sensiblement (à 8-9 %) dans le cas de cultures diversifiées ou associées.

31. <https://www.un.org/sustainabledevelopment/fr/objectifs-de-developpement-durable/>.

d'agriculture écologiquement intensive, aujourd'hui largement reprise. On peut également citer l'exercice de prospective *Agrimonde. Scénarios et défis pour nourrir le monde en 2050*, ou plus récemment le projet TYFA (Ten Years for Agroecology in Europe ; Poux et Aubert, 2018) à l'échelle européenne.

► Conclusion

Cette réflexion volontairement très large à partir de la prise en considération de la qualité de l'air en relation avec l'agriculture trouve son sens dans ce qu'elle a permis de faire ressortir certaines des difficultés majeures de la mise en œuvre collective dans ce domaine et ce qui les fonde, la complexité de la problématique de la qualité de l'air, les avancées insuffisantes dont elle a pu faire l'objet dans un monde techno-économique en pleine expansion, le retard et les difficultés qu'elle soulève dans sa relation à l'agriculture, en mettant en relief l'enclavement socio-environnemental à laquelle celle-ci est soumise, les logiques étroitement finalisées qui en ont obéré l'appréhension dans les décennies récentes et les processus qui les sous-tendent. Elle fait ressortir les limites des tentatives de régulations normatives et la nécessité d'une dynamique de renouvellement en profondeur du champ. Loin de s'opposer, ces deux registres sont complémentaires. La question de l'ampleur de ces transformations et de la façon dont elles favoriseront des approches socialement inclusives ou au contraire discriminatoires apparaît cruciale. La question de la qualité de l'air, dans la façon même dont elle a souvent été posée, en particulier en France, de manière technique, en termes de règles et de normes, est particulièrement intéressante à situer dans la logique d'une telle réflexion, car elle fait bien apparaître, à travers ses développements successifs depuis une soixantaine d'années, les limites d'approches trop étroitement circonstanciées qui tendent à cerner les questions de façon trop restreinte, alors que les processus technologiques, sociaux et économiques qui en sont à l'origine non seulement connaissent des évolutions et des transformations importantes, mais ont aussi des extensions considérables, avec de profondes résonances subjectives. Ces approches régulatrices peuvent constituer un obstacle à prendre la mesure des réalités sous-jacentes, à en saisir le caractère instable et évolutif, mais aussi à les envisager dans l'extension de leurs implications multiples. On peut y préférer des logiques beaucoup plus larges dans l'effort pour concevoir de nouveaux systèmes collectifs intégrant d'emblée un ensemble beaucoup plus vaste de composantes dans lesquelles les aspects à la fois économiques, sociaux et environnementaux sont envisagés de façon congruente et coordonnée en même temps qu'ils sont potentialisés de l'apport de ressources technologiques ou sociales nouvelles. Il paraît important, de ce point de vue, de souligner le rôle déterminant de l'environnement comme outil d'intelligibilité et d'action dont aucun acteur n'a la propriété ou le monopole, incontournable en ce qu'il se situe au-delà de la causalité, dans l'enchaînement des processus, l'interaction et leur analyse sans cesse à renouveler.

Partie I

Composés, mécanismes, impacts

Chapitre 1

Les principaux polluants et leurs impacts sur l'agriculture, les écosystèmes et la santé

Jean-François Castell, Juliette Faburé,
Valérie Pernelet-Joly, Laurent Huber, Juliette Lathière

• Ce chapitre décrit les polluants atmosphériques en lien avec l'agriculture (culture
• et élevage), soit parce qu'ils sont émis par les activités agricoles, soit parce qu'ils
• ont un impact sur ces activités. Après une présentation de ces polluants par famille
• chimique, les impacts de la pollution atmosphérique sur les productions agricoles,
• principalement végétales, sont décrits sur les plans quantitatif et qualitatif. Puis
• les effets délétères des polluants émis dans l'air au cours des activités agricoles
• sont détaillés d'une part pour les écosystèmes terrestres et aquatiques, et d'autre
• part pour les populations humaines, générale et professionnelle, en considérant
• les conséquences directes et indirectes, à court, moyen ou long terme.

Les territoires urbains ne représentant qu'environ 10 % du territoire français métropolitain (données Agreste, 2015³²), les surfaces occupées par les paysages agricoles (51 %) et naturels (39 %) recouvrent de grandes zones d'émission de polluants atmosphériques, même si leurs émissions par unité de surface sont souvent modestes. De même, elles captent une partie significative des polluants présents dans l'air, le feuillage des végétaux constituant d'importantes surfaces d'échange entre la végétation et l'atmosphère, de l'ordre de plusieurs mètres carrés de feuillage par mètre carré de sol.

Il n'a évidemment pas été possible de faire une synthèse exhaustive sur ce sujet : au cours des trente dernières années, la base de données Web of Science a recensé plus de

32. <http://agreste.agriculture.gouv.fr/publications/chiffres-et-donnees/article/l-utilisation-du-territoire-en-10938>.

5 000 références de publications scientifiques traitant des liens entre l'agriculture et la qualité de l'air. La moitié de ces références ont été publiées au cours des cinq dernières années ; les aspects historiques ne seront pas traités dans ce chapitre. D'autre part, la grande diversité des molécules impliquées, de leurs sources, de leurs cibles et de leurs modes d'action ne permet pas de les présenter en détail³³.

Dans un premier temps sont présentés les polluants émis par l'agriculture : les composés azotés (ammoniac, oxydes d'azote et protoxyde d'azote), le méthane, les composés organiques volatils, les produits phytopharmaceutiques, les pollens allergènes, les virus et bactéries, et les particules en suspension. Ensuite sont présentés les polluants qui ne sont pas totalement d'origine agricole, mais dont la présence dans l'air génère des effets nocifs sur les activités agricoles, en particulier sur les productions végétales. Ce sont principalement l'ozone, les oxydes de soufre et les éléments métalliques. Dans un second temps sont décrites les conséquences préjudiciables de ces polluants pour l'agriculture (y compris sur le plan économique), les écosystèmes (figure 1.1), la santé humaine et le climat.

► Les principaux polluants concernés

Les polluants émis par l'agriculture

Les composés azotés

Les composés azotés représentent une part importante des polluants émis par l'agriculture. Ils font partie d'un cycle biogéochimique complexe dont les grandes lignes sont présentées dans l'encadré 1.1. Les mécanismes qui régissent ces émissions sont décrits dans le chapitre 2.

L'ammoniac

En France, 94 % des 606 kt d'ammoniac (NH_3) émises dans l'atmosphère en 2017 (données Citepa³⁴) provenaient de l'agriculture. Les émissions des sols agricoles représentaient 59 % de ces émissions (29 % liées à l'application des engrais minéraux, 21 % à l'application d'engrais organiques et 9 % à la pâture), et 41 % étaient liées à l'élevage (bâtiments d'élevage et stockage des déjections).

Dans l'atmosphère, l'ammoniac subit des transformations chimiques, et les molécules azotées qui en résultent (NH_4^+ , NH_3^- , NO, N_2O , molécules organiques) sont susceptibles par leur présence dans l'air ou par les dépôts atmosphériques de dégrader la qualité de l'air, de l'eau, des sols, d'affecter le bilan des GES et d'impacter les écosystèmes et la biodiversité. L'ammoniac joue un rôle important dans les processus d'acidification et d'eutrophisation, et contribue à la dégradation de la biodiversité végétale et à la formation des particules fines, dangereuses pour la santé humaine.

33. Des fiches synthétiques en fin d'ouvrage donnent les informations essentielles pour chacun des principaux polluants.

34. Centre interprofessionnel technique d'études de la pollution atmosphérique : <https://www.citepa.org/fr/> (inventaire Secten 2019).

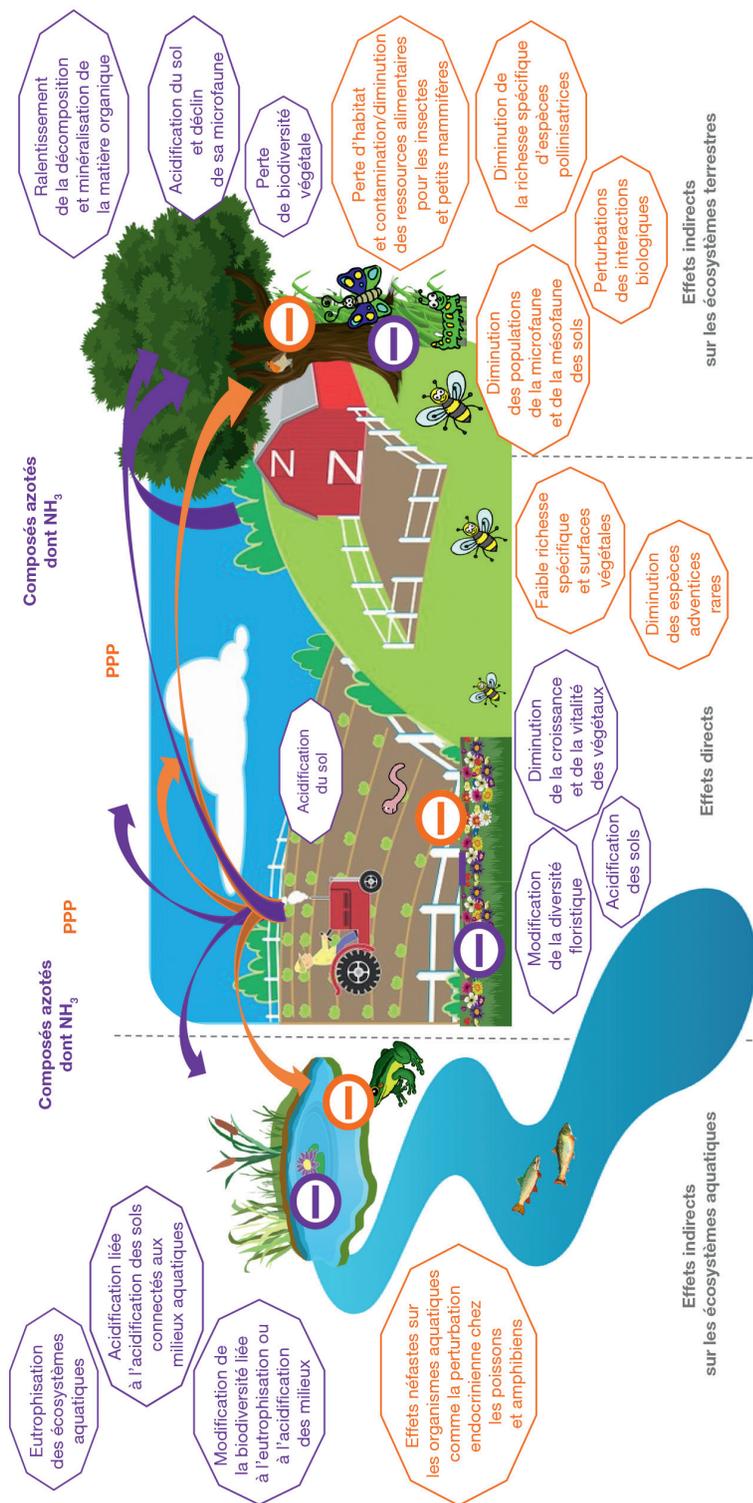


Figure 1.1. Impacts de l'ammoniac et des produits phytopharmaceutiques d'origine agricole sur les écosystèmes naturels.

Les oxydes d'azote

On les regroupe souvent sous le nom de NO_x (NO et NO_2). Ils sont émis par les sols et les moteurs des engins agricoles. Ils interviennent de façon importante dans la formation de l'ozone et des particules secondaires. Ils sont notamment à l'origine de la formation de l'acide nitrique (HNO_3) et de l'acide nitreux (HONO), qui sont des précurseurs de composés azotés réactifs et surtout du radical OH , élément clé de la formation de l'ozone et des PAN (péroxydes d'ester de nitrate, dont le principal composé est le nitrate de peroxyacétyl) dans l'atmosphère. L'ensemble de tous ces composés azotés oxydés réactifs (NO_x , HNO_3 , HONO ...) constitue les NO_y . L'acide nitreux peut également être émis directement dans l'atmosphère par les sols. L'agriculture représente un peu plus de 6 % des émissions totales de ces composés NO_y en France (806 kt en 2017), la plus grande partie étant émise par le transport routier.

Le protoxyde d'azote, ou oxyde nitreux (N_2O)

Le protoxyde d'azote (N_2O) est un GES dont le pouvoir de réchauffement global (PRG) est de 298 (c'est-à-dire que son pouvoir de réchauffement est 298 fois plus élevé que celui du CO_2 , qui sert de référence). Il est impliqué dans la chimie stratosphérique. Il est émis principalement par les sols agricoles *via* les processus de dénitrification et nitrification de l'azote déjà présent dans le sol ou apporté sous forme d'engrais minéraux et organiques. Sur les 140 kt émises en France en 2017, 79 % provenaient des sols agricoles, 6 % de l'élevage.

Encadré 1.1. Cycle biogéochimique de l'azote.

L'azote (N) est un des constituants majeurs des organismes vivants : c'est le quatrième en quantité après le carbone (C), l'hydrogène (H) et l'oxygène (O). Le cycle biogéochimique de l'azote est un cycle complexe enchaînant des réactions chimiques, physico-chimiques et surtout biochimiques et biologiques, et des équilibres physico-chimiques entre ses différentes formes. Ces dernières sont présentes dans les compartiments atmosphère, hydrosphère et biosphère, la biosphère incluant le sol et les organismes vivants végétaux et animaux, et sont concernées par des transferts entre ces différents compartiments. Le cycle biogéochimique de l'azote est présenté de manière détaillée dans le chapitre 2. Il illustre la nécessité d'intégrer l'ensemble de sa complexité pour appréhender dans leur globalité aussi bien que dans leur entité les entrées dans l'atmosphère des composés polluants azotés ainsi que leurs sorties ; il ne faut pas oublier non plus, même si elles ne sont pas illustrées ici, les interactions potentielles entre les différentes réactions, les transferts de pollution entre compartiments et entre types d'impacts, et les liens avec les autres cycles, en particulier ceux de l'eau et du carbone.

L'homme exerce une influence majeure sur ce cycle. L'agriculture est l'activité qui perturbe le plus les flux d'azote au sein de la biosphère continentale et de l'atmosphère, principalement du fait de l'accroissement des entrées d'azote dans le cycle par la fertilisation minérale. La mise au point du procédé Haber-Bosch au début du xx^{e} siècle a permis la production d'engrais azotés de synthèse et leur utilisation croissante en fertilisation azotée de cultures à partir des années 1950, à côté des effluents animaux. L'amplification de certains des maillons du cycle de l'azote

au regard des autres génère des déséquilibres et des impacts environnementaux, sanitaires et globaux.

Cet enchaînement des transformations de l'azote réactif dans l'environnement, des différents flux ainsi que des impacts occasionnés peut être représenté sous une forme séquentielle : c'est la cascade de l'azote (figure 1.2), dont la notion a été introduite par Galloway *et al.* (2003). Cette représentation rend mieux compte des aspects dynamiques que la forme plus figée du cycle biogéochimique de l'azote. Les pertes d'azote réactif s'observent à tous les niveaux du cycle, et en particulier à tous les stades de la gestion de l'azote au sein d'une exploitation agricole : dans les bâtiments d'élevage, lors de la transformation et du stockage des effluents d'élevage, pendant et après l'épandage des effluents d'élevage et des autres produits résiduels organiques recyclés en agriculture ainsi qu'après la fertilisation azotée avec des engrais industriels. Elle permet aussi de mieux visualiser les différentes voies de contributions de l'azote à la dégradation de la qualité de l'air, à la dégradation de la qualité des eaux ainsi qu'au réchauffement climatique, et d'anticiper les potentiels transferts de pollution entre compartiments et entre types d'impacts lors de la mise en œuvre d'un levier de réduction ciblant un des flux de manière spécifique et isolé.

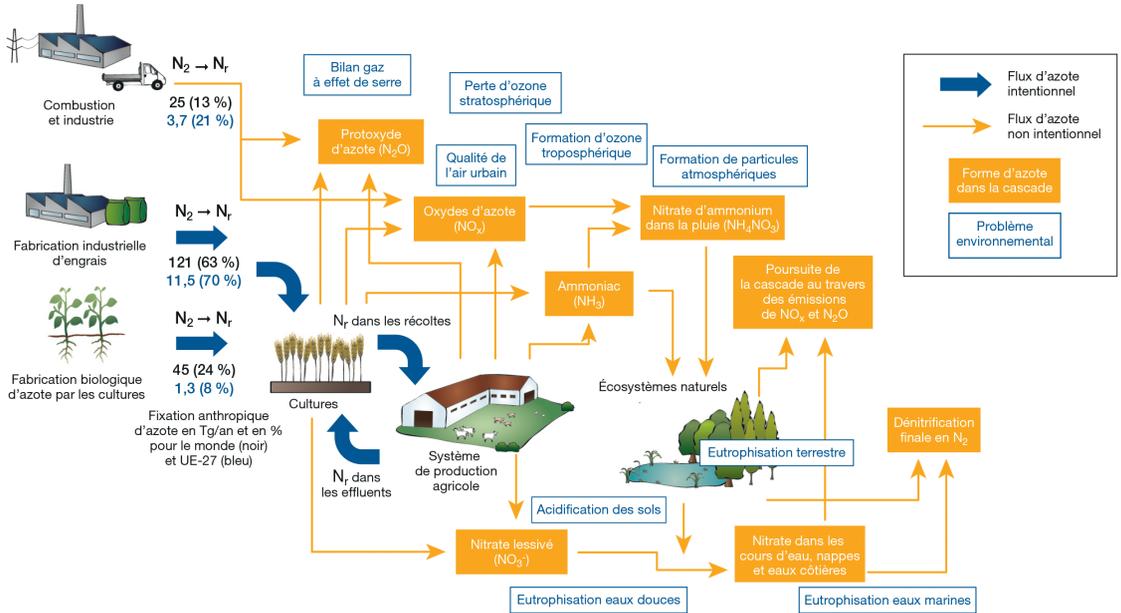


Figure 1.2. Cascade simplifiée de l'azote (Peyraud *et al.*, 2014, d'après Sutton *et al.*, 2011). Les estimations de N fixé sont en Tg/an, pour le monde (données 2005) et pour l'Europe (données 2000).

Le méthane

Le méthane (CH_4) est avant tout un GES, mais il joue également un rôle important dans la chimie de l'atmosphère, notamment pour la production d'ozone. Son PRG de 25 et les quantités émises le placent au deuxième rang d'importance parmi les GES réglementés par le Protocole de Kyoto, après le CO_2 . Les émissions pour la

France s'élevaient à 2 231 kt en 2017, dont 68 % proviennent de l'élevage (62 % dus à la fermentation entérique des animaux, 6 % à la gestion des déjections animales). Le reste est d'origine non agricole et vient principalement du traitement des déchets.

Les composés organiques volatils

Les composés organiques volatils (COV) sont des molécules organiques de natures très diverses (par exemple isoprénoïdes, terpènes, alcools, composés phénoliques, benzénoïdes). On distingue habituellement les COV d'origine biogénique (COVb), c'est-à-dire générés par les végétaux et certaines fermentations, et les COV d'origine anthropique, principalement d'origine industrielle. Dans leur grande majorité (73 % des émissions en France en 2017 d'après l'inventaire du Citepa), les émissions sont d'origine biogénique. Tous les écosystèmes terrestres, qu'ils soient naturels ou anthropisés comme les cultures, émettent des COVb, avec une intensité variable selon l'espèce végétale. L'isoprène est le principal composé émis par la végétation à la surface du globe, mais d'autres COVb comme les monoterpènes ou une multitude de composés organiques, oxygénés ou non, sont également émis. Ce sont des métabolites dits « secondaires », dont le rôle biologique, encore mal connu, semble intervenir dans la résistance des plantes aux épisodes de forte température (thermo-tolérance) ou au stress oxydatif, ainsi que dans la communication entre plantes ou entre plantes et insectes. La capacité d'émission est très variable d'un écosystème à un autre : les forêts tropicales sont de forts émetteurs d'isoprène, alors que les forêts boréales émettent principalement des monoterpènes. En revanche, les prairies et cultures ont des capacités d'émissions généralement beaucoup plus faibles que celles des arbres, et ne constituent majoritairement pas de forts émetteurs de COVb, même si elles peuvent en émettre de grandes quantités au moment de la récolte ou du fauchage, car l'endommagement des tissus végétaux conduit à la libération de grandes quantités de composés dans l'atmosphère. C'est également le cas de l'épandage des produits résiduels organiques (PRO). Des inventaires récents ont montré que la contribution des cultures aux émissions de COVb pourrait être plus importante qu'il n'est généralement admis, soulignant la nécessité de mener des études, de terrain notamment, plus approfondies et plus nombreuses (Gentner *et al.*, 2014).

En France, pour l'année 2017, la contribution de l'agriculture est estimée à environ 15 % des émissions totales, toutes sources naturelles et anthropiques confondues (Citepa, 2019a). Pour le secteur agricole, outre leur émission par les cultures, les COV peuvent être également émis par le brûlage des déchets agricoles, lors de l'utilisation de solvants organiques, notamment pour la préparation des pesticides, et par la dégradation des aliments du bétail (Grange *et al.*, 2007).

À l'échelle mondiale, les COV sont majoritairement émis par la biosphère continentale, qui contribue à plus de 80 % des émissions annuelles, soit près de 1 000 Tg C/an émis dans l'atmosphère. En comparaison, les émissions de COV par les activités humaines (transports, industries, secteur tertiaire et résidentiel, secteur agricole) sont estimées à environ 100 Tg C/an pour l'ensemble du globe. Ces émissions sont marquées par une forte variabilité spatiale, selon les sources en présence, et temporelle, en lien avec l'influence des conditions environnementales, comme la température et le rayonnement.

Les produits phytopharmaceutiques

L'ensemble des pesticides sont susceptibles d'être présents dans l'atmosphère, mais cet ouvrage se concentre sur les produits phytopharmaceutiques (PPP). Ces derniers couvrent les préparations destinées à protéger les végétaux et les produits de cultures (règlement CE n° 1107/2009)³⁵. Ce sont les fongicides, herbicides, insecticides, etc., utilisés en agriculture. Les pesticides hors PPP sont par exemple les antibiotiques ou antiparasitaires à usage vétérinaire ou médical. En France, plusieurs campagnes de détection et de mesure des concentrations dans l'air ont été menées depuis une vingtaine d'années par les Associations agréées de surveillance de la qualité de l'air (Aasqa). Elles ont montré une contamination de l'air par les PPP dans les zones rurales, mais aussi urbaines et périurbaines, quasiment toute l'année, avec toutefois des périodes pendant lesquelles le nombre de composés et les niveaux de concentrations sont plus élevés. Pour un composé donné, le niveau de concentration varie également en fonction de la distance aux parcelles traitées. Ce sont donc de très nombreuses molécules, dont la présence varie d'une région à l'autre, en fonction du type de production (par exemple grandes cultures, maraîchage, viticulture). Ces composés peuvent être présents dans l'atmosphère sous forme gazeuse, mais également dans les aérosols ou le brouillard et dans les eaux de pluie. Toutefois, ces études restent en nombre assez limité, et les différences entre les protocoles adoptés ne permettent pas de dresser un bilan précis de la situation et de son évolution (Anses, 2017). C'est pourquoi l'Anses, l'Institut national de l'environnement industriel et des risques (Ineris), en tant que membre du Laboratoire central de surveillance de la qualité de l'air (LCSQA), et le réseau des Aasqa fédéré par Atmo France ont lancé en 2018 une campagne de mesure des résidus de pesticides dans l'air. Cette première campagne nationale vise à améliorer les connaissances sur les pesticides présents dans l'air ambiant et ainsi mieux connaître l'exposition de la population sur tout le territoire. Cette campagne permettra à terme de définir une stratégie commune de surveillance des pesticides dans l'air avec des protocoles harmonisés.

Il est très difficile d'évaluer les quantités émises chaque année, car elles ne dépendent pas seulement des propriétés physico-chimiques des produits, mais aussi des pratiques culturales et des techniques de pulvérisation, ainsi que des conditions météorologiques et de la nature des surfaces sur lesquelles les produits sont appliqués.

Les bioaérosols

Il existe diverses contaminations biologiques d'importance agronomique et susceptibles d'altérer la composition particulaire de l'air à proximité ou à distance des sources. Par « contamination biologique », on entend la succession d'une émission aérienne de particules biotiques, leur transport atmosphérique passif et l'invasion ou l'infection de la plante-hôte. En lien avec l'agriculture, les principaux types de particules biotiques concernés sont les bactéries, les spores, les grains de pollen et les graines.

35. <https://eur-lex.europa.eu/legal-content/fr/ALL/?uri=CELEX%3A32009R1107>.

La dispersion aérienne des particules biotiques d'origine agricole ou non dans l'environnement est en relation étroite avec plusieurs problématiques agronomiques ou environnementales relatives à :

- la santé des plantes (par exemple : dispersion et survie des spores fongiques) ;
- la production de semences en lien avec la dissémination du pollen (par exemple pureté variétale du maïs et barrières d'isolement en zone de production de semences de différentes variétés) ;
- l'amélioration génétique des plantes cultivées ou la transgénèse (par exemple pollution pollinique interparcellaire en présence de maïs ou colza, transgéniques ou non) ;
- les impacts sur la santé humaine ou animale (par exemple réaction allergique au pollen de plantes cultivées, réaction infectieuse à un agent pathogène fongique ou bactérien présent dans le milieu naturel ou produit par transgénèse).

Cette dispersion éolienne des graines à moyenne ou grande distance est cruciale dans l'expansion des espèces en situation de changement climatique, la recolonisation d'aires perturbées et la prévention de la dissémination des bioagresseurs. Dans le domaine végétal, la dissémination anémophile de spores de maladies émergentes ou de grains de pollen (transgéniques ou non) peut dans certaines situations constituer une menace sur la biodiversité. Par souci d'exhaustivité, il doit être rappelé que certains bioaérosols (à base de bactéries ou de virus principalement) sont susceptibles d'être utilisés comme armes biologiques (par exemple maladie respiratoire du charbon causée par le bacille de l'anthrax), en dépit des interdictions de l'ONU. De manière plus générale, la production et l'utilisation de micro-organismes nocifs pour l'homme, les animaux ou les plantes sont illégales, ainsi que les recherches sur ces agents biologiques (traité de Carthagène sur la prévention des risques biotechnologiques, en cours de ratification ; convention Biological and Toxin Weapons, convention entrée en vigueur en 1975).

Les productions animales de bétail et de volaille sont également à l'origine d'émissions aériennes de particules biologiques, microbiennes et inorganiques qui sont dans certains cas susceptibles d'impacter la qualité de l'air et donc d'affecter la santé des animaux et des éleveurs dans les unités de production, de même que l'environnement atmosphérique des communautés rurales ou périurbaines à proximité (Millner, 2009). Les données d'émission résultant des épandages de litière de volailles, relativement sèche et donc très favorable à la remise en suspension de particules, montrent qu'il existe un potentiel de réduction des bioaérosols et autres composés émis en adaptant la technologie d'épandage. Par exemple, il a été montré que les concentrations et diversités bactériennes des bioaérosols prélevées sur le personnel dans des unités de production de poules élevées au sol sont significativement plus élevées par comparaison aux unités constituées de cages d'élevage (Just *et al.*, 2011).

Les particules en suspension

Les particules en suspension représentent ce que l'on appelle également la pollution particulaire. Il s'agit d'un mélange complexe de particules solides (poussières, suies, fumées) et de très fines gouttelettes liquides en suspension dans

l'air (US EPA³⁶). Leurs propriétés physiques (forme, dimensions, densité) et leurs compositions chimiques sont très diverses. Elles peuvent être émises directement dans l'atmosphère à partir de sources naturelles (volcanisme, érosion, feux de végétation) ou anthropiques (combustions, procédés industriels) ou bien se former secondairement dans l'air à partir de précurseurs gazeux (ammoniac, dioxyde de soufre, oxydes d'azote, COV). Elles peuvent conduire à des pics de pollution hivernaux de particules primaires par accumulations locales et transports de pollutions, et à des pics printaniers à grande échelle de particules secondaires, notamment en nitrate d'ammonium, en partie d'origine agricole. Elles représentent une forme importante de transport de composés peu volatils comme les métaux lourds dans l'atmosphère. Ces métaux peuvent ensuite se déposer à la surface des plantes, des sols ou des eaux et s'accumuler ensuite dans les chaînes alimentaires.

On appelle « particules totales en suspension » (TSP) l'ensemble des particules présentes dans l'air, quelle que soit leur taille. En France, en 2017, les émissions de TSP étaient de l'ordre de 849 kt (Citepa, 2019). L'agriculture représentait 54 % de ces émissions, principalement sous forme de particules de grande taille (49 % pour les sols agricoles, 3,6 % pour l'élevage, 0,6 % autres).

Compte tenu de leur importance, notamment pour la santé, on distingue également trois classes de particules en fonction de leur diamètre aérodynamique :

– les PM_{10} sont les particules de diamètre inférieur à $10\ \mu\text{m}$. En 2017, leurs émissions totales pour la France atteignaient 254 kt. La part due à l'agriculture était de l'ordre de 20 % : 10 % pour les cultures, 7,7 % pour l'élevage, 2,0 % pour les autres sources. Ces émissions agricoles sont un peu moins importantes que celles du secteur résidentiel (34 %) ;

– les $PM_{2,5}$ sont des particules fines de diamètre inférieur à $2,5\ \mu\text{m}$. En 2017, les émissions en France étaient de l'ordre de 164 kt. L'agriculture contribue environ à un peu moins de 9 % de ces émissions (2,8 % pour les cultures, 0,6 % pour l'élevage, 2,9 % pour le brûlage des résidus de récolte et 2,3 % pour la consommation énergétique, en particulier les tracteurs), mais c'est aujourd'hui le secteur résidentiel qui en est la source principale (50 %), principalement *via* le chauffage au bois ;

– enfin, l'agriculture émet très peu de particules très fines, de diamètre inférieur à $1\ \mu\text{m}$ ($PM_{1,0}$), avec 2,6 % des émissions en 2017. Le secteur résidentiel en est le principal émetteur (68 %).

L'agriculture contribue donc à la fois aux émissions directes de particules dans l'air (particules primaires), et à la formation de particules dites « secondaires » *via* les émissions d'ammoniac ou d'oxydes d'azote. Dans l'air, ce sont les PM_{10} et $PM_{2,5}$ qui sont actuellement réglementées. La littérature scientifique relative à leur impact sanitaire, qu'il s'agisse d'études épidémiologiques ou toxicologiques, est très vaste. Toutes ces études montrent d'ailleurs qu'en matière de santé, les effets des particules ne dépendent pas que de leur taille, mais aussi de leurs compositions chimiques, qui peuvent être très diverses.

36. <https://www.epa.gov/pm-pollution/particulate-matter-pm-basics>.

Les polluants d'origine non agricole impactant l'agriculture

L'ozone

L'ozone (O_3) est un gaz qui se forme dans les basses couches de l'atmosphère (troposphère) à partir de gaz précurseurs qui sont principalement les oxydes d'azote (NO_x), les composés organiques volatils (COV), dont le méthane, et le monoxyde de carbone (CO). Parmi les réactions qui conduisent à la production d'ozone, certaines sont provoquées par le rayonnement ultraviolet d'origine solaire. C'est pourquoi les épisodes de pollution par l'ozone ont souvent lieu au printemps et en été, par beau temps. Cette pollution s'étend le plus souvent sur de grandes surfaces régionales, où les émissions des précurseurs de l'ozone sont importantes. Dans les pays développés des zones tempérées ou méditerranéennes, ces émissions sont principalement dues au trafic automobile, alors que dans les zones intertropicales, elles sont principalement dues aux incendies de forêt ou de brousse (Wild *et al.*, 2012). Depuis l'époque préindustrielle, la concentration en ozone de la troposphère a augmenté de 60 à 100 % (Sitch *et al.*, 2007), et cette augmentation devrait se poursuivre au cours des trente prochaines années, notamment en Inde et alentour, où de fortes augmentations sont prévues. En revanche, l'est des États-Unis, une partie de la Chine et la région méditerranéenne devraient connaître une diminution (Chuwah *et al.*, 2013). En Europe, après avoir fortement augmenté au cours du xx^e siècle, les concentrations tendent à se stabiliser depuis le début des années 2000, probablement grâce aux mesures environnementales de réduction des émissions des précurseurs d'ozone (Oltmans *et al.*, 2013). Dans les zones rurales d'Île-de-France, par exemple, les concentrations d'ozone se sont stabilisées depuis une dizaine d'années autour d'une valeur moyenne annuelle de l'ordre de 25,5 ppbv³⁷. En été, au cours d'une période de pollution par l'ozone, les « pics » de concentration horaire atteints en milieu de journée sont de l'ordre de la centaine de ppbv.

L'ozone exerce plusieurs types d'impacts sur l'environnement : c'est un GES, le troisième contributeur par son forçage radiatif à l'effet de serre additionnel après le dioxyde de carbone (CO_2) et le méthane (CH_4), et avant le protoxyde d'azote (N_2O). C'est également une source importante de radicaux hydroxyles, qui contribuent au pouvoir oxydant de l'atmosphère. Enfin, c'est un oxydant puissant qui a des impacts négatifs sur la santé des hommes, des plantes et des animaux.

Le dioxyde de soufre

Le dioxyde de soufre (SO_2) est émis par des sources naturelles (volcans, combustion de biomasse) et anthropiques, dont les principales sont la combustion de combustibles fossiles, la sidérurgie, et le traitement des huiles et gaz naturels. Au niveau mondial, les émissions annuelles étaient de l'ordre de 194 millions de tonnes en 1990 (Legge et Krupa, 2002), dont 83 % provenaient de la combustion de combustibles fossiles. Des progrès considérables ont été accomplis pour réduire ces émissions en Europe, aux États-Unis et au Japon, mais le SO_2 reste un polluant préoccupant dans d'autres régions du monde, comme l'Asie. En France, les émissions ont été réduites

37. ppbv : partie par milliard en volume ; 1 ppbv équivaut à un milliardième de litre de gaz par litre d'air.

de 77 % entre 2000 et 2017 (Citepa, 2019) et les concentrations sont en moyenne inférieures à 4 ppbv, y compris à proximité des sites industriels. Les émissions sont principalement d'origine industrielle (50 %), alors que l'agriculture représente moins de 1 % des émissions.

Dans le monde, les pics de concentration en SO₂ sont inférieurs à 1 ppbv (2,6 µg/m³) en zone peu polluée. Ils sont compris entre 1 et 30 ppbv dans les zones rurales, entre 200 et 2 000 ppbv en zones modérément polluées. Ils peuvent dépasser 5 000 ppbv dans les régions lourdement touchées par cette pollution (Legge et Kruppa, 2002).

Le SO₂ a des effets sur la santé humaine, principalement par ses impacts sur les voies respiratoires. Ses effets sur les végétaux se traduisent principalement par la diminution de la photosynthèse et par la perturbation de l'équilibre ionique des cellules végétales, entraînant la réduction de la croissance. Le SO₂ peut se transformer dans l'atmosphère en acide sulfurique et se déposer sur le sol et les végétaux, contribuant ainsi à l'acidification des milieux naturels. Il peut également participer à la formation d'aérosols en réagissant avec l'ammoniac.

Les métaux

Certains des métaux émis dans l'atmosphère par les activités humaines présentent un caractère toxique pour l'agriculture, l'environnement et la santé humaine. Ce sont principalement le zinc, le chrome, l'arsenic, le cadmium, le cuivre, le mercure, le nickel, le plomb et le sélénium. On les trouve le plus souvent dans les poussières émises par la circulation automobile, les foyers de combustion, les activités industrielles (notamment la fabrication et le traitement des métaux) et l'incinération des déchets. Ils sont présents le plus souvent dans les particules fines, sauf le mercure, qui est principalement gazeux.

Ces métaux lourds peuvent être toxiques pour la biosphère. La plupart étant sous forme particulaire, ils s'accumulent dans l'eau, les sols, les aliments et l'air.

Le plomb a longtemps été le métal le plus préoccupant pour l'environnement, mais depuis l'interdiction de l'essence plombée (1^{er} janvier 2000), les émissions annuelles en France ont chuté de plus de 97 %, passant de 4 293 tonnes en 1990 à 113 tonnes en 2017 (Citepa, 2019).

» Les principaux impacts sur l'agriculture

Productions végétales

Effets directs sur les rendements des cultures et conséquences économiques

De nombreux polluants sont susceptibles d'affecter directement la croissance des plantes. Ce sont notamment les oxydes d'azote, qui peuvent diffuser à l'intérieur des feuilles *via* les stomates. On les retrouve alors dans les cellules sous la forme

de nitrites (NO_2^-) et nitrates (NO_3^-). Ceci engendre une augmentation de l'acidité dans les cellules et perturbe le contrôle du pH. D'autre part, ces molécules (notamment les nitrites) perturbent le métabolisme azoté des plantes et affectent leur croissance. Les particules fines en suspension dans l'air peuvent également freiner la croissance végétale par simple dépôt sur les feuilles en limitant les processus de photosynthèse. La fine couche formée sur les feuilles par les dépôts de poussières peut aussi empêcher les traitements phytosanitaires d'agir. De plus, les particules sont capables de véhiculer à leur surface des composés toxiques qui peuvent avoir une influence directe sur le métabolisme de la plante. À un niveau plus local, des polluants tels que les fluorures, issus de la combustion de charbon, ou l'ammoniac, lié principalement à l'épandage d'engrais, peuvent provoquer d'importants dégâts sur les plantes.

Cependant, les deux principaux polluants qui ont un effet direct sur les cultures sont l'ozone et le dioxyde de soufre. Les effets du SO_2 en France et en Europe de l'Ouest sont aujourd'hui peu importants, compte tenu de la forte diminution des concentrations, mais ils restent préoccupants dans les pays en développement et les régions où la combustion du charbon reste importante (Emberson *et al.*, 2001).

Les nombreux travaux qui ont été menés depuis une trentaine d'années révèlent que l'ozone est le principal polluant atmosphérique qui affecte la production agricole et forestière en Amérique du Nord et en Europe de l'Ouest (Ashmore, 2005). On estime que les rendements des espèces sensibles à l'ozone, comme le blé ou la tomate, sont réduits d'environ 10 à 15 % dans les régions du globe les plus polluées. Les conséquences économiques sont considérables : par exemple, chaque année, la pollution par l'ozone entraîne pour l'agriculture française un manque à gagner que l'on estime à plus de 1 milliard d'euros (Castell et Le Thiec, 2016). En Chine et en Inde, c'est la sécurité alimentaire qui est menacée : si la pollution de l'air par l'ozone continuait à augmenter, la production agricole locale pourrait ne plus pouvoir subvenir aux besoins des populations (Ahmed, 2015). En ce qui concerne les écosystèmes naturels, l'ozone peut perturber fortement les rôles de puits de carbone et de maintien de la biodiversité joués notamment par les forêts et les prairies naturelles (Mills *et al.*, 2013).

Effets sur la qualité des produits agricoles

Teneur en métaux

Les végétaux peuvent accumuler des quantités de métaux non négligeables. On a montré que cette accumulation dans les parties comestibles des plantes est assez bien corrélée à la distance entre les parcelles cultivées et les voies de circulation, ainsi qu'à l'intensité du trafic. Les études indiquent néanmoins que les dépôts atmosphériques induisent des teneurs en métaux qui ne présentent pas un risque important pour les consommateurs si les fruits ou les légumes sont correctement lavés (von Hoffen et Säumel, 2014). Localement, il peut cependant y avoir un risque dans des zones particulièrement polluées (jardins urbains ou périurbains en bordure de voies à fort trafic), ou dans le cas où ces dépôts s'ajoutent à l'absorption par voie racinaire quand les sols sont contaminés en métaux.

Impacts directs des polluants sur la qualité des produits agricoles

Il existe assez peu d'études montrant des impacts directs des polluants sur la qualité des produits. Cependant, on a pu montrer que la teneur en protéines des grains de blé pouvait être affectée par l'ozone (Li *et al.*, 2016), et un travail récent (Broberg *et al.*, 2017) indique que l'ozone réduit l'efficacité d'utilisation des engrais par le blé. Il montre également que la qualité des grains, notamment leur teneur en azote, peut être affectée par de fortes teneurs en ozone. Ce point reste encore à étudier, car d'autres études (Zheng *et al.*, 2013) observent plutôt un accroissement de la teneur en azote des grains de blé et de riz exposés à l'ozone. Chez la pomme de terre, on a également pu montrer que de fortes concentrations en ozone atmosphérique pouvaient affecter la teneur en amidon (Vorne *et al.*, 2002).

En région méditerranéenne, il arrive souvent qu'après un pic de concentration en ozone, l'aspect visuel des légumes-feuilles comme les salades soit affecté par l'apparition de nécroses à la surface des feuilles, les rendant impropres à la commercialisation (voir par exemple Fumagalli *et al.*, 2001).

Productions animales

Très peu d'études se sont intéressées aux impacts directs de la pollution de l'air sur les animaux élevés à l'air libre. Ces impacts sont en général considérés comme nuls ou très faibles (Rather *et al.*, 2014). Il est pourtant prouvé que les polluants atmosphériques (principalement les particules fines) provoquent des troubles respiratoires chez les animaux de laboratoire (Gilmour *et al.*, 2001), et que les voies respiratoires des chevaux sont particulièrement sensibles aux poussières et aux allergènes (McPherson *et al.*, 1979).

En revanche, quelques travaux montrent que des polluants comme l'ozone peuvent affecter la production animale de façon indirecte en modifiant la valeur nutritive des fourrages (Hayes *et al.*, 2016).

» Les impacts sur les écosystèmes et la biodiversité

Effets sur la végétation et la diversité floristique

Parmi les composés émis dans l'atmosphère du fait des activités agricoles, les composés azotés sont sans nul doute ceux qui ont le plus visiblement impacté la végétation sauvage. Qu'il soit émis lors de l'épandage de fertilisants au champ ou par les bâtiments d'élevage, l'ammoniac a des effets sur la végétation, bien qu'à proximité des bâtiments d'élevage on trouve principalement des cultures agricoles souvent peu sensibles à ce polluant.

Plusieurs études menées dans les années 1990 ont caractérisé les effets délétères de l'ammoniac sur des milieux naturels tels que les prairies naturelles,

les tourbières, les landes ou les milieux forestiers (Corpen, 2001). Ces effets concernent à la fois les plantes et le sol sur lequel la végétation se développe. La sensibilité des végétaux à l'azote ammoniacal est très variable suivant les espèces, et suivant leur patrimoine génétique (Krupa, 2003). De fait, dans un milieu fortement empreint de NH_3 ou NH_4^+ , cela se traduit par une modification de la diversité floristique en faveur des espèces nitrophiles, et au détriment des plus sensibles. L'ammonium est utilisé par les végétaux comme élément nutritif mais, à de fortes concentrations, il peut leur être toxique et entraîner une baisse de la croissance, une réduction de la vitalité (Mohr et Dämmgen, 2013), une diminution de la production primaire mycorhizienne, ou encore un enrichissement des tissus végétaux en azote. Les dépôts atmosphériques d'ammoniac génèrent également différents effets directs sur la végétation, comme le résumait Krupa (2003) et Fangmeier *et al.* (1994) : augmentation du taux de photosynthèse, de l'évapotranspiration, érosion de la couche cireuse épicuticulaire, lésions foliaires, diminution de la floraison, de la teneur en eau ou encore du taux de survie des plantes. Indirectement, l'exposition des arbres à l'ammoniac serait aussi à l'origine d'une diminution de leur résistance au gel, à la sécheresse, et d'une augmentation de leur sensibilité aux ravageurs (Krupa, 2003). Au niveau des sols, si l'ammoniac favorise une augmentation du pH des dépôts atmosphériques dans les zones fortement émettrices, la nitrification de l'azote ammoniacal contribue à l'acidification des sols (chapitre 2). Par ailleurs, les dépôts d'ammoniac et d'ammonium peuvent pénétrer dans les feuilles *via* les stomates et génèrent alors une excrétion de calcium, de magnésium et de potassium qui, d'une part, engendre des carences et, d'autre part, après lessivage, participe aussi à l'acidification du sol. Enfin, dans les écosystèmes pauvres en nutriments, comme les milieux forestiers ou les landes, les dépôts azotés peuvent accroître la productivité et ainsi modifier l'équilibre nutritionnel lorsque la demande pour les autres nutriments n'est pas suffisamment pourvue par le milieu (Skeffington et Wilson, 1988).

Outre l'ammoniac, des études ont montré que l'épandage de PPP sur les cultures était susceptible d'impacter la végétation sauvage avoisinante du fait de la dérive des gouttelettes de pulvérisation au cours de l'application et du fait de la volatilisation des produits appliqués sur les cultures, puis de leur dépôt à proximité. Une étude a montré que jusqu'à 50 % du taux d'herbicide appliqué sur des parcelles de prairie peut se retrouver sur la végétation avoisinante à moins de 75 cm en lien direct avec l'épandage, puis 15 % au-delà, et encore près de 3 % à 1 m de la parcelle du fait de la dérive lors de l'épandage. Cette dérive a entraîné une diminution de 85 % de l'intensité de floraison chez une espèce ubiquiste des paysages agricoles, *Ranunculus acris* (Schmitz *et al.*, 2013). Les herbicides, par nature, sont susceptibles d'avoir des effets toxiques sur la flore naturelle poussant en bordure de parcelles, dans les prairies et dans les haies (Preston *et al.*, 2003). En effet, le mécanisme d'action de ces substances actives cible notamment le photosystème. Ainsi, en bordure de parcelles, bien que le nombre d'espèces végétales soit plus important qu'en zones cultivées, la richesse spécifique et la surface végétale sont faibles (environ 11 espèces, et 21 % de couverture) en comparaison avec celles observées dans des zones en jachère (CEH, 2009).

Effets indirects sur la biodiversité dans les écosystèmes terrestres

Il n'est pas toujours facile de mettre en évidence les effets indirects liés aux contaminants atmosphériques d'origine agricole. Ils représentent pourtant la plus grande part des effets de ces contaminants sur les écosystèmes, sur les organismes qui y vivent, et les fonctions écologiques qu'ils assurent.

Les contaminants chimiques émis dans l'atmosphère au cours des activités agricoles impactent la végétation sauvage, mais indirectement ce sont aussi d'autres espèces des écosystèmes terrestres qui sont impactées du fait, d'une part, des dépôts de contaminants atmosphériques sur les sols qui peuvent altérer la santé des populations qui y vivent et, d'autre part, de la modification de leur habitat ou de la contamination de leurs ressources alimentaires.

Les substances mises en cause dans ces effets indirects sont principalement les fertilisants et les PPP. Outre leurs effets toxiques directs observés dans de nombreuses études menées sur des espèces modèles en écotoxicologie (Charbonnier *et al.*, 2015), les PPP peuvent affecter la faune sauvage indirectement *via* leurs effets sur les ressources alimentaires et les habitats, ou du fait d'une exposition directe lors de l'épandage de produits ou au contact des sols contaminés. Les paragraphes suivants présentent comment la faune sauvage empoisonnée par des insecticides, fongicides, herbicides peut voir sa population décliner fortement.

Effets indirects induits par la modification de l'habitat : conséquences indirectes des effets toxiques sur la végétation sauvage

Les modifications écologiques liées aux dépôts d'azote sont plus facilement observables dans les systèmes pauvres en azote, car les espèces adaptées à la carence en azote ne peuvent pas faire face à la compétition avec les espèces à forte demande en azote. Ainsi, les fertilisants azotés réduisent la diversité floristique dans les prairies (Mountford *et al.*, 1993) et au niveau des bordures de champ (Theaker, 1995) en favorisant le développement rapide des espèces dominantes. Les modifications de la végétation peuvent impacter les autres espèces pour qui les plantes constituent le principal habitat ou une ressource alimentaire. De même, en altérant la structure de la végétation, les herbicides peuvent rendre les habitats inappropriés pour certaines espèces. Sont notamment menacés les insectes, les oiseaux des zones agricoles et les mammifères. Ainsi, les terres agricoles constituent un habitat sauvage pauvre pour les papillons (Longley et Sotherton, 1997), et l'effet d'herbicides sur les bordures de champ engendre une perte d'habitat (Marshall et Smith, 1987), mais également de nourriture pour les chenilles comme pour les adultes de papillons.

Effets indirects liés à la contamination des ressources alimentaires

Ce sont principalement les épandages d'insecticides et d'herbicides à large spectre qui sont impliqués dans la diminution des sources de nourriture pouvant conduire

au déclin de populations. En particulier, les insectes, les oiseaux et les mammifères subissent les effets indirects de la contamination de leurs ressources alimentaires.

Les insectes sont impactés d'une part du fait de la perte de la diversité floristique, dont certaines espèces végétales qui constituent le mets préféré de certaines chenilles de papillons notamment, et d'autre part du fait de la présence de PPP sur ou dans les feuilles, dans l'eau de guttation ou encore le nectar des fleurs. Pecenka et Lundgren (2015) ont montré expérimentalement que des chenilles de Monarque (*Danaus plexippus*) consommant des feuilles de laiteron contaminées au clothianidine, dans des concentrations équivalentes à celle mesurée dans des laitérons poussant en bordure de champ de maïs traité, avaient une taille significativement plus petite que la taille de référence. Cet effet subléthal d'un PPP sur le développement de chenilles de papillons est cohérent avec les observations faites notamment en Angleterre, entre 2000 et 2009, révélant une diminution de 58 % des populations de papillons à proximité des exploitations agricoles (Brereton *et al.*, 2011). Plus particulièrement, Feber *et al.* (2007) décrivaient une richesse spécifique moindre de papillons et une abondance plus faible pour cinq des espèces observées dans les exploitations agricoles conventionnelles (ayant recours aux PPP et fertilisants synthétiques) par rapport à des exploitations biologiques. Ainsi, on observe une raréfaction ou une disparition de nombreuses espèces pollinisatrices en milieu rural. Outre les papillons, ce sont aussi les abeilles qui sont fortement impactées par l'usage des insecticides, notamment les néonicotinoïdes (encadré 1.2). Avec la diminution des espèces pollinisatrices, d'autres modifications écologiques peuvent apparaître, notamment un déclin des plantes pollinisées par les insectes au profit des espèces autopolinisées (Biesmeijer, 2006).

Pour les populations d'oiseaux, l'exposition aux résidus de PPP est variable suivant le régime alimentaire des espèces : certaines ingèrent des feuilles, d'autres sont granivores (perdrix, caille) ou insectivores, et enfin, en haut de la chaîne alimentaire, certaines espèces prédatrices (aigle) se nourrissent d'autres oiseaux ou de mammifères, eux-mêmes empoisonnés lors de l'ingestion de plantes, d'insectes ou d'invertébrés du sol. Les quantités de résidus ainsi ingérées peuvent être suffisantes pour entraîner un impact léthal mais, à des teneurs moindres, des effets sublétaux surviennent comme la perte de poids, la diminution des capacités de résistance à certains stress environnementaux, la diminution du chant (entraînant une diminution de la reproduction ou de la défense du territoire), ou encore la perte de capacité à fuir ou à affronter un prédateur. À terme, ces effets sublétaux peuvent impacter les populations. Une étude illustre clairement ce phénomène d'intoxication d'oiseaux engendrant le déclin d'une population. Elle a été réalisée en Grande-Bretagne et concernait la perdrix grise (*Perdix perdix*) en région agricole. Rands (1985) a montré que l'usage d'herbicides et de fongicides, au même titre que les insecticides, impacte les populations d'insectes servant de nourriture aux oisillons de perdrix vivant en bordure de champs de céréales. Dans le même temps, il observait que les couvées de perdreaux étaient de 3 oisillons dans les zones traitées aux PPP, alors qu'elles sont de 5 oisillons dans les zones non traitées. Il s'est avéré que, du fait de la diminution des populations d'insectes, les oisillons n'avaient plus de nourriture à disposition à proximité des nids, et étaient contraints de se déplacer plus loin pour trouver de la nourriture. Cet effort supplémentaire a contribué à leur affaiblissement, les rendant plus vulnérables aux prédateurs. Cela s'est traduit à l'échelle de la population par une chute du nombre de couples, passant de 40/km² au début des années 1950, à 8/km² dans les années 1980, tandis que, dans le même temps, l'usage des PPP était croissant.

Encadré 1.2. Abeilles et agriculture.

Parmi les services rendus par les écosystèmes, il en est un particulièrement sensible aux pratiques agricoles : la pollinisation des fleurs par les abeilles. Depuis plusieurs décennies, le déclin des populations d'abeilles est observé à l'échelle de la planète, et les causes multiples de ce déclin se trouvent principalement dans les productions agricoles intensives, qui ont recours d'une part aux insecticides pour lutter contre les insectes ravageurs de cultures, et d'autre part aux herbicides pour éliminer les adventices.

Un déclin aux causes multiples

La pulvérisation d'insecticides, et notamment des néonicotinoïdes, peut intoxiquer directement les abeilles exposées aux traînées de vapeur au moment de la pulvérisation, mais également par contact avec les résidus de produits présents sur les végétaux, et par ingestion de nectar, de pollen ou d'eau de guttation contaminés du fait des traitements et de l'usage de ces substances dans l'enrobage des semences. Les effets létaux arrivent lorsque les abeilles assimilent des quantités élevées de produits phytosanitaires. Cependant, les effets sublétaux, entraînés par des expositions répétées à de faibles doses de pesticides, sont tout aussi dommageables. En effet, à long terme, ces intoxications chroniques peuvent conduire à la désorientation des abeilles, la décoordination du battement des ailes, une perte de capacité à maintenir la température corporelle constante, la réduction de l'activité de butinage, des erreurs de communication sur la distance et la direction d'une source d'alimentation, la baisse de fécondité de la reine (Sandrock *et al.*, 2014), des anomalies de développement des larves, ou encore une perturbation de l'odorat, du toucher et de la sensibilité aux phéromones du fait d'une hyperactivité neuronale. Tous ces effets peuvent affecter la viabilité d'une abeille et/ou d'une colonie.

Pour ces raisons, à partir de 2018, l'usage des néonicotinoïdes est interdit en France par la loi Biodiversité. Toutefois, le bénéfice pour les abeilles sera probablement difficile à percevoir du fait de la rémanence de ces molécules dans l'environnement.

De plus, d'autres facteurs interviennent dans la diminution des populations d'abeilles, comme l'usage intensif d'herbicides sur les adventices et la disparition des haies et des prairies qui, indirectement, entraînent une perte de ressources alimentaires pour les abeilles, mais également la virulence de pathogènes (comme *Varroa destructor*) introduits accidentellement. Ainsi, même si la présence des pesticides dans l'air ne constitue pas une cause directe du déclin des abeilles, les processus indirects mis en jeu et les pratiques agricoles actuelles sont clairement impliqués.

L'agriculture : de la cause aux conséquences

Alors que l'usage des produits phytosanitaires en agriculture est l'une des principales causes du déclin des abeilles, les productions agricoles sont également victimes de ce déclin (Bartomeus *et al.*, 2014). En effet, on estime qu'environ un tiers de l'alimentation mondiale dépend de cette pollinisation (courgettes, fraises, etc.), et la valeur économique de la pollinisation s'élèverait à 153 milliards d'euros par an dans le monde. Cela constitue donc un enjeu majeur de la sécurité alimentaire.

Effets indirects liés au transfert de contaminants de l'atmosphère vers les sols

La saturation en azote et l'acidification du sol sont des symptômes de la modification des équilibres influencée par les dépôts atmosphériques et indirectement par les effets sur la végétation et la microflore et microfaune du sol (Krupa, 2003). En effet, les populations de la microfaune et de la microflore du sol déclinent généralement du fait de l'acidification du milieu, et s'ensuit alors un ralentissement de la décomposition et de la minéralisation de la matière organique (Van Straalen *et al.*, 1988, *in* Krupa, 2003). Ces deux fonctions écologiques assurées par les organismes du sol sont également affectées par les dépôts d'azote du fait de leur impact sur la production de biomasse et la composition chimique de la végétation (Berendse, 1990, *in* Krupa, 2003).

Par ailleurs, les champignons sont en régression dans les zones d'agriculture intensive, notamment du fait des fongicides présents dans l'air et lessivés par les pluies. En particulier, des études ont montré les effets néfastes de certains fongicides sur le développement de champignons mycorhiziens d'intérêt en agriculture, et leurs conséquences sur le développement des plantes colonisées (Channabasava *et al.*, 2015). Il en va de même pour la microfaune et la mésofaune du sol, et cela a été montré à plusieurs reprises avec des études qui ont décrit l'effet écotoxique de pesticides (notamment les fongicides et les insecticides) sur les populations de vers de terre (Pelosi *et al.*, 2014a) ou de collemboles (Campiche *et al.*, 2006). Néanmoins, cette toxicité est à pondérer au regard des effets néfastes largement dominants qu'occasionnent les opérations agricoles (c'est-à-dire le labour) sur la diversité des espèces de la mésofaune du sol (Pelosi *et al.*, 2014b). Notons également que la majeure partie des études portant sur les effets des PPP sur les organismes du sol concernent les sols d'agrosystèmes, et qu'il existe peu d'informations quant aux conséquences pour la faune des sols d'écosystèmes naturels.

Des effets des PPP sont aussi à craindre pour la macrofaune terrestre, non seulement parce que certaines espèces se nourrissent des organismes du sol (comme les oiseaux consommateurs de vers de terre), mais aussi parce que certaines espèces peuvent être exposées directement à ces substances lors des opérations d'épandage. Ainsi, les amphibiens terrestres sont susceptibles d'être exposés de façon non négligeable à des PPP. En effet, il a été constaté que les périodes de migration de la plupart des espèces à travers les terres arables coïncident avec les périodes d'application du glyphosate (notamment en traitement avant ensemencement au printemps), même s'il existe des variantes suivant les cultures traitées et les espèces d'amphibiens étudiées (Berger *et al.*, 2013). Auparavant, Relyea (2005) avait étudié en microcosme l'effet écotoxique en milieu terrestre d'une formulation commerciale à base de glyphosate sur plusieurs espèces d'amphibiens terrestres. Ainsi, après application du produit directement sur des juvéniles de trois espèces d'amphibiens, à une concentration conforme aux recommandations commerciales d'utilisation, plus de 75 % de mortalité étaient constatés chez les juvéniles de chacune des trois espèces. Bien que les conditions d'exposition aient été majorées dans cette expérimentation puisque la barrière végétale n'était pas considérée dans l'exposition à la pulvérisation, les effets toxiques observés étaient sans équivoque, alors même que les animaux ne sont pas identifiés comme des espèces sensibles aux herbicides comme le glyphosate, le mécanisme d'action de ces derniers ciblant généralement le photosystème des végétaux.

Effets sur les interactions entre espèces

En agronomie, plusieurs cas de rupture d'équilibres biologiques ont été décrits du fait de l'utilisation de PPP, en particulier d'insecticides. Un des exemples les plus connus a été observé en Californie, dans des cultures d'agrumes. Dans les années 1960, le dichlorodiphényltrichloroéthane (DDT) a été utilisé pour traiter les vergers de *Citrus* contre ses ravageurs. Ce traitement a entraîné la disparition quasi complète des parasites (hyménoptères entomophages comme les Chalcidiens) de la cochenille de l'oranger (*Aonidiella aurantii*) et de ses prédateurs, les Coccinelidés, favorisant ainsi la pullulation de la cochenille dans les vergers traités (DeBach et Huffaker, 1971). L'arrêt du traitement insecticide permit de reconstituer les populations d'insectes prédateurs de cochenilles et ainsi de stopper le développement de la population de ce ravageur. Un phénomène identique a été observé en forêt du fait de la contamination de la litière par un traitement insecticide. Ce traitement a entraîné l'intoxication des populations d'acariens prédateurs de collemboles dont les populations ont pullulé (Pimentel et Edwards, 1982).

Enfin, des effets sur d'autres relations entre espèces pourraient exister, comme la dégradation des fragrances de fleurs par interactions avec les polluants atmosphériques et ses conséquences délétères sur la localisation de ces fleurs par les espèces pollinisatrices (Potera, 2008 ; Lusebrink *et al.*, 2015). Toutefois, ces effets indirects sont très peu étudiés, et aucune recherche n'a établi de lien direct avec des contaminants d'origine agricole.

Effets indirects sur la biodiversité dans les écosystèmes aquatiques

Effets indirects liés au transfert de contaminants

Les polluants d'origine agricole émis dans l'atmosphère ne sont pas sans conséquence pour les écosystèmes aquatiques. Ils peuvent conduire à des phénomènes d'eutrophisation ou d'acidification. Plusieurs études menées aux Pays-Bas ont montré l'eutrophisation de lacs superficiels liée aux dépôts d'azote (Bobbink *et al.*, 1998). En effet, les émissions d'azote d'origine anthropique perturbent le cycle de ce dernier au sein des écosystèmes du fait des dépôts directs depuis l'atmosphère. Ainsi, Burkart et James (1999) décrivent l'eutrophisation d'eaux côtières marines induite par ce phénomène, à l'origine notamment d'efflorescences algales. Les dépôts d'azote peuvent également conduire à l'acidification des sols (Fenn *et al.*, 1998), elle-même pouvant provoquer l'acidification des cours d'eau connectés. D'ailleurs, en comparaison à l'acide sulfurique, le sulfate d'ammonium acidifie davantage les eaux douces faiblement tamponnées du fait de la nitrification de l'ammonium, et l'eau est plus longue à recouvrer une composition normale (Brouwer *et al.*, 1997). Finalement, les effets de l'acidification sont plus importants que ceux induits par l'eutrophisation. Ainsi, Party *et al.* (1995) montraient que l'acidification de 8 % des cours d'eau des Vosges à un pH inférieur à 5,4 pouvait conduire à l'invasion des

communautés végétales par des joncs (*Juncus bulbosus*) et des mousses aquatiques, mais aussi à la remobilisation de contaminants, en particulier les éléments-traces métalliques. Des eaux non acidifiées mais chargées en azote peuvent également conduire à une prolifération d'espèces comme la lentille d'eau *Lemna minor*, au détriment de communautés végétales à base de *Littorella* (Arts *et al.*, 1990).

Toutefois, les préoccupations actuelles se portent de plus en plus sur la contamination des masses d'eau par les PPP. La part des dépôts atmosphériques dans cette contamination par rapport à la lixiviation ou au ruissellement sur les sols n'est pas très bien évaluée à l'heure actuelle, ces dépôts pouvant avoir lieu au moment de l'application, lors de la dérive des gouttelettes de pulvérisation, ou après l'application, par dépôt gazeux de la fraction de composés volatilisée depuis la parcelle traitée. De nombreuses études menées en milieux aquatiques contaminés par ces PPP (quelle que soit la source de contamination) ont révélé les effets délétères sur le développement et la reproduction d'espèces aquatiques. Par exemple, l'atrazine est une molécule herbicide dont les effets sur le développement de poissons et d'amphibiens se sont traduits notamment par des perturbations endocriniennes et l'apparition d'intersexualité (Hayes *et al.*, 2011). Bien que l'atrazine soit interdit en Europe depuis 2003, des concentrations non négligeables de ce composé et de son principal métabolite, le déséthylatrazine, sont encore retrouvées dans les rivières et les eaux souterraines. Aujourd'hui, les préoccupations portent notamment sur des molécules dont l'usage est très largement répandu, et dont les concentrations dans l'environnement pourraient provoquer des effets significatifs sur la faune sauvage. Ainsi, Relyea a montré que l'exposition en microcosme aquatique de têtards de trois espèces d'amphibiens à une application aux doses recommandées d'un produit formulé à base de glyphosate, herbicide à usage très répandu, conduisait à la mortalité de la quasi-totalité des individus testés (Relyea, 2005). La préoccupation relative aux PPP tient non seulement à l'écotoxicité intrinsèque de certaines des molécules les constituant, mais également à leur rémanence dans l'environnement et à leur transférabilité dans les milieux aquatiques. D'ailleurs, dans le cadre de la Directive-Cadre sur l'eau, plusieurs substances actives pesticides sont inscrites sur la liste des substances chimiques préoccupantes dont le suivi dans les masses d'eau et le biote est à présent obligatoire (directive 2013/39/UE).

Effets indirects liés à la contamination des ressources alimentaires

Les PPP sont également une source de préoccupation du fait de leur bioaccumulation dans les organismes vivants, et de leur transfert potentiel le long de la chaîne alimentaire. Ainsi, Hallmann *et al.* (2014) relient le déclin de populations d'oiseaux insectivores aux Pays-Bas à la quantité de néonicotinoïdes présents dans les eaux de surface. Ce phénomène n'est pas sans rappeler un événement majeur relaté au début des années 1960 par la biologiste américaine Rachel Carson, décrivant le déclin des pygargues à tête blanche et des goélands, oiseaux ichtyophages exposés au DDT (insecticide largement utilisé à la fin de la Seconde Guerre mondiale) *via* la consommation de poissons contaminés (Carson, 1962). Les propriétés physico-chimiques de cette molécule lui confèrent une forte capacité à s'accumuler dans les tissus graisseux, et à être bioamplifiée le long de la chaîne trophique. Ainsi, les organismes prédateurs

étaient particulièrement exposés à cette molécule qui présente un effet perturbateur endocrinien et cause notamment l'amincissement de la coquille des œufs, conduisant ainsi à l'échec de la reproduction. Les PPP accumulés le long de la chaîne alimentaire, notamment ceux possédant des propriétés perturbatrices des fonctions endocrines, constituent un risque à long terme pour la faune aquatique et les organismes ichthyophages. Ces raisons ont contribué à la suppression des PPP les plus bioaccumulables, les organochlorés, des listes de produits autorisés à la mise sur le marché.

► Les effets des polluants d'origine agricole sur la santé

Parmi les polluants atmosphériques émis par les activités agricoles, il convient de distinguer les composés qui contribuent au changement climatique, les GES, des polluants atmosphériques *stricto sensu* connus pour avoir des effets sur la santé. Ce sont ces derniers qui font l'objet d'un focus dans ce qui suit, avec une présentation des impacts toxicologiques sur la santé des principaux d'entre eux : les pesticides, les particules, le NH₃, les NO_x, les pollens et allergènes. Cette section n'abordera ni les aspects épidémiologiques ni les nuisances olfactives.

Concernant l'O₃, polluant secondaire connu pour impacter l'agriculture et pour une part généré par elle, il faut savoir que ce dernier a également des effets sur la santé. Un point lui est donc également consacré dans ce qui suit.

Les pesticides

La revue de la littérature scientifique réalisée dans le cadre de l'expertise collective Inserm (2013, en cours d'actualisation) fournit des arguments sur les risques sanitaires associés à l'exposition aux pesticides, en particulier dans le secteur agricole, et sur les effets d'une exposition précoce chez le fœtus et le jeune enfant. Elle propose des niveaux de présomption concernant le lien entre expositions aux pesticides et différentes pathologies. Les pathologies pour lesquelles la présomption est forte sont la maladie de Parkinson et trois types de cancer : le cancer de la prostate, le lymphome non hodgkinien (cancer touchant les cellules du système lymphatique) et le myélome multiple (affection de la moelle osseuse). Par ailleurs, les expositions aux pesticides intervenant au cours de la période prénatale et périnatale ainsi que lors de la petite enfance semblent être particulièrement à risque pour le développement de l'enfant, à court et moyen terme. Des excès de risque ont notamment été classés en forte présomption de lien avec l'exposition professionnelle pendant la grossesse, mais aussi avec les expositions résidentielles en période prénatale et les expositions au domicile.

Lorsqu'on s'intéresse aux effets sanitaires des pesticides, notamment *via* l'approche épidémiologique, une des difficultés réside dans l'identification des substances impliquées. Cela peut s'expliquer par les approches utilisées à l'heure actuelle, reposant en grande partie sur des questionnaires, mais aussi par la multiplicité des substances existantes, des sources et des voies d'exposition. Il est ainsi reconnu que les pesticides sont présents dans les différents compartiments de l'environnement : l'air

ambiant, les environnements intérieurs (air et poussières), l'eau, le sol, les denrées alimentaires. Qu'elles soient professionnelles ou environnementales, les trois voies d'exposition pour l'homme concernent l'ingestion, le contact cutané ou l'inhalation.

Si en milieu professionnel, la voie d'exposition majoritaire est la voie cutanée, il existe des circonstances particulières où l'exposition peut se faire par inhalation, comme l'épandage, la fumigation ou l'utilisation de pesticides en milieu fermé (serres, silos, bâtiments d'élevage) (Inserm, 2013). En population générale, la voie orale est le plus souvent considérée comme la principale voie d'exposition, à travers l'alimentation. Cependant, la présence de pesticides dans l'air est avérée, et l'inhalation de pesticides peut elle aussi contribuer au développement de certaines pathologies. Mais, du fait du manque de données sur les autres voies d'exposition, il reste encore très complexe aujourd'hui d'évaluer la contribution de chacune d'entre elles. L'importance de l'exposition par voie aérienne est fonction de la quantité de pesticides appliquée, des caractéristiques physico-chimiques des composés, qui influent sur leur émission et leur persistance dans l'atmosphère, de leur formulation, qui influe non seulement sur le comportement physico-chimique de la matière active, mais aussi sur son passage dans les alvéoles pulmonaires et des caractéristiques individuelles telles que l'activité physique. Dans l'évaluation de l'exposition potentielle aux PPP *via* l'air sur la base du document guide de l'EFSA (2014), une distinction est faite entre l'exposition du travailleur, du passant ou du résident³⁸. En ce qui concerne les résidents, l'EFSA (2014) préconise d'évaluer les risques selon trois scénarios d'exposition : une exposition au moment du traitement par dérive de pulvérisation (cutanée et respiratoire), une exposition post-traitement par inhalation des vapeurs et une exposition par contact cutané indirect lors d'une rentrée dans un champ traité ou lors du contact avec une surface contaminée. Ces estimations fondées sur des études ou des modèles sont ensuite comparées à l'AOEL (*acceptable operator exposure level*, ou niveau acceptable d'exposition pour l'opérateur) en considérant l'ensemble des voies d'exposition (Anses, 2014a). Cette valeur désigne la quantité maximale de substance active à laquelle l'opérateur peut être exposé quotidiennement, sans effet dangereux pour sa santé. Mais il s'agit d'une valeur de référence interne, couvrant l'ensemble des voies d'exposition. À l'heure actuelle, il n'existe pas de valeur de référence pour l'exposition des pesticides par voie inhalée.

Au-delà de l'approche par modélisation, des mesures dans les différents compartiments sont essentielles pour appréhender le risque encouru par la population. Ainsi, des préconisations ont été publiées, par exemple par l'Inserm (2013), quant à la réalisation de campagnes de mesures dans l'air ambiant et intérieur pour estimer cette voie d'exposition encore mal connue. En 2014, l'Anses a été saisie par plusieurs directions ministérielles pour émettre des recommandations pour la mise en œuvre d'une surveillance nationale des pesticides dans l'air (Anses, 2017). Une des recommandations portait sur la définition d'une liste de substances prioritaires à rechercher, liste qui a alors été établie en mobilisant l'outil Sph'Air (outil présenté dans le chapitre 6). Parmi les critères pris en compte dans l'outil, un critère spécifique porte sur l'estimation du potentiel de danger pour la santé humaine des substances.

38. Les résidents sont des personnes qui habitent, travaillent ou fréquentent une institution à proximité des espaces traités avec des PPP, à une fin autre que celle de travailler dans l'espace traité ou avec les produits traités.

Initialement, ce critère était estimé à partir de la dose journalière admissible (DJA), mais ce critère ne considérant que la voie orale a été largement modifié dans le travail de l'Anses. En l'absence de critère de toxicité spécifique à l'inhalation disponible pour toutes les substances, la DJA a été remplacée par un score de danger résultant de l'agrégation d'indicateurs portant sur les effets chroniques, et reposant sur des informations relatives notamment aux effets cancérogènes, génotoxiques, au caractère perturbateur endocrinien (PE), reprotoxique et développemental, dont neurodéveloppemental et neurodégénératif (Parkinson, Alzheimer, sclérose latérale amyotrophique, troubles cognitifs). Les classifications CLP (Classification, Labelling, Packaging : règlement européen de classification et d'étiquetage des produits chimiques) émanant de divers organismes (CIRC, Inserm, US-EPA, EFSA) et la présence sur des listes de substances présentant des effets PE ont été utilisées.

Les particules

Les particules ont des effets sur la santé à court et long terme. Il est avéré que l'exposition chronique (plusieurs années) aux particules fines ($PM_{2,5}$) contribue au développement de diverses maladies chroniques telles que des maladies cardio-vasculaires (infarctus du myocarde, angine de poitrine ou troubles du rythme cardiaque), respiratoires, neurologiques et des cancers. Des études récentes relient l'exposition à long terme aux $PM_{2,5}$ et des effets incluant l'athérosclérose, des issues indésirables de grossesse (faibles poids de naissance, naissances prématurées) et des pathologies respiratoires chez l'enfant (infections respiratoires et asthme) ; certaines indiquent un lien possible avec une atteinte du neuro-développement et des fonctions cognitives, et le développement du diabète (OMS, 2013). À court terme, c'est-à-dire de quelques heures à quelques jours après l'exposition, il peut se produire des effets de type irritations, voire l'aggravation de symptômes de pathologies chroniques. Les effets les moins graves et les plus courants sont la toux, l'hypersécrétion nasale, l'expectoration, l'essoufflement, l'irritation du nez, des yeux et de la gorge. Des effets plus graves, respiratoires ou cardio-vasculaires, peuvent aussi apparaître et conduire à l'hospitalisation, voire au décès (Lu *et al.*, 2015 ; Corso *et al.*, 2015).

En 2013, le CIRC a classé les matières particulaires de la pollution de l'air extérieur comme cancérogènes pour l'homme (groupe 1), avec des preuves suffisantes pour le cancer du poumon (CIRC, 2016).

Les nombreuses études réalisées et publiées dans le monde depuis 2005 tendent à démontrer qu'il n'est pas possible d'identifier un seuil en deçà duquel aucun effet néfaste sur la santé ne serait anticipé. En effet, les concentrations en $PM_{2,5}$, à partir desquelles des effets indésirables sur la santé ont été mis en évidence, sont de l'ordre des concentrations rurales de fond mesurées en Europe occidentale et aux États-Unis ($3 \text{ à } 5 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$) (OMS, 2013).

Enfin, les nouvelles données de Santé publique France issues de la surveillance sanitaire confirment le poids de la pollution par les particules fines en France : 48 000 décès par an estimés pour la pollution particulaire ($PM_{2,5}$) (Pascal *et al.*, 2016). Et Santé publique France rappelle que l'impact sanitaire global de cette pollution résulte avant tout de l'exposition chronique, au jour le jour.

Les composés azotés : ammoniac, oxydes d'azote

Le NH_3 , principalement émis lors de l'épandage de fertilisants organiques et minéraux, est un gaz provoquant des irritations, voire des brûlures au niveau des muqueuses en raison de sa forte solubilité dans l'eau. Ces irritations sont également observées au niveau oculaire, provoquant un larmoiement, une hyperhémie conjonctivale, des ulcérations conjonctivales et cornéennes, une iritis. Une cataracte ou un glaucome peuvent apparaître jusqu'à 10 jours après exposition.

À des concentrations élevées, l'inhalation d'ammoniac se caractérise par une détresse respiratoire intense liée à un bronchospasme d'intensité variable et au développement d'un œdème des muqueuses de l'ensemble du tractus respiratoire, avec une toux et une dyspnée asthmatiforme.

Pour des expositions importantes aiguës, l'ammoniac peut induire le développement d'un syndrome de dysfonctionnement réactionnel des voies respiratoires (RADS, ou syndrome de Brooks), voire d'un asthme de type *irritant-induced* (asthme non immunologique induit par des substances irritantes). Ces manifestations se traduisent par une toux, une dyspnée et des sifflements thoraciques (Ineris, 2009).

Enfin, l'ammoniac émis dans l'air est aussi connu pour être à l'origine de la formation de particules secondaires dans l'air ambiant (par réaction chimique avec l'acide nitrique). Il s'agit de particules de nitrate d'ammonium qui se retrouvent dans la fraction fine de la pollution particulaire de l'air. Toutefois, la toxicité propre du nitrate d'ammonium est encore en débat (Afsset, 2009 ; Brunekreef *et al.*, 2015).

En ce qui concerne les oxydes d'azote, c'est le NO_2 qui a des effets délétères sur la santé. Comme pour les particules, il présente des effets à court et à long terme.

À court terme, le dioxyde d'azote a des effets directs sur la santé respiratoire : les données mécanistiques et le niveau de preuve des études épidémiologiques sur les associations sont en faveur d'une relation causale. Les symptômes respiratoires causés par le NO_2 sont en particulier liés à l'asthme : apparition de crises d'asthme, augmentation de la réactivité des voies respiratoires et de l'inflammation allergique, intensification de l'hyperréactivité bronchique chez des personnes asthmatiques (US EPA, 2016 ; Santé-Canada, 2016).

Pour ce qui est des maladies cardio-vasculaires et du diabète, si des études récentes fournissent des données évocatrices, elles ne sont cependant pas suffisantes pour pouvoir conclure à un lien de causalité avec une exposition à court terme au NO_2 (US EPA, 2016).

À long terme, il est plus difficile de juger des effets du NO_2 du fait de la corrélation forte, dans les études épidémiologiques disponibles, entre les concentrations en NO_2 et d'autres polluants de l'air. Les données disponibles sont cependant en faveur d'une relation causale entre l'exposition à long terme au NO_2 et les maladies respiratoires, établie à partir des études sur l'indicateur sanitaire « apparition de l'asthme ». Il a été démontré que l'apparition de l'asthme chez l'enfant était liée à l'augmentation des concentrations ambiantes de NO_2 (US EPA, 2016). De récentes études évoquent un lien possible entre les pathologies cardiaques, le diabète ou un retard dans le développement du fœtus et l'exposition à long terme au NO_2 , mais les données restent insuffisantes pour pouvoir conclure à la causalité (Santé-Canada, 2016).

Les pollens et allergènes

En agriculture, certaines cultures ou pratiques culturales sont plus particulièrement problématiques vis-à-vis du risque pollinique. Les graminées, par exemple, sont une des quatre familles de plantes dont les pollens sont les plus problématiques en France. Elles regroupent plusieurs milliers d'espèces végétales. La plupart des espèces communément appelées « herbes » ou « céréales » sont des graminées.

En 2014, une expertise collective de l'Anses a fait le point sur l'impact sanitaire des pollens présents dans l'air ambiant (Anses, 2014b). Les éléments qui suivent sont issus de cette revue. Le grain de pollen est le gamétophyte mâle et joue ainsi un rôle essentiel dans la reproduction de la majorité des plantes. Selon les espèces, il est transporté soit par les insectes pour les plantes entomophiles, soit par le vent pour les plantes anémophiles. Les pollens allergisants anémophiles sont à l'origine de la majorité des pollinoses, parce qu'ils sont émis dans l'atmosphère en plus grandes quantités et entrent naturellement en contact avec les muqueuses respiratoires et oculaires du fait de leur taille plus réduite. Les allergènes du pollen sont localisés à l'intérieur du grain, principalement dans le cytoplasme. Les grains de pollen contiennent également des composés ayant des effets pro-inflammatoires ou adjuvants à la réaction allergique qui peuvent augmenter l'inflammation des voies aériennes induite par le pollen. Les grains de pollen peuvent être amenés à libérer leur contenu suite à différents événements, notamment le contact avec l'eau et les muqueuses.

Les pollens sont responsables de réactions allergiques appelées « pollinoses » au niveau des muqueuses respiratoires et oculaires, ce qui se traduit surtout par des rhinites et des rhino-conjonctivites, et plus rarement de l'asthme. La rhinite allergique liée aux pollens est saisonnière et est souvent appelée « rhume des foins », bien que cette dernière appellation fasse plus particulièrement référence à l'allergie aux pollens de graminées.

La prédisposition génétique au développement d'une allergie, ou atopie, est un facteur de risque important dans le développement des pollinoses. Les sujets atopiques sont souvent polysensibilisés, et l'allergie aux pollens se développe généralement à l'adolescence ou chez l'adulte jeune. Cependant, la pathologie allergique peut survenir indépendamment de toute prédisposition génétique.

Le pouvoir allergisant et les mécanismes biologiques en cause sont inégalement documentés en fonction des pollens. La contribution des différents pollens responsables de la pathologie allergique dépend de la localisation géographique. Ainsi, les pollens les plus problématiques en France sont ceux des Cupressacées dans le sud-est, des graminées sur tout le territoire, des Bétulacées dans le quart nord-est et de l'ambroisie à feuilles d'armoise dans la vallée du Rhône.

Certains polluants chimiques peuvent moduler la réaction allergique en agissant directement chez les sujets sensibilisés, ou en agissant sur les grains de pollen, notamment sur leur paroi et sur leur contenu protéique. Les polluants atmosphériques peuvent favoriser la réaction allergique des sujets sensibilisés en abaissant le seuil de réactivité bronchique et/ou en accentuant l'irritation des muqueuses nasales ou oculaires.

Au niveau des grains de pollen, un des types d'interactions avec les polluants chimiques atmosphériques les plus documentés est la déformation ou la rupture de la paroi du grain. Les fragments de grain de pollen et les granules cytoplasmiques ont une taille qui leur permettrait ensuite de pénétrer dans le système respiratoire bien plus profondément que les grains de pollen : 0,5 à 4,5 μm , contre 20-40 μm en moyenne pour la plupart des grains de pollen allergisants. À cela s'ajoute la possibilité que les molécules allergisantes soient véhiculées par la fraction particulaire la plus fine de l'aérosol par adsorption sur celle-ci.

L'ozone

L'ozone n'est pas un polluant directement émis par les activités agricoles. Il est formé dans l'atmosphère à partir de composés chimiques primaires (dont les NO_x et les composés organiques volatils, qui peuvent être d'origine agricole) et sous l'influence du rayonnement ultraviolet. Il est donc lié à l'agriculture à la fois par son origine indirecte partielle et par son impact négatif sur les rendements agricoles. Mais s'il a des effets néfastes sur les processus physiologiques des végétaux, l'ozone altère également la santé humaine. Ces effets se manifestent à court et à long terme.

À court terme, des relations causales ont été établies entre l'exposition à l'ozone et la morbidité et la mortalité respiratoires. L'ozone peut ainsi être à l'origine d'une hyperréactivité des voies respiratoires, de symptômes tels que la toux, des sifflements ou des essoufflements, de l'amplification de crises d'asthme et d'une augmentation du nombre d'hospitalisations et de visites aux urgences pour causes respiratoires, pouvant conduire à un excès de mortalité (US EPA, 2013).

Depuis 2005, plusieurs analyses de cohortes ont été publiées sur l'exposition à long terme à l'ozone. Parmi ces études, la plus puissante, menée par l'American Cancer Society, montre une association significative avec la mortalité totale et plus spécialement la mortalité cardio-pulmonaire. En outre, plusieurs études récentes de suivi sur l'exposition à long terme ont rapporté des effets indésirables sur les maladies respiratoires telles qu'une augmentation de l'incidence de l'asthme, une aggravation de l'asthme, une augmentation des hospitalisations pour asthme, en particulier chez les enfants, et une altération de la fonction pulmonaire. Ces observations sont corroborées par des études expérimentales chez l'animal, y compris des primates, montrant des lésions chroniques et des changements structurels à long terme des voies aériennes chez les animaux exposés pendant une période prolongée à l'ozone et aux allergènes combinés (OMS, 2013).

Trois revues générales (Calderón-Garcidueñas *et al.*, 2015 ; Clifford *et al.*, 2016 ; Weisskopf *et al.*, 2015) soulignent le lien qui pourrait exister entre la pollution de l'air et le déclin de fonctions cognitives et/ou des effets neurologiques, sans toutefois pouvoir réaliser de méta-analyse. Certains des articles inclus dans ces revues ciblent l'ozone (Becerra *et al.*, 2012 ; Jung *et al.*, 2013).

Enfin, dans une revue récente (Mancebo et Wang, 2015), les effets cutanés en relation avec l'exposition à la pollution de l'air sont étudiés. Les mécanismes d'action impliqués dans les effets cutanés sont décrits et montrent l'implication de l'ozone dans la génération de radicaux libres, l'altération de la microflore bactérienne

cutanée, et l'activation du récepteur d'aryl d'hydrocarbure (AhR : *aryl hydrocarbon receptor*) présent dans la peau et impliqué dans la régulation de la prolifération cellulaire, l'inflammation et la mélanogenèse.

► Les conséquences pour le climat

Les interactions entre agriculture, qualité de l'air et climat sont assez complexes et encore imparfaitement connues. En effet, si la quantification des émissions et l'estimation des impacts directs des GES émis par l'agriculture sur le climat sont aujourd'hui bien documentées, il n'en est pas de même pour les effets indirects, notamment les modifications du cycle du carbone induites par les impacts des polluants sur la production des écosystèmes naturels et cultivés.

Les inventaires du Citepa (2019) indiquent qu'en 2017, le secteur agricole représentait 18 % des émissions nationales de GES (de l'ordre de 21 % si on y ajoute les émissions de CO₂ liées à la consommation d'énergie des activités agricoles). Par rapport aux autres secteurs, les émissions agricoles présentent dans leur grande majorité la particularité de ne pas être associées à la consommation d'énergie, et d'être générées par des processus biologiques. Ainsi, en 2017, l'élevage représentait 9,7 % des émissions totales de GES, principalement sous forme de CH₄ produit lors de fermentations anaérobies, et dans une plus faible proportion de N₂O. Les productions végétales représentaient 8,0 % des émissions de GES, principalement sous forme de protoxyde d'azote émis par les sols cultivés, lors des processus biochimiques de nitrification et dénitrification. Une expertise de l'Inra a montré que dans le cadre d'études sur le changement climatique, il pourrait être possible de réduire ces émissions de façon assez significative, de l'ordre de 10 % (Pellerin *et al.*, 2015).

Les effets indirects sont principalement dus aux impacts des polluants sur le fonctionnement des écosystèmes, naturels ou cultivés. Par exemple, l'augmentation de la concentration de l'air en ozone pourrait réduire de façon significative la fixation de CO₂ par la photosynthèse des végétaux, ce qui conduirait à des teneurs en CO₂ atmosphérique supérieures à celles qui sont actuellement prévues par les modèles climatiques (Sitch *et al.*, 2007). Au contraire, un accroissement des dépôts de molécules azotées (sous forme d'ammoniac par exemple) sur les écosystèmes naturels peut avoir un effet fertilisant et accroître leur productivité (mais en impactant négativement leur biodiversité), conduisant ainsi les écosystèmes à prélever dans l'atmosphère davantage de CO₂ (Sutton *et al.*, 2011).

Aux incertitudes sur la façon dont les deux processus antagonistes pris en exemple peuvent s'équilibrer dans le futur s'ajoutent les incertitudes sur les effets attendus des politiques publiques engagées pour réduire les impacts de ces polluants. En effet, celles-ci sont souvent définies indépendamment les unes des autres, alors que l'exemple précédent met en évidence la nécessité d'une coordination étroite entre les dispositions réglementaires, de façon à obtenir le meilleur compromis entre la réduction des dépôts azotés à l'échelle régionale, la pollution régionale à l'ozone et les mesures d'atténuation du changement climatique.

Enfin, il faut également rappeler que les changements climatiques attendus vont fortement influencer les émissions de polluants agricoles ainsi que leurs impacts, en modifiant la température de l'air ou des sols, qui est très souvent un facteur déterminant (chapitres 2 et 3).

Chapitre 2

Mécanismes : échanges de polluants aux interfaces sol-végétation-atmosphère et devenir dans l'atmosphère

Sébastien Saint-Jean, Carole Bedos, Raluca Ciuraru,
Sophie Générumont, Laurent Huber, Juliette Lathière,
Benjamin Loubet, Raia Silvia Massad, Patrick Stella,
Andrée Tuzet, Éric Villenave

- La présence dans l'atmosphère des polluants identifiés dans le chapitre 1, leurs
- niveaux de concentrations et leur temps de résidence dépendent d'une chaîne
- de processus de différentes natures (physique, chimique, physico-chimique,
- biologique). Ce chapitre décrit les mécanismes élémentaires sous-jacents à
- chacun de ces maillons et les principaux facteurs les influençant afin de mieux
- comprendre leurs interactions (chapitre 3) et de fournir une vision globale et
- complète de l'origine et du devenir de ces composés dans l'atmosphère et aux
- interfaces, vision nécessaire à une bonne appréhension du contexte et des divers
- choix qui pourront être faits en matière de mesures (chapitre 4), de modélisation
- (chapitre 5) ou de leviers d'action (chapitre 7).

Les polluants atmosphériques sont classés en polluants primaires, directement émis par les activités agricoles ou les systèmes naturels, transportés puis se déposant sans transformation, et en polluants secondaires, issus de transformations physico-chimiques dans l'atmosphère. Ainsi, ce chapitre décrit les processus, schématisés en figure 2.1, à l'origine :

– des émissions des polluants directement émis vers l'atmosphère (polluants primaires) ou de précurseurs de polluants secondaires (émis dans l'atmosphère par réactions chimiques de composés entre eux), en incluant l'identification de leurs déterminants et la présentation de leurs spécificités ;

- de leur transport atmosphérique à différentes échelles spatiales ;
- de la chimie atmosphérique dans laquelle ces composés sont impliqués (polluants secondaires) ;
- et enfin des diverses voies de dépôt.

Pour plus de clarté, nous avons fait le choix dans ce chapitre de tout d'abord distinguer les processus d'émissions des processus de dépôts, même si dans beaucoup de cas, il s'agit d'échanges bidirectionnels, puis de présenter les mécanismes selon leur nature (physique, chimique, physico-chimique, biologique), même si ce sont souvent des processus interdépendants (certains d'entre eux relevant par ailleurs du domaine de la chimie multiphasique, ce qui confère une certaine complexité au système).

Un certain nombre de connaissances globales quant à la description de l'état du milieu dans lequel évoluent les polluants et des surfaces d'échange est requis pour comprendre le devenir de ces polluants dans cet environnement. Ainsi, en ce qui concerne le sol, il est primordial de connaître son état hydrique, thermique, chimique et biologique. Pour les surfaces foliaires, leur fonctionnement (ouverture stomatique par exemple) et leurs caractéristiques de surface (nature, surface développée, température, humidité, présence d'eau liquide par exemple) doivent être connus pour *in fine* étudier le comportement des polluants chimiques à cette interface. Ainsi, les facteurs pédoclimatiques et physiologiques de la plante, d'intérêt pour les pollutions agricoles, sont brièvement décrits en annexe de ce chapitre, en explicitant les bilans radiatif, d'énergie, hydrique et thermique ainsi que le fonctionnement biologique des plantes et du sol, en donnant également des éléments sur l'effet des pratiques agricoles sur ces conditions locales.

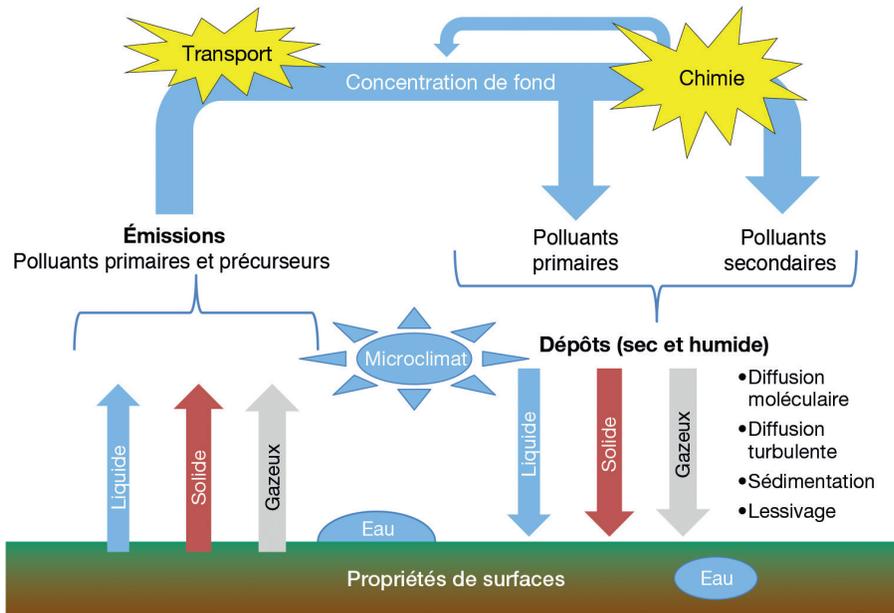


Figure 2.1. Processus déterminant la présence et le niveau de concentration des polluants dans l'atmosphère. Émissions et dépôts de polluants provenant des surfaces cultivées (vert) et des sols (marron).

» Émissions

Nous considérons, dans cette section, les émissions primaires de composés gazeux et particulaires. Les formations de polluants secondaires (O_3 , aérosols secondaires) sont traitées dans la section Chimie atmosphérique.

Composés gazeux (sources et puits)

L'émission de composés gazeux vers l'atmosphère résulte d'un transfert vers l'atmosphère de composés présents sous forme gazeuse à l'interface surface émettrice-atmosphère. Cette concentration en surface est conditionnée par des processus en interaction et de différentes natures : physico-chimique, biologique, physique. Pour le compartiment biologique (plante, animaux...), des processus physico-chimiques cohabitent avec des processus biologiques, la partition entre chacun des processus n'étant pas toujours nette. Enfin, selon les processus, différents facteurs conditionnent l'intensité ainsi que l'évolution temporelle et spatiale des émissions. Pour plus d'information sur ces processus, se référer à Calvet *et al.* (2005), ou Schwarzenbach *et al.* (1993).

Processus physico-chimiques et chimiques

La concentration en phase gazeuse d'un composé dépend des différents équilibres physico-chimiques issus des changements d'état en jeu (ainsi qu'illustré sur la figure 2.2 pour le cas des produits phytopharmaceutiques). Ces changements d'état concernent soit les substances pures, liquides ou solides, soit les substances dissoutes dans l'eau. Ils peuvent donc avoir lieu à l'interface sol-atmosphère ou feuille-atmosphère, mais aussi à l'intérieur du sol, dans chaque pore d'air du sol, plus ou moins rempli d'eau, aux interfaces liquide-air ou liquide-sol. En effet, le sol est un réseau complexe de pores, résultant de l'arrangement spatial des particules solides, qui sont remplis d'eau ou d'air, interconnectés, et dans lesquels les micro-organismes et leurs ressources sont distribués de manière hétérogène. Pour rappel, la concentration en phase gazeuse résultant de l'équilibre entre l'air et une substance pure, solide ou liquide, est directement déduite de la pression de vapeur saturante du composé P_{vap} (Pa), grandeur spécifique de celui-ci, et ne dépend que de la température, et ce de manière exponentielle (selon la loi de Clausius-Clapeyron). En présence de liquide ou dans le sol, l'équilibre physico-chimique entre la phase aqueuse dans laquelle le composé est solubilisé et la phase gazeuse est décrit par un coefficient de partitionnement spécifique, la constante de Henry K_H , qui traduit donc la propension d'un composé à passer dans l'air à partir de la phase aqueuse et *vice versa*. K_H est définie par le rapport à un instant t entre la pression partielle dans l'atmosphère du composé et sa concentration en phase aqueuse. K_H est généralement estimée à saturation par le rapport entre la pression de vapeur saturante en phase gazeuse et la solubilité en phase aqueuse (S_w) et est aussi spécifique de chaque composé. K_H dépend de la température du milieu où s'établit l'équilibre. Une forte incertitude porte sur la détermination que cela soit de P_{vap} ou de K_H . Se référer à la synthèse de Sander (2015) pour les différentes expressions de la constante de Henry.

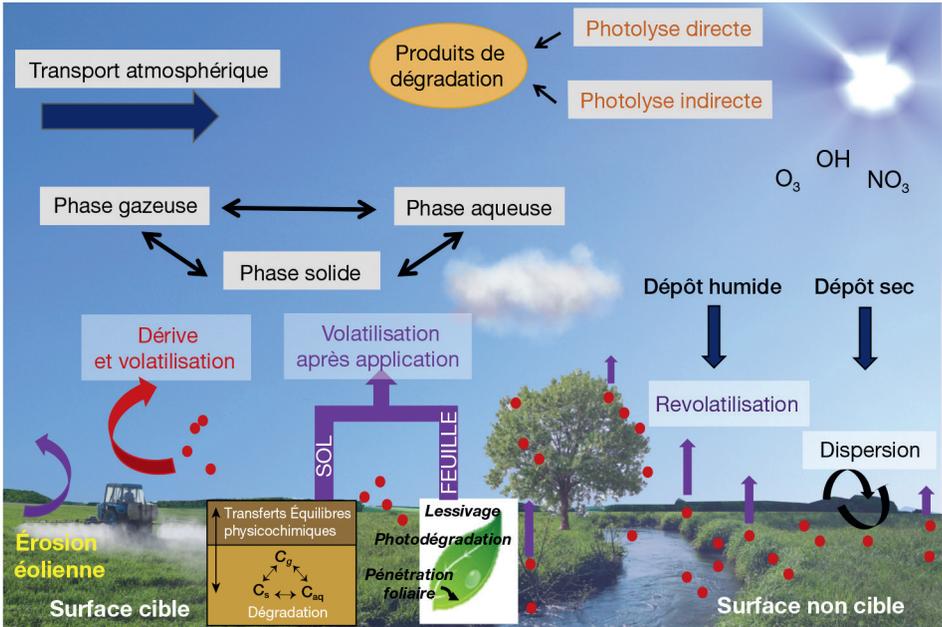


Figure 2.2. Devenir des produits phytopharmaceutiques après leur application sur une surface cible (sol ou culture) : voies de transferts vers l'atmosphère (par dérive, volatilisation depuis le sol ou les feuilles et érosion éolienne), devenir dans l'atmosphère (équilibres physico-chimiques, transformations, transport) et voies de dépôts (sec et humide) (d'après Socorro, 2015).

En présence d'éléments solides minéraux ou organiques du sol, ou de la cuticule de la feuille, les composés peuvent établir des interactions physiques avec ces surfaces *via* des phénomènes d'adsorption, les réactions chimiques avec les constituants organiques constituant la chimisorption. Par exemple, les complexes argileux du sol, chargés négativement, offrent des sites d'adsorption pour les ions ammonium en solution, permettant de corrélérer ce processus avec la capacité d'échange cationique du sol (CEC). L'ammonium est toutefois en concurrence pour les sites d'adsorption avec les autres cations du sol (notamment les ions Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ et K^+). Un intrant organique tel qu'un effluent d'élevage, en impliquant une matière organique solide globalement chargée négativement, constitue également une matrice d'adsorption des ions ammonium en solution avec sa CEC propre, qui est fonction de la nature et des surfaces d'échanges des matières organiques. Dans le cas des PPP, il est communément considéré que le processus d'adsorption s'opère majoritairement depuis la phase aqueuse vers la matière organique (Hamaker et Thompson, 1972), et dans une moindre mesure sur les argiles pour les pesticides ionisables. L'adsorption est décrite par des isothermes d'adsorption qui, quand elles sont linéaires, peuvent être exprimées en utilisant un coefficient de distribution d'adsorption-désorption, K_d . En surface du sol cependant, les conditions d'assèchement souvent observées impliquent l'expression d'une adsorption du composé depuis sa phase gazeuse dans l'air des pores du sol vers la matrice solide minérale, notamment *via* des forces de van der Waals (Goss, 2004). L'importance de cette adsorption depuis la phase gazeuse dépend d'une part du coefficient de partage spécifique du pesticide considéré, et d'autre part des

propriétés et des conditions du sol, notamment la surface spécifique de la matrice minérale disponible à l'adsorption, mais aussi la teneur en eau du sol, qui détermine la proportion de cette surface couverte par des molécules d'eau et donc indisponible à l'adsorption de molécules peu solubles dans l'eau comme les pesticides.

En ce qui concerne les équilibres avec la surface foliaire, un composé chimique atmosphérique peut être échangé avec la plante soit *via* la cuticule soit *via* les stomates. Nous nous focaliserons dans cette section sur les échanges cuticulaires, les échanges stomatiques étant traités dans la section sur les processus biologiques, même si certains peuvent relever de processus physico-chimiques. Par exemple, une application de PPP (figure 2.2) sur un couvert végétal entraîne leur présence sur tout ou partie de la surface de la feuille. Il est souvent fait l'hypothèse d'un échange atmosphère- plante essentiellement cuticulaire, avec un phénomène d'adsorption dépendant du composé (et, dans le cas des PPP, de la formulation), de la composition chimique de la cuticule, mais aussi de la mouillabilité des surfaces, affectant en conséquence la pénétration foliaire des pesticides. L'intensité de l'adsorption semble très corrélée au K_{ow} (coefficient de partage octanol/eau) du composé, traduisant le fait que l'adsorption dépend du caractère lipophile du composé (Lichiheb *et al.*, 2016), comme le montre l'exemple de la figure 2.3. Quant aux composés azotés, les échanges cuticulaires ont essentiellement lieu lors du dépôt du composé. À noter que les échanges des composés azotés *via* les stomates sont, eux, bidirectionnels (voir section « Processus biologiques »).

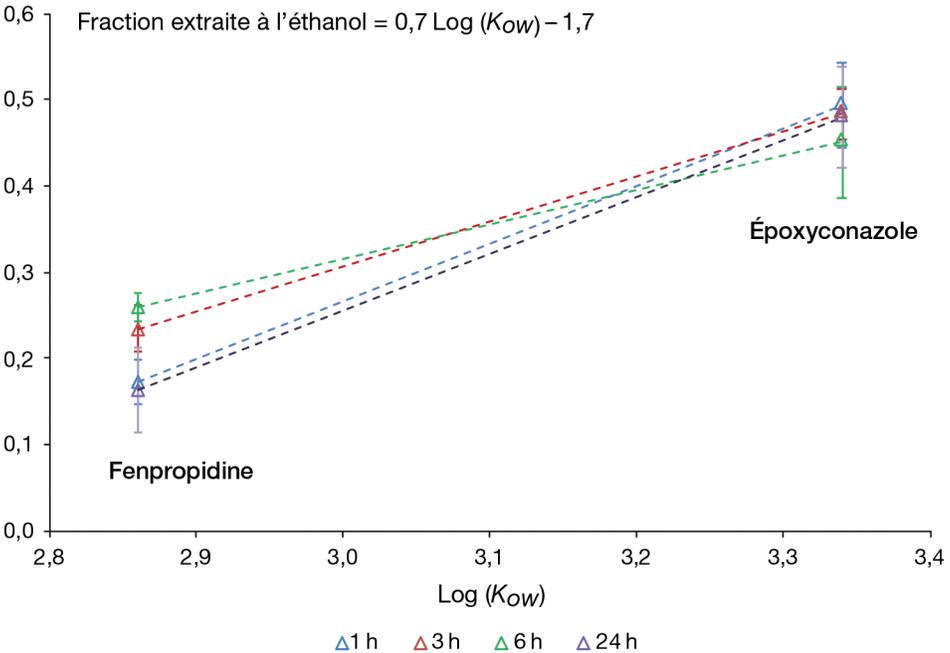


Figure 2.3. Dépendance de l'adsorption de matières actives de produits phytopharmaceutiques (fenpropidine pure, époxiconazole pure) sur la surface cuticulaire de feuilles de blé (assimilée à la fraction de composé extractible à l'éthanol) avec le coefficient de partage octanol/eau K_{ow} . Les lignes en pointillés bleues, rouges, vertes et violettes représentent cette relation 1 h, 3 h, 6 h et 24 h après l'application, respectivement (d'après Lichiheb *et al.*, 2016).

Par ailleurs, les quantités d'ammoniac disponible à l'émission ou de pesticides comportant un groupe fonctionnel acide ou basique dépendent également de leur dissociation chimique. Cette réaction correspond à l'équilibre entre l'espèce protonée (acide) et l'espèce déprotonée (base) du composé formalisé au moyen d'une constante de dissociation K_a définissant le rapport de concentration entre les formes acide et basique du composé dans un milieu aqueux. Ce processus est pH et température dépendant.

Nous avons présenté ci-dessus les processus d'équilibres physico-chimiques, mais l'équilibre n'est pas toujours atteint, et des cinétiques d'adsorption/désorption peuvent se mettre en place. De plus, selon le caractère oxydant ou réducteur du sol, des réactions d'oxydoréduction des composés peuvent avoir lieu. Il s'agit de réactions caractérisées par des transferts d'un électron entre les constituants. Les milieux hydromorphes sont le siège de réactions de réduction, alors que les milieux aérés sont le siège de réactions d'oxydation. Pour les composés azotés, l'oxydation de l'azote ammoniacal du sol donne lieu à la production de nitrates, tandis que la réduction des nitrates produit de l'ammonium. Pour les composés organiques tels que les pesticides, la réaction de réduction dépend de la présence ou non de groupes fonctionnels susceptibles d'être réduits (par exemple groupe nitro-aromatique ou sulfoxyde). À noter que des réactions d'oxydoréduction peuvent avoir des origines biologiques (par exemple catalyse des systèmes enzymatiques).

Enfin, les concentrations en composés disponibles pour l'émission dépendent de processus de dégradation abiotique, qu'ils se produisent en surface ou dans les matrices sol ou végétale. Nous pouvons citer l'hydrolyse des pesticides, qui est la réaction entre la molécule organique présentant un groupe fonctionnel hydrolysable et une molécule d'eau, ou la photodégradation, pouvant avoir lieu à la surface (Richard *et al.*, 2015).

Processus biologiques

Un certain nombre de processus biologiques sont à l'origine d'émissions de composés vers l'atmosphère : les composés azotés, les composés organiques volatils biogéniques (COVb), le méthane (CH_4) et enfin les PPP.

Composés azotés

Ces processus biologiques peuvent constituer des sources conduisant directement aux émissions de composés azotés : c'est le cas de la minéralisation conduisant à la production d'azote ammoniacal impliqué dans la volatilisation de NH_3 . Ils peuvent aussi contribuer en amont à l'augmentation du contenu d'azote du compartiment sol ou du compartiment plante et constituer ainsi des sources indirectes aux émissions de composés gazeux : c'est ainsi le cas de la fixation biologique de l'azote. Enfin, ils peuvent constituer une source pour un composé gazeux et en même temps un puits pour un autre composé : c'est le cas de la nitrification, qui consomme l'azote ammoniacal et le transforme en azote nitrique ; plus la nitrification est forte, plus la volatilisation de NH_3 diminue, mais plus il y a d'azote nitrique disponible pour la dénitrification. Les principales réactions du cycle biogéochimique de l'azote (figure 2.4) sont détaillées ci-dessous.

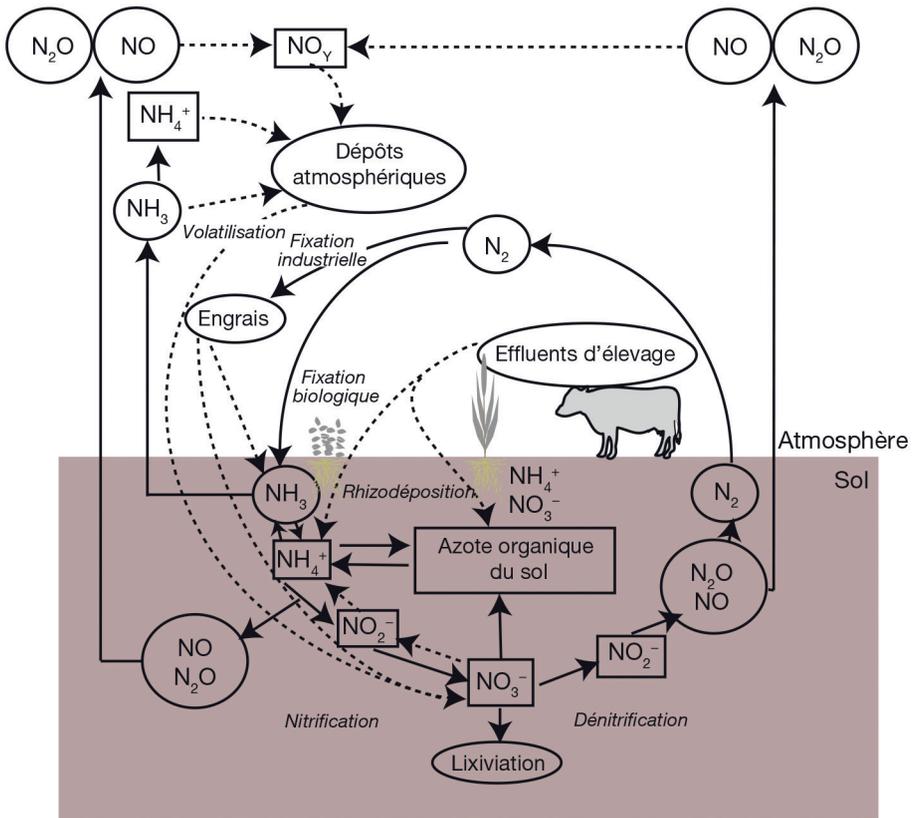


Figure 2.4. Le cycle biogéochimique de l'azote (Richard *et al.*, 2019) illustre la complexité des processus impliqués et leur enchaînement, ainsi que la variabilité des formes concernées, impliquées dans les émissions vers l'atmosphère (flèches en pointillés : apports d'azote à l'agrosystème).

La **fixation biologique**, essentiellement réalisée par les bactéries vivant en symbiose avec les plantes légumineuses, transforme l'azote atmosphérique N_2 , composé essentiel de l'atmosphère (78 %) mais inerte, en azote dit réactif (Nr), assimilable par tous les organismes vivants. La foudre est aussi à l'origine d'une production de NO par oxydation de N_2 , en quantité plus faible.

L'assimilation de l'azote minéral ne peut être réalisée que par les organismes autotrophes : les plantes, les champignons et certaines bactéries. L'**organisation microbienne**, ou **immobilisation**, est le processus biologique d'assimilation de l'azote minéral par les micro-organismes, qui conduit à la formation d'azote organique dans la biomasse microbienne, et donc dans le sol. L'absorption d'azote minéral par les racines des plantes se fait essentiellement à partir de la forme nitrate, avant son assimilation en azote organique constitutif de la biomasse végétale. Les organismes hétérotrophes (en particulier les animaux, dont l'homme) ne sont pas capables d'assimiler l'azote sous forme minérale, mais ingèrent l'azote directement sous forme organique (plantes, autres animaux...).

L'azote sous forme organique retourne à la forme minérale après excrétion ou après la mort des organismes concernés, par dégradation de la matière organique et minéralisation des composés organiques. La **minéralisation** est ainsi le processus inverse de l'organisation microbienne, et conduit aux deux formes minérales que sont l'azote nitrique (NO_3^+), forme oxydée, et l'azote ammoniacal ($\text{NH}_3/\text{NH}_4^+$), forme réduite.

Suite à une succession d'équilibres purement physico-chimiques décrits plus haut, l'azote ammoniacal peut se retrouver sous forme gazeuse et donner lieu à la **volatilisation d'ammoniac** (NH_3), qui constitue une des voies d'entrée de l'azote sous une forme active et polluante dans l'atmosphère.

L'azote ammoniacal est consommé par la réaction de **nitrification**, l'oxydation biologique de l'ammonium (NH_4^+) en nitrate (NO_3^-), en deux étapes successives : d'abord la nitrification, l'oxydation de l'ammonium en nitrite (NO_2^-), puis la nitratation, l'oxydation des nitrites en nitrates. La nitrification, une des réactions concurrentielles de la volatilisation d'ammoniac après une fertilisation azotée, puisqu'elle consomme l'azote nitrique en quantités et à des échelles de temps comparables, s'accompagne d'émissions biogéniques de monoxyde d'azote (NO) et d'acide nitreux (HONO), ainsi que de protoxyde d'azote (N_2O) dans une moindre proportion. Ces réactions sont réalisées par des bactéries spécifiques. La nitrification est très dépendante des conditions environnementales, en particulier le taux d'oxygénation : elle n'a lieu qu'en conditions aérobies. L'activité de la microflore est optimale pour des pH de 6,9 à 9 et des températures comprises entre 20 et 36 °C. En outre, certains composés peuvent ralentir ou bloquer ces réactions, comme de fortes teneurs en ammonium ou en nitrite, ou des inhibiteurs de la nitrification. En cas d'augmentation subite du substrat en azote ammoniacal, la croissance progressive des populations bactériennes à l'origine de cette réaction conduit à une phase de latence pouvant aller de quelques jours à quelques semaines.

La **dénitrification** est un élément clé du cycle de l'azote, qui permet le retour des formes réactives vers le N_2 inerte, par réduction du nitrate en passant par des formes intermédiaires, les nitrites (NO_2^-), les oxydes d'azote gazeux (NO , NO_2 , N_2O_5 et autres) et le protoxyde d'azote (N_2O). Quand elle n'est pas totale (passage de tous les ions nitrates sous forme de N_2), elle s'accompagne d'émissions biogéniques de N_2O en particulier, et de NO dans une moindre mesure. Cette réaction est réalisée par un grand nombre de bactéries et champignons. Elle a lieu quand les micro-organismes manquent d'oxygène, c'est-à-dire en conditions réductrices d'anaérobiose, typiquement pour des valeurs de taux de porosité du sol rempli par l'eau supérieures à 60 %. L'activité dénitrifiante est faible aux basses températures et est optimale pour des températures de 60-65 °C et pour des pH compris entre 6 et 8.

L'assimilation d'azote par les racines des plantes se fait préférentiellement *via* la forme nitrique, même si les plantes absorbent aussi de l'azote ammoniacal. La partition dépend de la disponibilité des deux formes, de la nature des plantes et des conditions de sol. Une augmentation de pH et des températures basses favorisent l'assimilation de la forme ammoniacale, alors que cette forme peut devenir toxique à des températures élevées.

Notons que le nitrate, très mobile dans le sol contrairement à l'ammoniac, est soumis à la **lixiviation**, c'est-à-dire à l'entraînement par les eaux de pluie dans les nappes phréatiques ou dans les eaux de surface, où il contribue à la dégradation de la qualité de l'eau.

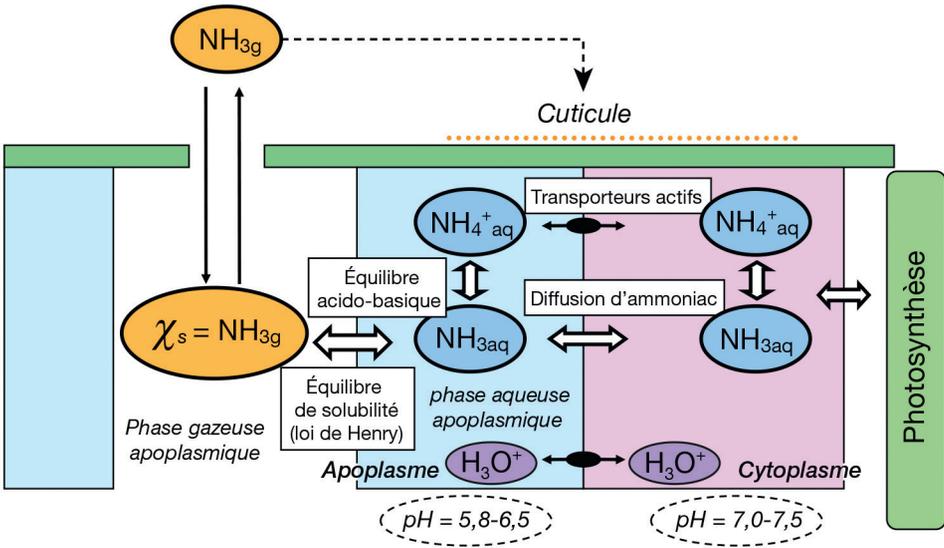


Figure 2.5. Équilibres physico-chimiques et contrôle biologique des échanges stomatiques de NH_3 .

Les échanges de NH_3 entre la plante et l'atmosphère proviennent d'un flux *via* les stomates (alors que les échanges cuticulaires sont issus de précédents dépôts), flux directement proportionnel à la différence de concentration en NH_3 dans l'air du couvert et dans l'air de la cavité sous-stomatique (figure 2.5). La concentration en NH_3 dans l'air de cette cavité sous-stomatique, appelée également « point de compensation stomatique, noté χ_s », résulte de l'équilibre thermodynamique entre NH_3 en phase gazeuse et en phase aqueuse, et de l'équilibre chimique entre les ions NH_4^+ et H^+ dans l'apoplasme (Γ , le rapport entre les concentrations de ces deux derniers ions, est appelé « potentiel d'émission ») (Massad *et al.*, 2008 ; Schjoerring, 1997). Le rapport entre χ_s et la concentration en NH_3 aqueux dans l'apoplasme est dépendant de la température, tandis que le rapport entre la concentration en NH_3 aqueux dans l'apoplasme et la concentration en ions NH_4^+ dépend du pH de l'apoplasme. L'absorption par les racines modifie non seulement les concentrations d'ammonium dans l'apoplasme, mais également le pH. L'ammonium est constamment généré dans les cellules de la feuille par divers processus, les plus importants étant la réduction des nitrates, la photorespiration, le renouvellement des protéines et la biosynthèse de la lignine (Joy, 1988 ; Leegood *et al.*, 1995). L'assimilation de NH_4^+ dans les cellules de la feuille se produit principalement *via* le cycle de la glutamine synthétase (GS) et de la glutamate synthase (GOGAT) (Leegood *et al.*, 1995). Les concentrations en ions NH_4^+ dans l'apoplasme foliaire varient en fonction de l'intensité de tous ces processus (Husted et Schjoerring, 1996 ; Schjoerring, 1997), et les échanges stomatiques d'ammoniac entre la plante et l'atmosphère varient selon tout un ensemble de facteurs tels que leurs stades phénologiques, avec une absorption de l'ammoniac atmosphérique généralement observée en phase de croissance, et des émissions généralement observées en phase de remobilisation des assimilats des racines et des feuilles vers les organes reproducteurs ainsi qu'en phase de sénescence ; leur

état hydrique, qui conditionne l'ouverture des stomates et donc les transferts entre la cavité sous-stomatique et l'atmosphère ; leur état de nutrition azotée, qui conditionne la teneur en azote de la cavité sous-stomatique ; la nature des ions prélevés par les racines, les plantes absorbant prioritairement la forme ammoniacale ayant des émissions plus élevées que les plantes absorbant prioritairement la forme nitrrique.

Composés organiques volatils

Les **COVb** (composés organiques volatils biogéniques) sont synthétisés à l'intérieur des cellules des plantes selon des mécanismes étroitement associés à leur métabolisme. Malgré leur diversité structurale et fonctionnelle, tous les isoprénoïdes (comprenant les terpènes) dérivent des cinq carbones précurseurs de l'isopentényl diphosphate (IPP) et du diméthylallyl diphosphate (DMAPP), qui peuvent être interconvertis par les enzymes IPP/DMAPP isomérase (IDI). Les plantes utilisent deux voies non apparentées pour synthétiser ces unités. La voie de l'acide mévalonique (MVA) synthétise l'IPP dans le cytosol, tandis que la voie du méthylérythritol-4-phosphate (MEP) fournit à la fois l'IPP et le DMAPP dans les organites (Bouvier *et al.*, 2005 ; Rodríguez-Concepción et Boronat, 2015). Ces COVb sont donc des métabolites secondaires dont le rôle pour la plante n'est encore à ce jour pas complètement compris, même si le rôle signal en condition de stress de certains d'entre eux fait l'objet de nombreuses recherches actuellement (Maffei, 2010). Par ailleurs, une fois synthétisées, ces molécules peuvent subir de nouvelles modifications sous l'action d'autres enzymes, conduisant à un nombre considérable de composés produits au sein de la plante (figure 2.6).

Les COV non méthaniques proviennent aussi des produits résiduaux organiques (PRO). Si les émissions des composés azotés sont relativement bien documentées, les travaux sur les émissions de COV provenant des PRO sont par contre beaucoup moins nombreux. Ces travaux, qui ont essentiellement porté sur les émissions pendant les différentes étapes de compostage des déchets, ont montré que de multiples composés de natures différentes selon l'origine du déchet peuvent être émis (Brinton, 1998).

L'élevage, depuis l'excrétion en bâtiment ou au pâturage jusqu'à l'épandage au champ, en passant par le stockage, le compostage et l'épandage de PRO, est aussi une source de COV (Feilberg *et al.*, 2015 ; Houot *et al.*, 2014). Certains de ces COV, conjointement avec l'ammoniac et H₂S, sont des sources de nuisances olfactives. Parmi tous les COV, il a été estimé que l'élevage constitue la source principale d'amines aliphatiques dans l'atmosphère, la triméthylamine (TMA) étant le principal composé émis. L'interaction entre les matières fécales et l'urine dans les systèmes de production animale constitue la principale source des émissions de TMA agricole. L'urine excrétée contient de grandes quantités d'urée et de TMA-N-oxyde, qui sont transformées en NH₃ et TMA, respectivement, par des processus enzymatiques fournis par des microbes présents dans les fèces (Sintermann *et al.*, 2014). Des mesures dans des installations porcines ont montré une grande diversité de COV, avec plus de 300 composés identifiés dans l'air et dans les étangs d'épuration (Schiffman *et al.*, 2001). Parmi les principales classes de COV identifiées, on peut noter des acides, des alcools, des aldéhydes, des amides, des amines ou des composés aromatiques.

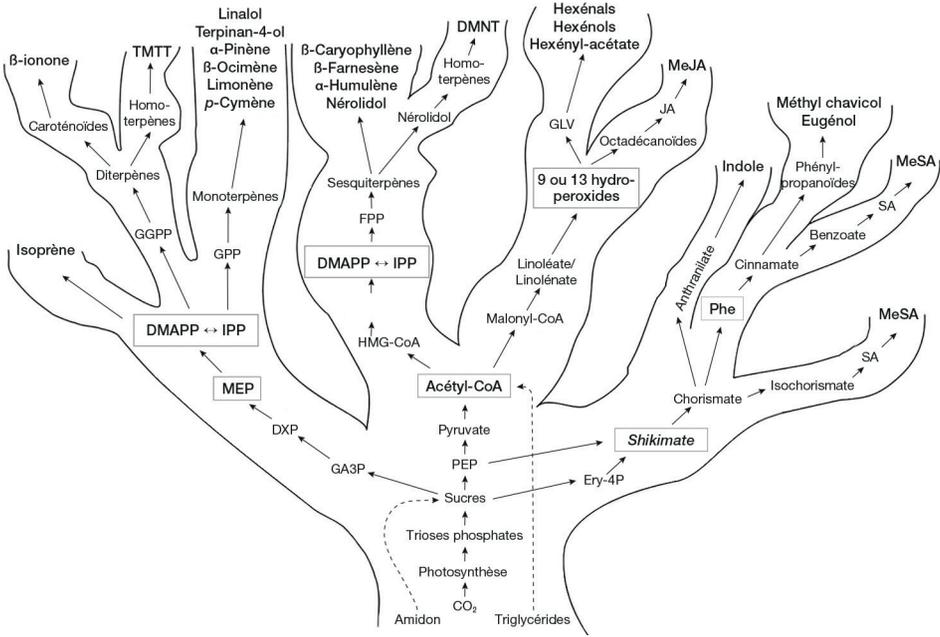


Figure 2.6. Illustration de la multitude et de la complexité des émissions de COV par les plantes. Différentes voies biochimiques sont impliquées (d'après Maffei, 2010) (sous licence Creative Commons 4.0).

DMAPP : diméthylallyl-pyrophosphate ; DMNT : 4,8-diméthyl-1,3,7-nonatriène ; DXP : déoxyxylulose-5-phosphate ; Ery4P : érythrose-4-phosphate ; FPP : farnésyl-pyrophosphate ; GA3P : glycaldéhyde-3-phosphate ; GGPP : géranyl-géranyl-pyrophosphate ; GPP : géranyl-pyrophosphate ; IPP : isopentényl-pyrophosphate ; JA : acide jasmonique ; MEP : 2-C-méthyl-D-érythritol 4-phosphate ; MeJA : jasmonate de méthyle ; MeSA : salicylate de méthyle ; TMTT : 4,8,12-triméthyletridéca-1,3,7,11-tétraène ; MVA : acide mévalonique ; PEP : acide phosphoénolpyruvique ; SA : acide salicylique ; HMG-CoA : 3-hydroxy-3-méthyl-glutaryl-coenzyme A ; Phe : phénylalanine.

Les micro-organismes du sol sont également des acteurs importants dans la production de COV, soit en dégradant la matière organique du sol, soit en réponse à des *stimuli* dans des processus de communication avec d'autres organismes dans leur environnement. Ainsi, leur production dépend de la quantité et de la qualité de la matière organique présente dans le sol, mais également des paramètres biotiques ou abiotiques (par exemple pH, humidité du sol, température, présence des PRO) (Abis *et al.*, 2018 ; Potard *et al.*, 2017).

Quant au **méthane** (CH₄), son émission résulte de deux réactions microbiologiques antagonistes et corrélées, la méthanogenèse et la méthanotrophie. La méthanogenèse est la production brute de méthane (et de dioxyde de carbone, CO₂) dans un sol par les micro-organismes utilisant des molécules organiques pour s'approvisionner en énergie, par fermentation méthanique en milieu anaérobie strict, c'est-à-dire par minéralisation complète de la matière organique présente. Quatre populations microbiennes spécialisées dégradent des molécules organiques complexes en composés simples (selon une réaction du type C₆H₁₂O₆ → 3 CO₂ + 3 CH₄). Les sols méthanogènes sont typiquement les sols inondés comme les rizières, les zones

marécageuses, les sols d'estuaires, les mangroves tropicales, mais aussi les décharges et les zones compactées des sols exondés. À l'inverse, la méthanotrophie est la consommation brute ou oxydation de méthane par les bactéries méthanotrophes conduisant à la production de CO_2 et H_2O . Il existe deux formes d'oxydation du CH_4 dans les sols : la première, dite « de forte affinité », a lieu à des concentrations en CH_4 voisines de celles de l'atmosphère et pour des sols contenant peu de NH_4^+ . Elle est apparemment ubiquiste dans les sols aérobies, ce qui explique pourquoi les sols cultivés exondés sont des puits naturels du CH_4 atmosphérique hors période de fertilisation. La seconde, dite « de faible affinité », a lieu à des concentrations en CH_4 plus élevées. Elle est le propre des bactéries méthanotrophes présentes dans les sols dont le pH est supérieur à 4,4 et qui utilisent le CH_4 comme seule source de C et d'énergie. La disponibilité en O_2 est le facteur limitant leur activité. On retrouve les micro-organismes méthanogènes et méthanotrophes dans tous les sols, garantissant ainsi la coexistence des deux réactions lorsqu'il y a simultanément des zones anoxiques et des zones bien oxygénées dans un même sol. Les situations favorisant l'émission de CH_4 par les sols agricoles sont principalement la submersion et l'utilisation d'engrais organiques ou de résidus de cultures, fournissant ainsi un substrat carboné pour les bactéries méthanogènes (Thangarajan *et al.*, 2013). Enfin, la température a une incidence sur l'activité microbienne, qui est maximale entre 37 °C et 48 °C, engendrant les émissions les plus fortes.

Produits phytopharmaceutiques

Pour ce qui est des xénobiotiques tels que les matières actives des PPP présentes à la surface de feuilles traitées, leur volatilisation dépend de la quantité de composés disponible à la surface qui évolue selon cette même volatilisation, mais aussi des processus de pénétration (adsorption puis pénétration), de photodégradation, de lessivage par la pluie. Concernant la pénétration, après avoir diffusé à travers la cuticule, les composés doivent franchir la paroi cellulaire vers le cytoplasme qui est un compartiment aqueux. Par conséquent, l'efficacité de la pénétration cellulaire dépend de la solubilité du composé dans l'eau. Cependant, les co-formulants associés à la matière active peuvent en modifier grandement le comportement : certains, en assurant un meilleur étalement de la solution à la surface des feuilles par abaissement des tensions interfaciales, facilitent leur pénétration et/ou leur adsorption en produisant une couche mince à l'interface à grande surface, favorisant ainsi leur action. L'étude de l'effet des adjuvants organo-silicones de l'acifluorène et de la bentazone dans les feuilles d'abutilon a montré que la pénétration du produit formulé est de 88 % sur une durée de 15 minutes, alors que celle du produit pur est de moins de 5 %. L'étude expérimentale en laboratoire de Lichiheb *et al.* (2015) a permis de retrouver la dépendance de la pénétration à la solubilité dans l'eau, et de noter l'effet des co-formulants sur les processus d'adsorption et de pénétration. Une fois à l'intérieur des cellules foliaires, la fraction de composés qui a pénétré peut se répartir vers les différents compartiments de la plante.

Des observations permettent d'estimer des temps de demi-vie des composés dans les plantes qui dépendent des espèces végétales, de leur stade de développement et des propriétés physico-chimiques des composés (pK_a et pH du compartiment de la plante concerné). Bromilow et Chamberlain (1991) ont proposé un diagramme simplifié indiquant les combinaisons $\text{pK}_a/\log K_{ow}$ pour décrire les différents types de transport

des pesticides non ionisés et des acides faibles à l'intérieur de la plante. Ainsi, les composés fortement lipophiles ($\log K_{ow} > 4$) apparaissent comme non systémiques, ceux avec un $\log K_{ow}$ compris entre $-0,5$ et 4 circuleraient préférentiellement dans le xylème, et les composés non ionisés ayant un $\log K_{ow} < 0$ et un $pKa > 6$ (acides faibles) circuleraient aussi bien dans le xylème que dans le phloème. Cependant, à l'heure actuelle, malgré l'existence d'une multitude d'études permettant d'évaluer le devenir des PPP dans la plante, nos connaissances restent fragmentaires du fait du manque d'analyse des différents processus impliqués et de leurs interactions.

Nous pouvons également citer des processus puits de pesticides pour le sol tels que leur minéralisation ou leur absorption racinaire.

Processus physiques

La concentration en phase gazeuse disponible à la surface pour les transferts vers l'atmosphère dépend également de processus physiques de transfert au sein du compartiment sol ou au sein du couvert.

Dans le sol, les transferts de composés se font majoritairement :

- *en phase aqueuse* par convection et par dispersion hydrodynamique : la convection implique un flux proportionnel à la vitesse d'écoulement du fluide multipliée par la concentration de la phase aqueuse, la dispersion hydrodynamique est le résultat de la combinaison de la diffusion moléculaire (loi de Fick) dans la phase liquide en déplacement et de la variation spatiale de la vitesse de déplacement de l'eau dans l'espace poral. Cette dispersion implique un flux proportionnel au gradient de concentration. Le sol est un milieu poreux dont l'espace poral est complexe, constitué de pores aux dimensions et aux formes très variées (voir les références dans Calvet, 2013). Les phénomènes de transport n'ont donc pas lieu de la même façon dans tout le volume d'un sol. Un couplage direct entre les transferts hydriques et thermiques est nécessaire (voir annexe). De plus, dans les sols sujets aux transferts préférentiels, cette voie de transfert rapide est à considérer ;

- *en phase gazeuse* par diffusion moléculaire dans la phase gazeuse dans l'espace poral occupé par l'air (la convection des gaz dans le sol est inexistante en raison des très petits gradients de pression) ;

- *associés à la phase solide* (minéraux, matière organique) ou à des organismes vivants : un déplacement de la phase solide servant de support d'adsorption ou *via* les déplacements des vers de terre. Il peut également y avoir un déplacement de composés adsorbés sur des particules de sol, soit par infiltration en cas d'apport en conditions très sèches suivi d'une précipitation, soit lors de pratiques culturales impliquant un mélange du sol.

Dans la plante, il peut également y avoir des processus de transport de composés. Ils ont été présentés avec les processus biologiques, car ils sont fortement liés au fonctionnement physiologique de la plante.

Dans le cas du méthane, les échanges sol-atmosphère dépendent des conditions de transfert entre la zone de production et l'atmosphère, ou entre l'atmosphère et la zone de consommation. Le transfert du sol vers l'atmosphère s'opère par diffusion : ainsi, le méthane produit dans une zone anaérobie peut être consommé lors de son transfert vers l'atmosphère s'il traverse une zone aérobie. Dans le cas des sols

inondés, il s'opère aussi sous forme de bulles ou principalement par le parenchyme des plantes aquatiques. Une autre voie de transfert est la plante elle-même, qui fait office de « cheminée » pour le méthane produit dans le sol ; cet artefact avait conduit à conclure que les plantes étaient elles-mêmes des sources de méthane (Keppler *et al.*, 2006), ce qui n'est finalement pas le cas (Nisbet *et al.*, 2009).

Les émissions vers l'atmosphère résultant des concentrations surfaciques des composés reposent ensuite sur des processus physiques de transport diffusifs et convectifs détaillés dans la section « Transports atmosphériques ».

Ainsi, de manière générale, la dynamique des émissions dépend fortement du forçage climatique, et en premier lieu du rayonnement incident, qui, en réchauffant la surface, augmente les échanges convectifs et la pression de vapeur saturante du composé au voisinage de la surface et intensifie l'évaporation de l'eau, ce qui concentrera d'autant plus le composé en surface du sol. En second lieu, la vitesse du vent facilite le transport turbulent du composé (voir section « Transports atmosphériques ») par le cisaillement de l'écoulement de l'air en lien avec la rugosité de la surface. Enfin, les précipitations favorisent dans la plupart des cas l'infiltration dans le sol et ainsi diminuent la concentration de polluants en surface. À noter cependant que les précipitations de faible intensité, ne générant pas d'infiltration, réhumectent néanmoins le sol, ce qui peut relancer la volatilisation de composés sujets à l'adsorption depuis leur phase gazeuse vers la matrice du sol lorsque le sol est sec. Les flux de polluants dépendent également du gradient de concentration établi entre la surface émettrice et l'atmosphère ambiante.

Particules

Processus physiques

L'émission des particules lorsqu'elles sont primaires est aussi soumise à des processus similaires aux gaz. Compte tenu du caractère pesant de ces polluants, leur émission est plus souvent associée à des mécanismes spécifiques (effet du vent, érosion, abrasion, lessivage...). Les polluants particuliers ou aérosols sont classifiés suivant leur taille PM_x (*particulate matter*), avec x correspondant au diamètre maximum en micromètre. Les particules peuvent être solides (par exemple poussière, particule crustale) ou liquides (gouttelettes). Du fait de processus physico-chimiques dans l'atmosphère incluant la formation de particules secondaires, la distribution en taille des particules dans l'atmosphère est classiquement trimodale, ce qui correspond à trois principaux modes de formation : le premier mode, particules grossières et solides, centré entre 3 à 5 μm , correspond à des processus mécaniques ; vient un mode d'accumulation correspondant partiellement aux dépôts humides, centré entre 0,1 et 1 μm ; puis le mode de nucléation centré autour de 0,02 μm . En fonction du type de source et de l'environnement, ces trois principaux modes dans la distribution en taille des particules sont plus ou moins représentés.

Les émissions de particules primaires d'origine agricole sont liées d'une part aux activités d'élevage et d'autre part aux activités au champ (Faburé *et al.*, 2011). Concernant l'élevage, les émissions dépendent des espèces animales, de leur physiologie et

de leur âge, des caractéristiques de l'alimentation et du mode de gestion des déjections et de la transhumance. En bâtiment d'élevage, ces émissions dépendent de la ventilation, de la gestion de la couverture du sol (Haeussermann *et al.*, 2008), du nettoyage et des effluents et déjections. De manière générale, les conditions climatiques (en extérieur ou en intérieur) jouent un rôle important sur l'activité animale et sur les émissions.

Concernant les activités au champ, les émissions sont principalement dues (en plus des émissions liées à l'utilisation d'engins agricoles) à la préparation des sols comme le labour ; au semis (direct), incluant l'abrasion dans les semoirs des traitements de semences susceptibles de générer des poussières concentrées en PPP ; au traitement des cultures ; à la récolte ; à la gestion des résidus de précédentes récoltes ainsi qu'au brûlage des résidus de culture ; enfin aux opérations de stockage, de traitement, de séchage et de transport des récoltes.

Il en résulte que les particules émises par l'agriculture sont constituées de composés d'origine crustale essentiellement minérale et d'origine organique comme les fertilisants organiques, de matière végétale, animale, de micro-organismes et de PPP par le phénomène de dérive (Faburé *et al.*, 2011). La dérive est définie comme la fraction de liquide n'atteignant pas la cible prévue sous l'effet du vent au moment de l'application (ISO 22866, 2005). Il s'agit donc d'un transport par le vent des gouttelettes issues de la pulvérisation. Les facteurs principaux d'influence sur la dérive sont la taille des gouttes (qui dépend du type d'atomiseur ou buse, de la pression et de la physico-chimie de la bouillie), la vitesse et la direction de l'assistance d'air ainsi que les conditions atmosphériques (notamment vitesse et direction du vent et stabilité atmosphérique).

Par ailleurs, la mise en suspension, la saltation (rebondissement des particules sur le sol) et le glissement des particules de sol (Pye, 1987) sous l'action du vent génèrent l'émission de particules du sol vers l'atmosphère, source que l'on nomme « érosion éolienne ». À noter que la mise en suspension des particules du sol peut s'opérer sous l'action de la pluie *via* le mécanisme d'éclaboussement de gouttes de pluie qui entraîne des particules crustales. Ces processus dépendent de la structure, de l'humidité, de la rugosité du sol, de la couverture végétale (LAI, *leaf area index*), de la vitesse du vent et enfin des précipitations.

Processus biologiques

Les bio-aérosols (bactéries, spores, grains de pollen, graines) sont presque toujours présents dans l'air. Ces particules se développent sur/par les plantes parfois dans des structures biologiques relativement complexes et spécialisées (par exemple anthère pour le pollen, structures sporifères). Il en existe de toutes sortes et qui sont spécifiques de la plante ou du type de spore fongique. Ainsi, la libération des bio-aérosols dépend de ces structures. Les mécanismes de déhiscence de ces organes végétaux sont divers. Ils s'effectuent de manière soit active, où les bio-aérosols sont littéralement propulsés dans l'atmosphère par des mécanismes de soufflet, soit mixte, où l'action de l'eau superficielle permet la dissolution du mucilage contenant les spores par exemple, soit passive, auquel cas l'action de facteurs extérieurs à la plante est requise pour la mise en suspension de ces particules. Parmi ces facteurs, on compte

principalement le vent (libération anémophile), qui agit sur les surfaces productrices de bio-aérosols avec certains mécanismes partagés avec la physique de l'érosion des sols, la pluie qui, lors des impacts des gouttes sur les surfaces, propulse les spores et les bactéries dans les gouttelettes d'éclaboussement (Huber *et al.*, 2006), et la mise en mouvement de la plante par l'action du vent, de la pluie, des engins agricoles ou des animaux.

Ainsi, la nature et la concentration des bio-aérosols sont éminemment variables, en fonction de l'heure du jour, des conditions météorologiques et de la saison, du lieu géographique et de la proximité des sources (selon les espèces, la distance maximale de dispersion varie souvent de 10 à 500 m, avec un mode voisin de 50 m pour de nombreuses plantes arbustives ou graminées) (Nathan *et al.*, 2002). Les caractéristiques propres des particules biotiques (taille, masse, forme, teneur en eau, viabilité) jouent un rôle majeur dans leur comportement aérodynamique, leur aptitude à la dispersion et leur survie, qui conditionnent leur faculté d'invasion et/ou d'infection (Aylor, 2017).

► Transferts atmosphériques

L'atmosphère se décompose en plusieurs strates ou couches plus ou moins étanches entre elles qui se différencient par un gradient vertical croissant ou décroissant de température de l'air. Dans la troposphère, le gradient thermique est globalement négatif avec l'altitude, avec la survenue ponctuelle d'inversions proches de la surface. Ces conditions de stabilité ou d'instabilité atmosphérique ont un fort impact, d'une part, sur la dispersion atmosphérique des polluants émis à la surface et, d'autre part, sur l'épaisseur de ces strates atmosphériques (facteur particulièrement important pour déterminer la concentration des polluants dans l'atmosphère). Pour des conditions météorologiques particulières (par exemple déficit radiatif nocturne des surfaces, voir annexe), le gradient de température peut s'inverser, conduisant à une forte réduction de l'épaisseur de la strate la plus proche du sol et entraînant alors une forte accumulation de polluants. Par ailleurs, ces strates sont caractérisées par des processus de transfert différents et plus ou moins bien découplés, dont nous allons ici donner quelques éléments en distinguant les transferts verticaux des transferts horizontaux. Pour plus d'information sur la description du compartiment atmosphérique, se référer à Triplet et Roche (1996) ou Delmas *et al.* (2005).

Transferts verticaux

Tous les processus présentés jusqu'ici conditionnent le niveau de concentration du composé en phase gazeuse en surface (du sol ou de la feuille), forme pour son transfert vers l'atmosphère. Ce transfert a lieu dans le compartiment atmosphérique, compartiment caractérisé par un fluide visqueux et compressible, « l'air » en mouvement au-dessus de la surface terrestre. En mécanique des fluides, on utilise le concept de couche limite, zone dans laquelle l'écoulement est influencé par la présence d'un obstacle qui, dans le cas de l'atmosphère, est constitué par la surface terrestre et caractérisé par un gradient de vitesse du vent qui tend vers

zéro à la surface des objets (pour plus de précisions, voir Seinfeld et Pandis, 2016 ; Stull, 1988). On distingue alors la couche limite planétaire (CLP), ou couche limite atmosphérique (CLA), de 1 à 2 km d'épaisseur, et la couche limite de surface (CLS), de quelques mètres à quelques dizaines de mètres, dans laquelle les flux sont conservatifs et stationnaires, les profils d'intensité du vent, de température et de concentration en composé sont logarithmiques, si les conditions sont homogènes horizontalement. L'épaisseur de la CLS dépend de la dimension de la surface que l'on peut considérer comme homogène. Au sein de la CLS, le transport est de nature convective, laminaire ou turbulente. Ont alors lieu :

- un transport diffusif majoritaire à la toute proximité des éléments constituant la surface, où la vitesse du vent est faible et sur laquelle l'écoulement de l'air est laminaire. Ce transport est engendré par la différence de concentration en composé dans l'air entre la surface et l'atmosphère juste au-dessus de cette couche. Ainsi, il peut être décrit par une équation de diffusion classique dépendant du gradient de concentration, du coefficient de diffusion moléculaire du composé dans l'air et de l'épaisseur de cette fine couche ;

- un transport convectif par les mouvements turbulents depuis la surface au-dessus de cette fine couche laminaire vers la CLP. La convection peut être soit libre, c'est-à-dire causée par le gradient thermique entre la surface et l'atmosphère ; soit forcée, causée par le gradient de pression dans la masse d'air entre les zones de haute et de basse pression (qui donne naissance à l'écoulement, au vent) ; soit mixte, par une combinaison des deux régimes précédents (ce qui est le cas général). Le flux vertical de composé (F_z) peut alors s'exprimer en fonction des fluctuations w' de la vitesse verticale du vent et des fluctuations c' de la concentration dans l'air du composé avec la relation suivante :

$$F_z = \rho \overline{w'c'} \quad (2.1)$$

avec ρ la densité de l'air. Une analogie entre les mouvements turbulents et la diffusion moléculaire permet de calculer le flux en fonction du gradient vertical de concentration et d'une diffusivité turbulente verticale K_z ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$), en intégrant ou non les conditions de stabilité/instabilité locale. Par analogie avec les schémas résistifs électriques, le flux de matière à une hauteur donnée peut s'exprimer comme la différence de concentrations entre cette hauteur et la surface divisée par la résistance équivalente aux transferts dans chaque couche atmosphérique située en dessous (à noter que l'on parle parfois de conductance, qui représente l'inverse d'une résistance).

Dans le cas d'un couvert végétal, il convient de prendre en compte dans chaque strate du couvert les flux d'échanges avec le couvert dans une équation de bilan de masse (Tuzet *et al.*, 1995). Par ailleurs, dans le cas d'une variation horizontale des conditions de surfaces (par exemple hauteur de couvert, alternance de zones irriguées et non irriguées, succession de parcelles avec alternance de parcelles et de bâtiments d'élevage présentant des différences de niveau de source et donc de concentration en surface pour un composé donné), une advection locale peut avoir lieu, c'est-à-dire un transport horizontal par le vent moyen. Dans ce cas, le flux n'est plus conservatif. Ainsi, à l'intérieur de la CLS pour une zone d'étude donnée, sont définies autant de couches limites internes que de surfaces de caractéristiques différentes.

Transferts horizontaux

Comme décrit précédemment, les composés présents dans l'atmosphère sont diffusés verticalement, tout en étant à la fois transportés par l'écoulement d'air moyen (on parle d'advection horizontale) et diffusés par les mouvements fluctuants de l'air (diffusion horizontale).

L'advection est le flux de matière lié au mouvement moyen de l'air. Il s'exprime comme le produit du vecteur vent moyen \bar{V} par la concentration moyenne du composé \bar{C} et est donc dirigé dans la direction du vent moyen : $\bar{F} = \rho \bar{V} \cdot \bar{C}$. La diffusion horizontale est liée aux fluctuations des composantes horizontales transverses v' et à l'axe de la vitesse de l'air u' , et le flux de diffusion est identique à celui défini dans le paragraphe précédent $F_{diffy} = \rho \overline{v'c'}$ et $F_{diffx} = \rho \overline{u'c'}$. La diffusion horizontale selon le sens du vent (F_{diffx}) est souvent négligeable devant l'advection. Elle devient importante lorsque la vitesse du vent est très faible, ce qui advient en conditions de stratification stable, la nuit par exemple, ou dans des zones polaires (Haupt *et al.*, 2009 ; Luhar et Hurley, 2012). La diffusion latérale est quant à elle importante dans toutes les conditions de vent, surtout à l'échelle locale.

Le transport horizontal est un phénomène essentiel à la compréhension du transport atmosphérique qui intervient à deux échelles :

- à l'échelle régionale, les mouvements de masses d'air sont la cause des transports des composés et sont déterminés au premier ordre par la position et l'intensité des anticyclones (hautes pressions) et dépressions (basses pressions), par la force de Coriolis et la rugosité de la surface. À cette échelle, le transport est donc déterminé par les champs de vent moyens. Les variations de l'état de surface sur des distances inférieures à la dizaine de kilomètres n'influent pas fortement sur le transport régional ;
- à l'échelle du paysage (< 5 km, échelle sous maille des modèles régionaux), l'advection et la diffusion dépendent fortement de l'hétérogénéité des surfaces en termes de dynamique (état de rugosité, haies, zones boisées, zones urbaines), mais aussi en termes énergétiques (surface aquatique plus froide et humide, zones construites plus chaudes et sèches, sols nus, forêts). En effet, ces éléments de surface induisent des variations locales des champs de vent et donc d'advection, mais aussi des variations des intensités de turbulence et donc de diffusion horizontale (Dupont *et al.*, 2006). En particulier, les zones vallonnées génèrent des flux advectifs importants et modifient les échanges dans la couche de surface (Burns *et al.*, 2011). Le chapitre 5 présente les différentes approches de modélisation mises en œuvre pour décrire ces transferts horizontaux.

► Chimie atmosphérique

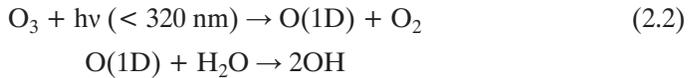
Les composés chimiques émis par les sols agricoles ou par les activités afférentes sont exposés durant leur vie à divers oxydants atmosphériques. Les principaux processus modifiant la composition chimique de l'atmosphère sont la **photolyse directe** (par irradiation solaire), les **réactions avec le radical hydroxyle** (OH), l'**ozone** (O₃) et le

radical nitrate (NO_3). Leur importance dépend principalement de l'activité solaire et de la concentration en oxydant observée, mais aussi de la température ambiante et de l'humidité relative de l'atmosphère.

Les réactions photochimiques induites par le rayonnement solaire jouent un rôle central en chimie de l'atmosphère, puisqu'elles représentent la principale source de radicaux dans la troposphère et permettent ainsi d'initier de nombreuses transformations en phases gazeuse et particulaire. Ne sont pas détaillées les réactions hétérogènes ou multiphasiques, qui auraient nécessité un développement approfondi dépassant le cadre de cet ouvrage.

Oxydants atmosphériques

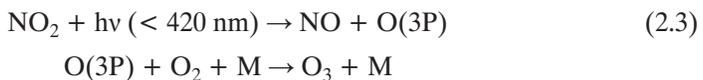
Le radical hydroxyle, appelé parfois le « nettoyeur de l'atmosphère », est le principal oxydant dans la troposphère et est responsable de la dégradation de la plupart des polluants atmosphériques. Il provient principalement de la photolyse de l'ozone (Finlayson-Pitts et Pitts, 1997) selon :



où $h\nu (< 320 \text{ nm})$: photolyse à des longueurs d'onde inférieures à 320 nm, et $\text{O}(1\text{D})$: un atome d'oxygène dans un état excité.

D'autres sources de radicaux OH existent, en particulier les photolyses de l'acide nitreux (HONO), du peroxyde d'hydrogène (H_2O_2) ou indirectement du formaldéhyde (CH_2O). L'oxydation des composés organiques volatils (COV) est également susceptible de contribuer à la formation de radicaux hydroxyles (Delmas *et al.*, 2005).

La voie de formation de l'ozone dans la troposphère est la photolyse du dioxyde d'azote (NO_2) (Finlayson-Pitts et Pitts, 1997) selon :

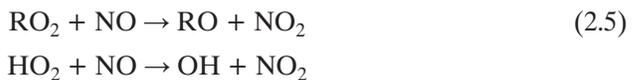


$\text{O}(3\text{P})$: un atome d'oxygène dans son état fondamental, et M : N_2 , O_2 ou toute molécule capable d'absorber l'excès d'énergie vibrationnelle et de stabiliser la molécule d'ozone ainsi formée.

La réaction entre le monoxyde d'azote et l'ozone régénère par la suite NO_2 :



Il existe ainsi un équilibre photostationnaire entre $\text{NO}_2/\text{NO}/\text{O}_3$, régi par le cycle de Leighton. Une autre voie réactionnelle, faisant intervenir des radicaux issus de l'oxydation des COV, comme les radicaux alkoxydes ou peroxydes RO_2 et HO_2 , perturbe ce cycle (Finlayson-Pitts et Pitts, 1997). Un processus en chaîne s'ensuit qui, selon les concentrations en COV et en oxydes d'azote et en présence de radiation solaire, aboutit à une production nette d'ozone dans la troposphère.



Contrairement aux deux précédents oxydants, majoritairement diurnes, le radical nitrate est présent à des concentrations relativement élevées la nuit. Formé durant la nuit par l'oxydation de NO_2 par O_3 , le radical nitrate se photolyse très rapidement en journée sous l'action du rayonnement solaire (Atkinson et Arey, 2003). Ces radicaux sont responsables de nombreuses voies de réactions des COV la nuit.

La connaissance des voies de réactions des différents composés en phase gazeuse avec ces oxydants, à l'origine de composés semi-volatils susceptibles de condenser, est essentielle dans l'approche des processus de formation et d'évolution de la phase particulaire, qu'elle soit d'origine primaire ou secondaire. Ainsi, parallèlement aux réactions en phase gazeuse, d'autres processus réactifs peuvent prendre place, selon le type de composé considéré et les paramètres physico-chimiques décrivant les conditions atmosphériques. Les processus multiphasiques, qui concernent les interfaces gaz-surface des particules ou le milieu aqueux, représentent potentiellement des puits et/ou des sources considérables d'espèces chimiques actives. La réactivité hétérogène peut engendrer des modifications physico-chimiques profondes du milieu particulaire. La complexité des mécanismes impliqués fait l'objet de nombreuses études, en laboratoire ou sur le terrain.

Réactivité atmosphérique

Une fois émis dans l'atmosphère, les polluants, présents à la fois en phases gazeuse et particulaire, sont susceptibles de subir toutes sortes de processus physico-chimiques tels que des réactions d'oxydation ou de photodégradation durant leur transport atmosphérique. L'ensemble de ces processus constitue l'objet même de la chimie atmosphérique, dont la finalité majeure est d'établir les liens entre présence et devenir de ces composés dans l'atmosphère. L'ammoniac est un composé basique qui interagit avec les composés acides présents dans l'atmosphère, par exemple l'acide sulfurique (H_2SO_4), pour former deux sels : le bisulfate d'ammonium (équation 2.6) et ensuite le sulfate d'ammonium (équation 2.7) (Seinfeld et Pandis, 2016).



Si le premier sel subsiste, l'aérosol est dit « acide », et la réaction avec une molécule d'ammoniac supplémentaire fournit un aérosol neutralisé. L'ammoniac en excès peut ensuite réagir avec l'acide nitrique (HNO_3) pour former le nitrate d'ammonium (équation 2.8). Ces réactions impliquent donc des changements de phase, avec la formation de sels solides (s) ou en phase liquide très concentrée (l) pour des humidités relatives dépassant le point de déliquescence. Ces réactions sont réversibles, surtout pour le nitrate d'ammonium, dont la pression saturante baisse avec la température et qui est donc plus stable en hiver.



Les particules fines ainsi formées contribuent aux épisodes de pollution aux particules. Par ailleurs, les particules fines agissent en tant que noyaux de condensation et impactent ainsi la microphysique des nuages et le bilan radiatif de l'atmosphère. Elles affectent également la visibilité (Seinfeld et Pandis, 2016).

L'oxyde d'azote le plus abondant dans l'atmosphère est le protoxyde d'azote (N_2O), mais les plus réactifs dans la troposphère sont le monoxyde d'azote (NO) et le dioxyde d'azote (NO_2). Ces composés, les NO_x , sont produits lors de processus de combustion, mais aussi par l'activité biologique dans les sols (voir section « Émissions »). Ils participent de façon importante à l'oxydation des composés organiques volatils. Il est aujourd'hui admis que l'agriculture et la forêt émettent, à l'échelle de la France, 50 % des COV. La structure chimique des COV dans l'atmosphère est le premier paramètre influant sur leur réactivité vis-à-vis des oxydants atmosphériques. Les alcanes (hydrocarbures saturés comme le méthane) réagissent principalement avec le radical OH. Les alcènes (comme l'isoprène) peuvent aussi réagir avec OH, mais également avec NO_3 pendant la nuit. Les monoterpènes, mais surtout les sesquiterpènes et diterpènes, réagissent également rapidement avec l'ozone. L'oxydation des COV conduit à la formation de composés fonctionnalisés dont certains ont une plus faible volatilité et peuvent ainsi condenser, conduisant à la formation d'aérosols organiques secondaires (AOS). La nucléation de particules à partir des précurseurs gazeux est le mécanisme principal de la formation des nouvelles particules dans l'atmosphère (Kroll et Seinfeld, 2008). La première étape de formation de l'AOS est l'oxydation en phase gazeuse de composés volatils et mène à des composés partiellement oxydés avec un rapport O/C élevé, allant parfois jusqu'à un et au-delà. Ces processus pourraient en partie expliquer le taux important de ces réactions d'oxydation dans l'atmosphère (Atkinson et Arey, 2003 ; Hallquist *et al.*, 2009 ; Kroll et Seinfeld, 2008), illustrées sur la figure 2.7.

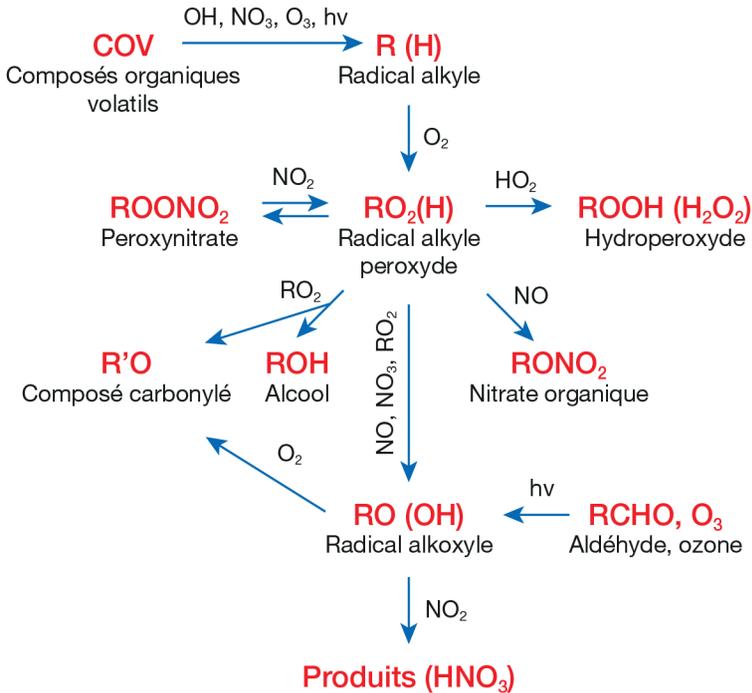


Figure 2.7. Mécanisme simplifié d'oxydation atmosphérique d'un COV et formation des radicaux atmosphériques (d'après Seinfeld et Pandis, 2016).

Quant à l'initiation par réaction d'addition, ou arrachement par les différents oxydants atmosphériques, l'oxydation par les radicaux OH et NO₃ opère selon deux voies en compétition : l'arrachement d'un atome hydrogène ou l'addition sur une double liaison, tandis que l'ozone initie principalement sa réaction par addition sur une double liaison (Kroll et Seinfeld, 2008). L'ensemble des réactions d'initiation radicalaire conduisent à la formation de radicaux peroxydes (RO₂).

Les radicaux peroxydes jouent un rôle central dans la formation de composés de plus faible volatilité. Ils évoluent principalement vers la formation de radicaux alkoxydes (RO) par réaction avec NO, NO₃ ou avec un autre radical RO₂. Les radicaux RO et RO₂ évoluent ensuite vers des produits d'oxydation de faible volatilité, qui se partagent entre la phase gazeuse et la phase particulaire et contribuent ainsi à la formation et à la croissance d'AOS, tels que des peroxy-nitrates, des nitrates organiques, des alcools, des hydroperoxydes ou encore des composés carbonylés, avec de multiples groupes fonctionnels comme les groupes hydroxyles et hydroperoxydes (figure 2.7).

Il existe plusieurs types d'évolution possible pour les radicaux alkoxydes (Atkinson et Arey, 2003 ; Kroll et Seinfeld, 2008). Leur dissociation peut conduire, par exemple, à la formation de composés carbonylés. La réaction des radicaux RO avec l'oxygène mène à la formation d'un carbonyle et d'un radical hydroperoxyde (Kroll et Seinfeld, 2008). La structure du composé initial considéré influence donc directement les différentes voies d'évolution du radical RO (figure 2.7) (Atkinson et Arey, 2003). La dissociation entraîne la formation de composés de plus faible poids moléculaire et, de ce fait, cette réaction est considérée comme négligeable dans la formation d'AOS. Au contraire, l'isomérisation, favorisée pour des composés à longues chaînes carbonées ou cycliques, conduit à la formation de composés polyfonctionnalisés. Lorsque les processus d'isomérisation et de dissociation ne sont pas envisageables, la réaction avec l'oxygène est prépondérante et peut conduire à la formation de produits semi-volatils.

L'ozonolyse est initiée par addition d'une molécule d'ozone sur une double liaison pour évoluer rapidement vers des composés carbonylés et un bi-radical de Criegee. Ce dernier peut se stabiliser par réaction avec une molécule d'eau ou d'autres composés oxygénés, conduisant à des composés de type α -hydroxyhydroperoxyde (Kroll et Seinfeld, 2008). Toutefois, le bi-radical de Criegee peut se décomposer spontanément et mener à la production du radical OH, surtout pendant la nuit (Paulson *et al.*, 1999). Ces bi-radicaux jouent un rôle important dans la capacité oxydante de l'atmosphère et la formation d'aérosols dans la troposphère. Leur réactivité élevée vis-à-vis de nombreuses espèces gazeuses clés (par exemple vapeur d'eau, SO₂, NO₂ et acides carboxyliques) implique un rôle encore plus important que prévu dans la chimie atmosphérique (Khan *et al.*, 2018).

Les produits d'oxydation de première génération possèdent des pressions de vapeur saturante qui peuvent varier de plusieurs ordres de grandeur et sont donc susceptibles d'être présents à la fois en phase gazeuse et particulaire. Les composés organiques oxydés les plus volatils peuvent réagir à leur tour et contribuer à la formation d'AOS. Ng *et al.* (2006) ont montré que la masse d'AOS continue de croître, tandis que la totalité des précurseurs gazeux a réagi, et ceci en particulier pour les précurseurs qui possèdent plusieurs sites réactifs, comme par exemple le limonène, qui possède deux

doubles liaisons. Cette observation met en évidence que la réactivité des produits d'oxydation participe également à l'augmentation de la masse d'AOS. Cependant, il est maintenant reconnu que la réactivité peut être multiphasique, et de nombreux autres processus d'évolution de la phase particulaire peuvent avoir lieu.

Les substances actives des produits phytosanitaires de types herbicides, fongicides, etc., sont dégradées selon des processus de photolyse directe, dépendant de leur capacité à absorber directement le rayonnement solaire, et par réaction avec les radicaux OH, NO₃, voire O₃. Ces réactions peuvent avoir lieu dans les trois phases atmosphériques et aboutissent à l'apparition de produits de dégradation qui peuvent s'accompagner de la formation d'aérosols (Borrás *et al.*, 2015), information capitale pour la compréhension des effets toxiques dans le cas spécifique de ces produits (Mellouki *et al.*, 2007 ; Pflieger *et al.*, 2009). Il semblerait que lorsque les composés sont adsorbés ou dissous sur ou dans les aérosols, leur dégradation soit modifiée (Socorro *et al.*, 2016). L'adsorption peut ralentir la dégradation oxydative ou photochimique, bien qu'elle soit accompagnée d'une augmentation de concentration à l'interface, tandis que des mécanismes ioniques comme l'hydrolyse sur ou dans une gouttelette peuvent mener à une accélération de la dégradation d'une molécule adsorbée. Le substrat sur lequel une molécule est adsorbée représente une voie compétitive, souvent réactive, pour la molécule en question. Les propriétés physico-chimiques de la molécule adsorbée et du substrat représentant la phase particulaire sont déterminantes pour le devenir de la molécule en contrôlant la réactivité sur les aérosols (Socorro *et al.*, 2016) (chapitre 4).

Les interactions de l'aérosol lors de son transport atmosphérique se font généralement avec le dioxyde de soufre (SO₂), les oxydes d'azote et l'ammoniac. Elles affectent alors les propriétés optiques des aérosols, modifiant les composantes hydrophiles et hydrophobes des particules, impactant *in fine* de façon directe ou indirecte le climat.

De nombreux paramètres (comme la température et l'humidité relative) peuvent influencer la formation d'AOS en jouant un rôle dans les mécanismes d'oxydation des précurseurs gazeux ou ceux du transfert gaz-particules. Les oxydes d'azote, selon leur concentration, favorisent ainsi certaines réactions ou rapports de branchement (Kroll et Seinfeld, 2008). L'eau aussi permet par exemple l'activation de nouvelles voies réactionnelles telles que l'hydrolyse de certains composés fonctionnalisés. L'acidité des particules joue également un rôle primordial dans les mécanismes de formation de l'AOS, et leurs rendements sont fortement influencés en présence d'acide sulfurique (Iinuma *et al.*, 2009 ; Surratt *et al.*, 2007). Jimenez *et al.* (2009) ont montré que la composition chimique de l'AOS évolue généralement selon trois mécanismes : la fonctionnalisation, la fragmentation et l'oligomérisation. La fonctionnalisation correspond à la réaction des composés organiques avec les oxydants atmosphériques. Elle consiste en l'ajout de groupements fonctionnels sur le squelette carboné du composé et conduit à la formation de produits de plus faible volatilité. La fragmentation correspond à la scission d'une liaison C-C, entraînant la formation de deux nouveaux composés organiques. Généralement, ce processus conduit à la formation de composés de plus grande volatilité ne participant pas à la formation d'AOS ou à une part de re-volatilisation. Enfin, les processus d'oligomérisation sont des processus non oxydatifs qui résultent de l'addition de deux composés

(Chacon-Madrid et Donahue, 2011 ; Hallquist *et al.*, 2009 ; Kroll et Seinfeld, 2008). Ces processus conduisent très rapidement à la formation de composés de très haut poids moléculaire au sein de l'aérosol atmosphérique.

De très nombreuses incertitudes subsistent sur les différentes voies d'évolution de l'AOS et leur occurrence dans les conditions atmosphériques. Parmi les différentes réactions possibles dans les processus d'oligomérisation en phase condensée, la formation d'organosulfates a été mise en évidence lors de multiples campagnes de prélèvement sur le terrain (Surratt *et al.*, 2007).

Encadré 2.1. Illustration : cas des amines.

Les régions agricoles représentent une source importante d'amines* dans l'atmosphère. Bien que les taux d'émission d'amines provenant des sources d'élevage soient de deux à trois ordres de grandeur inférieurs à ceux de l'ammoniac, les amines en phase particulaire contribuent de manière significative à la masse de particules dans les panaches provenant de sources d'élevage. En effectuant des mesures de COV au-dessus de sols après une application de fumier, Feilberg *et al.* (2015) ont mis en évidence des émissions de composés aminés, notamment la triméthylamine, qui est source d'aérosols organiques secondaires. D'autres mesures de terrain et des expériences en laboratoire ont montré que les composés aminés constituaient une part importante de la masse d'aérosols et jouaient un grand rôle dans la formation de nouvelles particules (Kürten *et al.*, 2018 ; Pratt et Prather, 2009). Les processus chimiques intervenant dans la formation des particules à partir des amines dépendent de leur classe. Par exemple, Murphy *et al.* (2007) ont montré que les amines tertiaires présentaient des rendements plus élevés en aérosols que les amines primaires ou secondaires.

Contrairement aux amines primaires et secondaires, les amines tertiaires forment des quantités significatives d'aérosols organiques secondaires. Bien qu'on ait observé une faible formation d'aérosols suite à l'ozonolyse d'amines primaires, il est démontré que des rendements massiques élevés d'AOS sont observés par réaction des amines (quelle que soit leur classe) avec le radical nitrate (Silva *et al.*, 2008) présent uniquement la nuit. On en déduit que les émissions d'amines tertiaires pourraient être une source nocturne importante d'AOS.

Une fois formées, les particules issues de l'ensemble des processus décrits précédemment sont rapidement intégrées dans des gouttelettes d'eau et servent de support facilitant la condensation et donc la formation de gouttelettes de nuages. Ces particules sont ainsi appelées des « noyaux de condensation de nuages » (CCN). Toutes les particules atmosphériques ne sont pas susceptibles de jouer le rôle de CCN, normalement celles de taille entre 50 et 150 nm. Les paramètres agissant sur l'activation des noyaux de condensation de nuages sont liés à leur taille, leur composition chimique, leur solubilité, leur hygroscopicité et la sursaturation ambiante. Dans les conditions les plus favorables, les particules concernées ont un effet indirect important sur le changement climatique.

* Les amines sont des composés organiques azotés dérivant de l'ammoniac par remplacement d'un, de deux ou de trois atomes d'hydrogène par autant de groupes hydrocarbonés. Il existe ainsi trois classes d'amines selon le degré de substitution de l'azote : les amines primaires, secondaires et tertiaires. La triméthylamine est par exemple une amine tertiaire, car trois groupements méthyle sont liés à l'azote.

» Dépôts

Bien que qualifiés de « dépôts », les processus concernés sont dans la majorité des cas des échanges bidirectionnels (cas de l'ammoniac par exemple) : les surfaces de dépôts peuvent être à la fois des sources et des puits de polluants. Les dépôts peuvent s'exprimer comme étant le flux vertical de composé F_z entre l'atmosphère et les surfaces :

$$F_z = w_s \Delta C \quad (2.9)$$

avec w_s la vitesse de dépôt du composé ($m \cdot s^{-1}$) et la variation de concentration verticale ΔC du polluant entre l'atmosphère et les surfaces (le signe de ΔC indiquera alors le sens du transfert). *A contrario*, certains polluants, par exemple l'ozone, se déposent exclusivement (Lamaud *et al.*, 2009 ; Stella *et al.*, 2011).

Les dépôts se décomposent en dépôts sec et humide (lessivage de l'atmosphère, précipitations, brouillard).

Dépôts secs (échanges bidirectionnels, échanges aux interfaces)

Le dépôt sec concerne le dépôt de particules solides et de gaz sans interaction avec une phase aqueuse atmosphérique. Cependant, les dépôts peuvent s'effectuer suivant différentes voies sur des surfaces sèches ou des liquides, dans lesquels

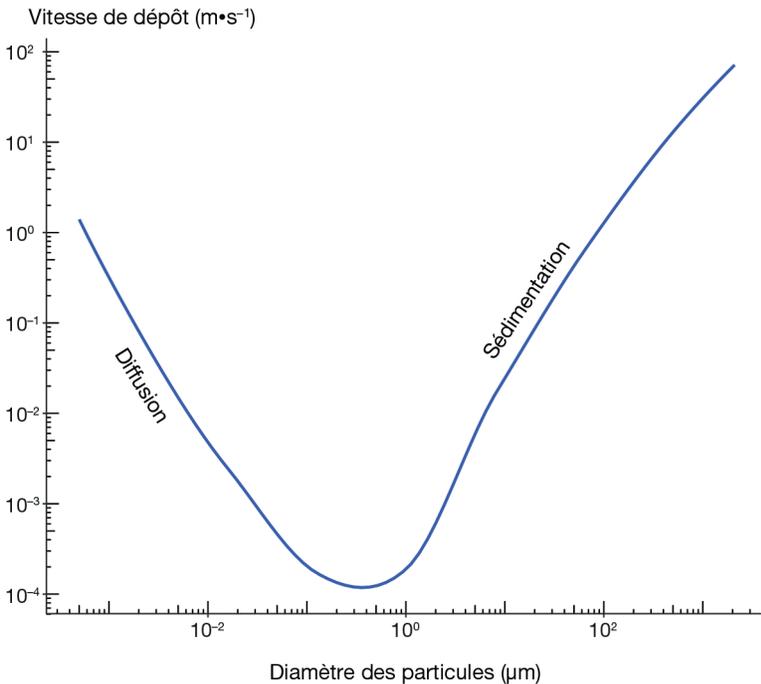


Figure 2.8. Vitesse de dépôt de composés particulaires en fonction de leur diamètre. Selon le diamètre, les mécanismes impliqués sont différents (diffusion ou sédimentation) (d'après Seinfeld et Pandis, 2016).

par exemple les équilibres acido-basiques sont à prendre en compte, comme dans le cas de l'ammoniac (figure 2.5) (Personne *et al.*, 2009 ; 2015). Les processus de dépôt sont d'une part pilotés par les mécanismes qui se déroulent dans l'atmosphère, comme les transferts turbulents et les transferts par diffusion brownienne et la sédimentation (lorsqu'il s'agit de particules pesantes) ; d'autre part, dépendent des propriétés des surfaces d'échange (température et humidité), qui modifient les échanges atmosphériques. Dans le cas spécifique des particules, les processus de transferts sont très largement pilotés par les propriétés aérodynamiques, en particulier la taille (figure 2.8) et le poids des particules. Ces dépôts dépendent surtout de l'humidité de l'air, de la température de surface de la feuille et de la texture de surface de la feuille (Flechard *et al.*, 1999 ; Van Hove *et al.*, 1989 ; Massad *et al.*, 2010a).

Dépôts humides

Les mécanismes impliqués dans les dépôts sous forme liquide sont de trois types. Une première série de mécanismes se met en jeu dans les plus hautes couches de la troposphère (Seinfeld et Pandis, 2016) : le *rainout*, correspondant au lessivage de gaz et de particules dans les processus de formation de nuages, impliquant la condensation autour de noyaux de nucléation des nuages dans un milieu saturé en eau. Le *washout* est un processus de lessivage des particules et de dissolution des gaz lors de la chute des hydrométéores (gouttes de pluie, neige). La taille des gouttes de pluie est encadrée par les processus d'évaporation pour les plus petites (0,2 mm) et de fragmentation pour les plus grosses (5 mm), avec une distribution en taille centrée entre 1 mm et 2 mm. Dans les basses couches de l'atmosphère, les processus de dépôts des gouttes de pluie sont relativement similaires au cas des particules pesantes. Enfin, le troisième mécanisme comprend les processus de dépôts occultes correspondant au dépôt de rosée, de givre, ou de formation de brouillard de type radiatif. Ces processus sont liés à des effets météorologiques locaux. Sous certaines conditions, le bilan d'énergie radiative est déficitaire et favorise la condensation de vapeur d'eau aux interfaces.

La dissolution et/ou la solvatation de gaz dans l'eau de pluie change ses propriétés. Par exemple, comme dans le cas des pluies acides, certains composés comme les oxydes de soufre (SO₂ ou SO₃) ou d'azote (NO et NO₂) forment en phase aqueuse des acides réduisant le pH de l'eau sous la valeur de 5,6.

Par ailleurs, la présence d'eau superficielle aux interfaces peut d'une part modifier l'affinité de la surface à certains composés, et d'autre part apporter des polluants déjà dissous dans cette eau à l'interface.

Chimie hétérogène surfacique

Une fois en contact avec la surface, le composé peut interagir avec celle-ci. Une illustration du processus de chimie surfacique concerne le « dépôt d'ozone sur une surface végétale ». Celui-ci est généralement séparé en deux voies : le dépôt stomatique et le dépôt non stomatique, ce dernier incluant lui-même le « dépôt »

cuticulaire à la surface des feuilles, à la surface du sol, et éventuellement la destruction chimique en phase gazeuse dans la colonne d'air au-dessus et à l'intérieur du couvert (ces deux dernières étant abordées plus haut). Le dépôt stomatique correspond à la part d'ozone qui entre à l'intérieur de la plante *via* les stomates. Une fois dans la feuille, l'ozone altère le fonctionnement de la plante et mène à la formation d'espèces oxygénées réactives. L'ozone réduit notamment la capacité photosynthétique de la plante et sa surface foliaire en favorisant une sénescence précoce, et il détourne l'utilisation des assimilats vers une activité de détoxification, ce qui modifie la conductance stomatique et la répartition du carbone en faveur des parties aériennes plutôt que des parties souterraines. Le flux de carbone du sol est également altéré notamment par des changements dans la qualité de la litière, des modifications de la rhizodéposition du carbone ou des changements dans la composition de la communauté microbienne du sol (Mills *et al.*, 2013). Le processus de dépôt stomatique permet l'échange gazeux en eau, en CO₂ et en composés organiques volatils entre la plante et l'atmosphère. L'ozone réagit également avec les composés chimiques présents sur la surface de la plante. Des études sur la dégradation de l'acide ascorbique en présence de l'ozone ont montré par exemple la formation de différents produits d'ozonolyse sur la surface (Enami *et al.*, 2008 ; Potier *et al.*, 2017).

Une partie du flux d'ozone intercepté par le sol ou par la végétation (feuille ou tronc) n'entre pas dans la feuille, mais se dépose directement sur les surfaces. Ce dépôt non stomatique correspond donc au dépôt sur les surfaces externes de la plante (cuticules des feuilles, des branches, tiges, etc.) et au dépôt sur le sol. Le dépôt de l'ozone sur les cuticules est estimé par le résidu d'ozone restant après le dépôt stomatique et sur le sol. En utilisant cette approche, il a été constaté que le dépôt d'ozone sur les cuticules végétales est corrélé avec le rayonnement solaire, la température de l'air, et qu'il dépend des paramètres du sol comme la texture, la porosité, la granulométrie et le contenu en matière organique (Grøntoft, 2004 ; Stella *et al.*, 2019 ; Tuzet *et al.*, 2011).

À noter enfin que des processus de chimie hétérogène surfaciques peuvent également avoir lieu à la surface des aérosols atmosphériques. En effet, ceux-ci sont le siège de multiples collisions moléculaires, chaque choc moléculaire n'entraînant pas forcément une incorporation de la molécule dans la phase condensée. Suite à une collision, différents processus peuvent se produire : soit des processus d'adsorption/désorption sur la surface, soit des réactions chimiques avec les espèces présentes à la surface. Ces processus se déroulant sur les surfaces de particules ne seront pas détaillés dans ce chapitre, le lecteur pourra trouver plus d'informations dans Pillar-Little et Guzman (2018).

Annexe

Éléments fondamentaux sur le microclimat aux interfaces sol-végétation-atmosphère, des conditions de sol et de physiologie des cultures

Pour aller plus loin, se référer à Guyot (1997), de Parcevaux et Huber (2007), Calvet *et al.* (2005), Calvet (2013), Heller (2004) ou Jones (2013).

►► Bilan d'énergie

Les processus d'émission, de transport et de dépôts sont très largement dépendants des transferts d'énergie se produisant aux interfaces sol-végétation-atmosphère. La compréhension des processus de transferts d'énergie permet, d'une part, une caractérisation du fluide porteur (dans notre cas, l'air), et, d'autre part, des variables d'état caractérisant les interfaces d'échanges (température de surface, humidité, présence d'eau superficielle), qui par ailleurs peuvent être modifiées par la présence de polluants (par exemple des composés hygroscopiques, c'est-à-dire présentant une affinité avec l'eau). Les transferts d'énergie aux interfaces s'expriment en flux d'énergie traversant l'interface ($W \cdot m^{-2}$). Lorsque le flux d'énergie est positif, l'interface reçoit de l'énergie, ce qui se traduit généralement par une augmentation de température (de Parcevaux et Huber, 2007 ; Guyot, 1997). À l'inverse, lorsque le flux d'énergie est négatif, l'interface se refroidit et sa température baisse. Les échanges d'énergie se font de manière radiative (rayonnement net, R_n), convective (flux de chaleur sensible, H), par conduction (flux de chaleur, G) et par changement d'état (flux de chaleur latente, LE), chacun des termes s'exprimant en $W \cdot m^{-2}$. Le bilan d'énergie à l'interface s'exprime comme :

$$R_n + H + LE + G = \Delta E \quad (2.10)$$

avec ΔE le stock d'énergie à l'interface, souvent considéré comme nul pour les végétaux et les sols. Les termes du bilan d'énergie (détaillés ci-après) dépendent de l'état hydrique et thermique du profil de sol en général, des processus de régulation (évapotranspiration) et des propriétés physiques du couvert végétal (hauteur, profil foliaire, albédo, rugosité). Ainsi, il existe des rétroactions constantes entre le bilan

d'énergie et l'état hydrique de cette surface. Les flux d'énergie radiative (ou par rayonnement) R_n sont décomposés suivant leur longueur d'onde. Les rayonnements de courte longueur d'onde ($< 1 \mu\text{m}$) sont constitués du rayonnement solaire dans ses composantes positives (accroissement de chaleur) directe et diffuse, et d'une proportion du rayonnement solaire réfléchi (perte de chaleur) à l'interface. Le coefficient de réflexion du rayonnement de courte longueur d'onde est nommé « albédo » (a). Aux rayonnements de courte longueur d'onde s'ajoutent les rayonnements de grande longueur d'onde (au-dessus de $1 \mu\text{m}$) principalement dans l'infrarouge. Ces rayonnements se décomposent entre leur composante positive : le rayonnement atmosphérique R_a (responsable de l'effet de serre), et leur composante négative : le rayonnement surfacique de l'interface qui s'exprime en fonction de sa température. Le flux de chaleur sensible (H) traduit les échanges d'énergie modifiant la température de l'interface pilotés par le gradient de température. Quant au flux de chaleur latente LE , il traduit les échanges d'énergie s'opérant lors des changements d'état de la vapeur d'eau et est piloté par le gradient de quantité d'eau dans l'atmosphère. Enfin, le flux d'énergie par conduction de chaleur (G) traduit l'échange de chaleur par contact et s'exprime suivant la loi de Fourier, décrivant le gradient de températures dans le sol. Ces flux d'énergie entraînent en retour une modification du microclimat (contenu en eau dans l'atmosphère, modification de température) à proximité de la surface.

► Transferts hydrique et thermique dans le sol

L'état hydrique du sol est caractérisé par son potentiel hydrique (h_w, m^{-1}), sa teneur en eau (θ), que l'on peut exprimer en humidité pondérale ($\text{kg d'eau/kg de sol}$) ou volumique ($\text{m}^3 \text{ d'eau/m}^3 \text{ de sol}$), ou en proportion du volume des pores remplis par l'eau. Il évolue dans le temps et l'espace en raison des processus de transferts hydriques (décrits par la loi de Darcy en milieu saturé en eau et Darcy généralisée ou Richards en milieu non saturé en eau) dans le profil de sol ainsi que des échanges à la surface *via* le bilan d'énergie de la surface (décrit ci-dessus). De la même manière, la température du sol évolue selon les processus de transferts thermiques (dont les transferts par conduction, décrits par la loi de Fourier). Ces états dépendant de la profondeur dans le sol, on peut alors être amené à définir des couches, ou horizons de sol, en fonction de la profondeur. Selon le forçage météorologique et la saturation du sol en eau, différents régimes hydrauliques existent : infiltration, équilibre hydrostatique ou remontées capillaires. Cette variabilité dans la nature des transferts hydriques est d'autant plus forte dans la fine couche de surface du sol dont le contenu en eau évolue rapidement. Cela implique également que la surface du sol peut entrer dans des conditions locales extrêmes, sans pour autant que soient mis en jeu des forçages météorologiques intenses. Outre les conditions pédoclimatiques locales, la nature même du sol en texture (distribution sable/limon/argile), en densité ρ_b ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$) ou en teneur en matière organique (MO) doit être connue afin de calculer les fonctions de pédo-transferts nécessaires au calcul des relations $h_w(\theta)$ et la conductivité hydraulique K_w ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$). Lors d'un épisode pluvieux, selon les sols, la pente, la présence de culture pouvant intercepter plus ou moins les précipitations, un phénomène de ruissellement surfacique peut avoir lieu et générer ainsi

des transferts horizontaux. Si les transferts hydriques permettent de déterminer la capacité du sol à transporter les différents solutés dans le sol, l'état hydrique et la température du sol conditionnent également la distribution des composés entre les différentes phases (gaz dissous dans l'eau du sol ou adsorbés), qui conditionnent en retour la disponibilité du composé pour les différents transferts (sous forme aqueuse ou gazeuse) et leur dégradation.

Enfin, il est important de noter le caractère fortement hétérogène au niveau spatial du compartiment sol, avec une certaine hétérogénéité de la structure, pouvant donner naissance à des transports préférentiels, à l'origine de transferts rapides de solutés dans le sol plus profond (par exemple passage de racine, vers de terre, fissures).

►► Conditions bio-physico-chimiques du sol

L'état du sol se caractérise à la fois par son état hydrique, son état chimique et son état biologique. Le pH de la solution du sol est une de ses caractéristiques importantes pour les équilibres physico-chimiques et le fonctionnement microbien, tout comme sa capacité d'échange cationique (CEC). La matière organique du sol est une composante primordiale à connaître, car elle conditionne la fertilité chimique du sol, sa stabilité structurale, son fonctionnement microbien et, en modifiant les processus d'adsorption de l'eau, elle peut également influencer les flux d'eau. Cette matière organique est constituée de matière organique inerte, mais aussi vivante (racine, biomasse microbienne), qui impactent l'état physique et chimique du sol et les transformations biogéochimiques qui s'y opèrent. Le sol est le siège de nombreux processus et d'interactions, son état varie fortement spatialement et temporellement (avec des échelles d'espace et de temps très variables). Pour aller plus loin sur ce sujet, on peut se référer à Calvet (2013).

►► Fonctionnement biologique des plantes et du couvert végétal

La présence d'un couvert végétal modifie les conditions ambiantes à l'interface sol-atmosphère en créant un microclimat spécifique au couvert végétal. Rappelons ici le fonctionnement général d'une plante, que ce soit une plante cultivée ou appartenant à un écosystème naturel.

Les plantes sont des organismes autotrophes, c'est-à-dire qu'elles produisent leur propre matière organique à partir de sels minéraux puisés dans le sol et du dioxyde de carbone (CO₂) présent dans l'atmosphère, assimilé par les feuilles grâce à l'énergie solaire par le mécanisme de photosynthèse. Les plantes ont besoin de différents éléments rassemblés pour survivre et se développer : la lumière, utile pour le processus de photosynthèse, qui apporte de l'énergie, l'eau et le sol d'où sont tirés les nutriments, et l'air dont elles extraient le CO₂. Les plantes, quoique de morphologies très variées, ont en commun de posséder des organes différenciés : une tige

portant elle-même des feuilles et des bourgeons, ainsi que des racines. Ces organes sont eux-mêmes constitués de tissus, ensembles organisés de cellules spécialisées. Les racines et la partie aérienne constituent deux systèmes interdépendants grâce aux tissus conducteurs qui les traversent. Le xylème assure le transport de la sève brute (eau et sels minéraux), le phloème celui de la sève élaborée, c'est-à-dire le transfert des composés organiques et solubles des feuilles où a lieu la photosynthèse vers les organes de réserve (tubercules, racines, etc.).

Les cellules végétales constituant ces différents organes sont délimitées par la membrane plasmique et renferment en leur sein la vacuole (servant à stocker l'eau, les nutriments et les déchets), le noyau, ainsi que tous les organites intracellulaires (en particulier les chloroplastes intervenant dans le processus de photosynthèse) ; tous ces éléments baignent dans un milieu appelé « cytoplasme ». Les cellules végétales peuvent communiquer entre elles par le biais des plasmodesmes, canaux traversant la paroi cellulaire des plantes, constituant les voies de passage de l'eau, des solutés, des phytohormones et des virus phytopathogènes qui se répandent à travers la plante. Les cytoplasmes de cellules ainsi reliés ne forment alors qu'un seul compartiment partagé par toutes les cellules, et le continuum intracellulaire ainsi obtenu constitue ce que l'on appelle le « symplasme ». À l'extérieur des cellules végétales, le continuum extracellulaire formé de l'ensemble des interstices des parois cellulaires et des cellules mortes du xylème forme ce qu'on appelle l'« apoplasme ». L'eau et les solutés peuvent emprunter cette voie pour s'infiltrer jusqu'aux organes sans même pénétrer dans une cellule.

Les racines permettent de fixer solidement et durablement la plante au sol, mais leur rôle majeur est de puiser l'eau et les sels minéraux indispensables au développement de la plante. Cette absorption se fait grâce à une multitude de poils absorbants qui se trouvent à l'extrémité des racines, garantissant une très grande surface de contact à l'interface racine-sol. L'eau pénètre par un mécanisme hydrostatique.

Les feuilles sont le principal organe en interface avec l'air, les échanges s'opérant selon deux voies : la cuticule et les stomates. La feuille se compose généralement d'un pétiole et d'un limbe parcouru de nervures (les vaisseaux conducteurs) présentant des formes très variées. Une couche protectrice recouvre les organes aériens des plantes, c'est l'épiderme, dont la partie la plus externe, en contact avec l'air, est la cuticule. Les rôles physiologiques principaux de la cuticule sont liés à sa nature généralement hydrophobe : elle maintient une zone pauvre en eau à la surface du végétal, ce qui protège la plante des pathogènes (notamment de la germination et du développement des spores de champignons), et elle limite les pertes de la plante en eau, en ions et en solutés polaires (sucres, acides organiques, etc.). La cuticule des plantes est couverte par des cires épicuticulaires (Barthlott *et al.*, 1998). Ces structures, composées de petits cristaux très variables associés à la présence de trichomes, confèrent une rugosité à la cuticule et jouent un rôle important dans la mouillabilité des surfaces foliaires (Koch *et al.*, 2008), tout en augmentant les surfaces potentiellement réactives aux polluants. La plupart des feuilles sont vertes, c'est-à-dire chlorophylliennes. La chlorophylle est indispensable à la photosynthèse. Ce mécanisme biochimique permet la production des matières organiques constitutives de la plante et indispensables à son métabolisme. Il nécessite non seulement de la lumière, de l'eau et des sels minéraux arrivant par le xylème des racines jusqu'aux feuilles, mais aussi une source de carbone, le CO₂,

que la feuille puise dans l'air atmosphérique. Le CO_2 , la vapeur d'eau, mais aussi les polluants gazeux pénètrent dans les feuilles à travers les pores microscopiques des feuilles que l'on appelle des stomates, puis intègrent les cellules des tissus de la feuille. Les stomates s'ouvrent et se ferment en fonction des conditions microclimatiques et des stress subis par la plante.

Rôle dans le bilan d'énergie de la surface. Les plantes sont essentiellement constituées d'eau, leur teneur en eau variant de 80 à 95 % de leur poids total. Elles puisent cette eau dans les sols par l'intermédiaire de leurs racines. C'est la transpiration foliaire qui fait monter la sève le long des tiges, des racines jusqu'aux feuilles *via* le xylème sous l'action de l'énergie fournie par le rayonnement solaire. Ce phénomène d'aspiration est très puissant puisqu'il permet, couplé à des forces de cohésion qui tiennent la colonne d'eau, de faire monter l'eau jusqu'au sommet des plus grands arbres. La transpiration est également un élément déterminant de la régulation de la température des plantes : l'eau transpirée passe à travers les stomates, et en cas de stress hydrique, ces derniers se ferment, limitant les pertes d'eau pour la plante. La transpiration est une manifestation spécifique et essentielle du comportement végétal vis-à-vis de l'eau. Son intensité est telle, en effet, que les quantités d'eau stockées dans une plante et celles utilisées par son métabolisme sont infimes au regard de celles qui transitent à travers la plante. L'évapotranspiration régule donc, quasiment à elle seule, les besoins en eau des végétaux.

Les plantes poussant en peuplement constituent ce que l'on appelle un couvert végétal. Les feuilles sont les principales surfaces d'échange avec l'atmosphère ; de leur organisation dans l'espace dépend l'expression progressive des effets des facteurs climatiques : la pénétration du vent et du rayonnement dans les différentes strates du couvert végétal dépend du cumul des surfaces foliaires depuis le sommet du couvert jusqu'à la strate en question. La surface foliaire cumulée totale correspond à l'indice foliaire (IF, ou *leaf area index*, LAI, en m^2 de feuilles par m^2 de sol). De manière analogue, les racines fines et leurs poils absorbants sont les principales surfaces d'échanges avec le sol et on définit un indice de surface racinaire total (en m^2 de racines par m^2 de sol).

La mise en place du peuplement dans le cas des espèces cultivées commence généralement par le semis. Les différents stades physiologiques de croissance et de développement du couvert jusqu'à sa récolte sont, entre autres, le développement foliaire, la floraison, la fructification et la maturation. Cependant, tous les organes des plantes ne restent pas en fonctionnement pendant tout le cycle cultural : au cours du temps, le vieillissement entraîne une lente et progressive dégradation de leurs fonctions et conduit à ce processus physiologique appelé « sénescence ».

► Effets des pratiques

Dans un contexte de parcelles agricoles, les pratiques mises en œuvre modifient l'état du sol de manière plus ou moins durable.

Par exemple, une irrigation modifie bien sûr à court terme les teneurs en eau et la température du sol, mais peut aussi changer son albédo ou sa rugosité de surface.

Un travail du sol (labour, déchaumage, préparation du lit de semence) engendre un mélange des différentes couches de sol impactées, modifiant ainsi de façon drastique et instantanée sa porosité, son humidité et sa température. En incorporant dans le sol les éventuels résidus de cultures présents à la surface, il modifie la teneur en MO locale et son activité microbienne en son sein (Boiffin *et al.*, à paraître en 2020). Les bilans d'énergie et hydrique des surfaces peuvent aussi être modifiés. En effet, l'énergie absorbée par la surface est étroitement liée aux propriétés de cette surface (albédo, émissivité) : ainsi, une augmentation de l'albédo (éclaircissement par la simple présence de cultures ou de débris de culture) diminue l'énergie disponible à la surface et donc la quantité de chaleur entrant dans le sol. L'impact est généralement négatif sur la température, mais cela peut dépendre des modifications des caractéristiques hydriques associées à ce changement. De plus, ces modifications de propriétés de la surface entraînent une modification des flux de chaleur latente (LE) et sensible (H) et par conséquent la température de la surface et de l'air à son contact. En cas de non-travail du sol, les résidus de cultures laissés au sol entraînent deux mécanismes opposés : l'albédo augmente tandis que l'évaporation du sol diminue (Ceschia *et al.*, 2017), et on observe généralement une acidification des horizons de surface en lien avec l'accumulation de matières organiques (Benoit *et al.*, 2014). L'apport d'intrants peut également modifier l'état du milieu, et l'on citera comme exemple l'apport de lisier qui, en fournissant un volume d'eau non négligeable, modifie l'état hydrique du sol, sa température, mais également les conditions de surface (par exemple la diminution de l'albédo) grâce à la matière sèche restant en surface. On peut également citer le choix des cultures, leur densité ou la date de semis, qui changent profondément les caractéristiques de surface et leur dynamique temporelle, ainsi que celle du bilan énergétique et hydrique.

Chapitre 3

De nécessaires approches intégratives

Raia Silvia Massad, Pierre Cellier, Carole Bedos,
Juliette Lathière, Nathalie de Noblet-Ducoudré,
Paul Robin

- Ce chapitre montre, par une approche systémique aux différentes échelles considérées, comment les processus d'émissions, de transformations, de transports et de dépôts des polluants atmosphériques décrits dans le chapitre 2 interagissent, en prenant en compte l'effet des pratiques agricoles. Les interactions spatiales entre les sources et les puits de polluants ou les boucles de rétroaction au sein du système agriculture-air sont décrites, ainsi que les interactions entre le système agriculture-air et les éléments de forçage extérieurs tels que le changement climatique, et les liens avec d'autres problématiques environnementales telles que la qualité des eaux et la biodiversité.

L'atmosphère et la surface du sol interagissent de multiples façons, par exemple par le biais du bilan radiatif, du cycle de l'eau ou de l'émission et du dépôt de composés chimiques. Les modifications de la gestion des terres, notamment liées aux activités agricoles (choix des cultures, travail du sol, fertilisation, usage de PPP, irrigation, intercultures, etc.), modifient les caractéristiques des surfaces (sol, végétation), avec des conséquences sur les interactions avec l'atmosphère, sur la composition atmosphérique et sur le climat (Perugini *et al.*, 2017) à une échelle allant du local au global. L'importance de l'agriculture et des pratiques agricoles sur le climat mondial ainsi que sur la qualité de l'air est largement reconnue. Les terres cultivées et les prairies représentent plus du tiers des terres émergées dans le monde, un peu moins de la moitié en Europe et plus de la moitié en France. Les pratiques agricoles induisent des modifications des propriétés physiques (par exemple albédo de surface, émissivité et rugosité) ou du potentiel d'émission/dépôt chimique des surfaces terrestres,

ce qui entraîne des changements dans l'espace et le temps parfois abrupts, parfois plus progressifs, dans tous les flux de masse et d'énergie entre le sol et l'atmosphère. De plus, certaines surfaces agricoles sont en étroite proximité de zones résidentielles ou d'activités économiques, d'une part en zone périurbaine, d'autre part du fait de l'extension des zones d'influence des villes (chapitre 7). Les relations entre ces zones et entre ces différentes activités doivent donc être considérées pour analyser les possibles impacts de la pollution d'origine agricole. Il faut aussi rappeler ici que des facteurs socio-économiques et des politiques publiques locales, régionales, nationales ou supranationales, telles que les plans d'urbanisme ou la Politique agricole commune, déterminent pour une large part l'occupation des sols et leurs évolutions et peuvent moduler très sensiblement les pratiques agricoles.

Ce chapitre traite des interactions au sein des agroécosystèmes, notamment résitués dans leur environnement, en se focalisant sur les échanges avec l'atmosphère en lien avec les différentes pratiques agricoles. Il présente dans un premier temps les interactions au niveau des processus au sein des parcelles agricoles et des bâtiments d'élevage, puis les interactions entre les différents cycles biogéochimiques, pour enfin aborder les liens avec d'autres problématiques environnementales. D'un point de vue spatial, il se situe aux échelles de la parcelle, du paysage et de la région. Cela amène notamment à traiter des interactions et des boucles de rétroactions avec le système climatique à différentes échelles spatiales en fonction des impacts étudiés. Une remise en perspective au sein même de l'organisation des filières agricoles compléterait la présentation, elle n'est toutefois pas détaillée dans cet ouvrage, faute d'élément tangible de positionnement sur ce sujet dans la littérature scientifique et technique.

► Intégration des processus : effet des pratiques agricoles

Les différents processus physiques, chimiques et biologiques (chapitre 2) qui interviennent dans les échanges de polluants entre l'atmosphère et les surfaces continentales en général, les surfaces agricoles plus particulièrement, peuvent interagir à plusieurs niveaux.

Interactions au niveau de la parcelle agricole

Les échanges de polluants entre la surface et l'atmosphère dépendent des conditions du milieu, comme la température des surfaces (du sol, de la végétation) ou la teneur en eau du sol, conditions qui impactent les processus sous-jacents à ces échanges (par exemple équilibres physico-chimiques, dégradation). En modifiant les conditions du milieu, les pratiques agricoles (par exemple irrigation, travail du sol, apports de matières organiques) modifient donc les échanges de polluants, et il est nécessaire de considérer un large ensemble de processus pour comprendre ces interactions et évaluer l'influence de certaines pratiques sur les flux de polluants atmosphériques. Ceci est illustré par les deux exemples qui suivent.

Interactions à la surface du sol

Benoit *et al.* (2014) soulignent le fait que le travail du sol affecte le devenir des produits phytopharmaceutiques (PPP) en diminuant leur disponibilité à la surface et en changeant des propriétés des sols, non seulement les propriétés physiques (porosité, rugosité) et hydriques, mais aussi les propriétés physico-chimiques (teneur en matières organiques, pH) et biologiques (communautés microbiennes, micro et mésofaune). En cas de non-travail du sol, la présence de résidus de cultures modifie les conditions du milieu (évaporation du sol, température) et augmente les surfaces d'échange avec l'atmosphère (surfaces sur lesquelles peuvent éventuellement être interceptés des intrants appliqués comme les lisiers ou les PPP). Par ailleurs, les interactions entre composés appliqués et résidus sont différentes des interactions entre ces intrants et le sol et dépendent aussi de la dégradation de ces résidus. Ainsi, il est encore pour l'instant difficile d'évaluer *a priori* si un résidu de culture limite ou accroît la volatilisation des PPP, les deux situations peuvent se rencontrer (Benoit *et al.*, 2014) selon les propriétés des PPP et de la surface (sols, résidus). Il en est de même pour l'effet des résidus de cultures sur la volatilisation de l'ammoniac (Mary *et al.*, 2014).

Interactions au sein du couvert végétal

La plante joue également un rôle déterminant dans les échanges surface-atmosphère, notamment de composés réactifs comme NH_3 dans les couverts agricoles fertilisés, mais aussi de composés organiques volatils (COVb) (Dudareva *et al.*, 2013). En effet, les échanges tels qu'illustrés dans la figure 3.1 dépendent du métabolisme interne de la plante, de sa croissance (photosynthèse) et du fonctionnement des stomates, voie privilégiée pour les échanges plante-atmosphère. Ces échanges sont à leur tour affectés par les modifications de l'environnement physique des feuilles (potentiel hydrique, température, humidité de l'air et concentration interne en CO_2), par les concentrations en polluants au niveau du couvert et les dépôts atmosphériques, par la disponibilité d'autres ressources (azote, phosphore) par le biais de leurs influences sur le développement des couverts végétaux, et par les compétitions avec les autres composantes biologiques de l'agroécosystème qui vont affecter le fonctionnement de la plante (compétition pour les ressources, invasion par des organismes nuisibles). Le dépôt d'ozone illustre bien les interactions entre processus physiques, chimiques et biologiques. Il implique des processus biologiques (absorption stomatique, métabolisme antioxydant de la plante) et diminue lorsque l'humidité de la surface et celle des feuilles décroissent (Klemm et Mangold, 2001). Lorsque la végétation n'est pas limitée en eau, l'ozone peut être absorbé par les feuilles *via* les stomates. Au-dessus d'un certain seuil d'exposition de la plante, les dépôts d' O_3 réduisent la photosynthèse, affectent le contrôle stomatique et provoquent des nécroses, ce qui diminue la surface foliaire active, la croissance des plantes, l'accumulation de biomasse et le rendement des cultures (Ainsworth *et al.*, 2012). Par conséquent, alors que les dépôts d' O_3 améliorent la qualité de l'air, ils provoquent des dommages sur les plantes à long terme. Il est important de noter que plus l'exposition est prolongée, plus les effets sur la conductance stomatique sont sensibles (Super *et al.*, 2015). Plus généralement, différents stress affectent le fonctionnement des plantes et peuvent selon les cas engendrer des augmentations ou des diminutions des émissions de COVb.

La présence de plantes modifie également la rugosité des surfaces et donc les échanges. Par exemple, en augmentant la rugosité de la surface, une forêt va réduire la vitesse du vent horizontal, mais en même temps accroître localement le mélange dans les basses couches de l'atmosphère. Le premier effet tendra à augmenter les concentrations en polluants émis à la surface, tandis que le deuxième les diminuera au contact du couvert végétal et en aval.

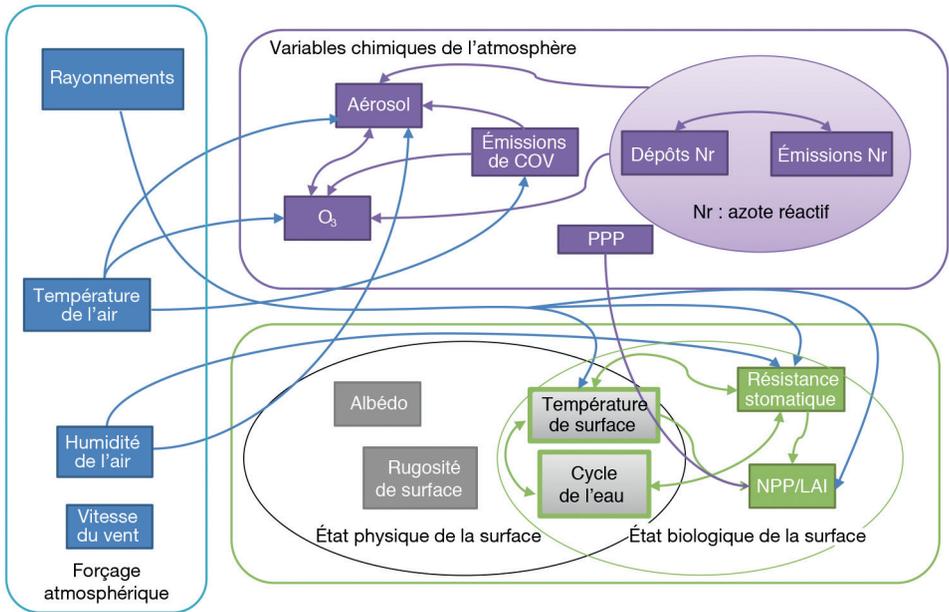


Figure 3.1. Interactions entre les différentes variables et processus concernés par les échanges biosphère-atmosphère impliqués entre les surfaces physiques et biologiques d'un écosystème et les compartiments physiques et chimiques de l'atmosphère adjacente. Ce schéma couvre la plupart des variables atmosphériques discutées dans le document, mais pas celles qui peuvent être impliquées (d'après Massad *et al.*, 2019).

NPP : production primaire nette ; LAI : indice foliaire.

Les bâtiments d'élevage, des sources ponctuelles intenses

Les bâtiments d'élevage sont émetteurs de NH₃, de gaz à effet de serre (H₂O, CH₄, N₂O, CO₂), d'odeurs, de produits d'hygiène utilisés sous forme de gaz ou d'aérosols, de particules héritées (pollen, graines, spores, fragments végétaux liés à l'alimentation ou au paillage) ou produites (poils, plumes, peaux, champignons, levures, bactéries, phages émis par les biofilms se développant sur les animaux, les effluents ou les parois du bâtiment, aliments, litières, poussières soulevées par la manutention), de molécules et particules issues des matériaux de construction. Ils représentent une fraction importante des sources agricoles de polluants tels que l'ammoniac et les poussières.

Des processus physico-chimiques et biologiques

Pour l'ammoniac et plus généralement les composés azotés (N_2O , NO_x), les processus conduisant aux émissions sont les mêmes que ceux qui se produisent au champ après des apports d'effluents organiques (chapitre 2). Trois éléments supplémentaires doivent toutefois être pris en compte pour expliquer les émissions : le métabolisme des animaux (émissions directes par l'animal et par le biais des effluents déposés au bâtiment), le bâtiment lui-même avec ses caractéristiques techniques, et enfin les pratiques d'élevage dans le bâtiment et en lien avec le parcellaire de l'exploitation et le territoire. Il s'agit donc d'un système complexe, dont la compréhension nécessite des approches intégratives.

L'émission nette de gaz ou de particules par un bâtiment d'élevage est la résultante de quatre flux bruts : production, consommation ou transformation, passage depuis la surface vers l'air, dépôt sur le sol ou sur des obstacles au flux d'air.

La production a deux sources principales : l'animal et l'effluent. Les principaux gaz émis sont issus de « déchets » du métabolisme. À noter que le CO_2 issu de la respiration est un bon traceur de l'activité biologique et peut servir à élaborer des indicateurs de l'intensité des autres émissions. NH_3 et N_2O sont émis par les effluents, émission conditionnée par la nutrition azotée (teneur en protéines de l'aliment). Par exemple dans le cas du porc, environ 60 % de l'azote ingéré est excrété. NH_3 est issu de l'azote organique facilement dégradable (urée, fragments de protéines ou d'ADN). À la différence des flux de carbone et d'eau, les flux de consommation de l'azote minéral (NH_3 , N_2O) dans les litières peuvent être majoritaires, l'émission nette résultant alors de l'asynchronisme entre les flux de minéralisation et d'organisation. Concernant les particules, leur production dépend de leur nature. Dans le cas de l'aliment, elle augmente avec l'apport d'aliments secs et dépend des équipements de distribution. Dans le cas du paillage, elle dépend de la granulométrie et de l'humidité du matériau apporté. Les émissions de particules depuis les déjections dépendent essentiellement de l'humidité des surfaces au contact des animaux (fumiers, caillebotis, matelas). Enfin, dans le cas des particules directement d'origine animale, elle dépend de l'espèce et du stade physiologique.

Le méthane est issu du métabolisme anoxique. Dans les élevages d'herbivores (bovins, ovins, caprins, équins), il est majoritairement émis par les animaux à la suite d'un processus appelé la fermentation entérique. Au cours du processus normal de digestion, les glucides (comme la cellulose de l'herbe) sont scindés par des micro-organismes en molécules simples dont certaines seront absorbées dans le flux sanguin. Le CH_4 , un sous-produit de ce processus, s'accumule dans le rumen pour être ensuite libéré par éructation et expiration ou sous forme de flatulences pendant la digestion. Ainsi, les ruminants sont les animaux qui produisent le plus de CH_4 . Pour l'ensemble des élevages, le CH_4 est produit par l'effluent. C'est la source principale de CH_4 dans les élevages de monogastriques (porcs, volailles). Lors du stockage des déjections, la décomposition anaérobie de la matière organique des effluents d'élevage conduit à la production de CH_4 selon un processus analogue à celui des sols (méthanogenèse). L'oxydation du CH_4 produisant du CO_2 (consommation avant émission) peut être importante lorsque son temps de contact avec un biofilm aérobie est suffisamment long (par exemple fumiers épais, lagunes, piscicultures).

Le passage depuis la surface vers l'air constitue un processus déterminant pour le NH_3 et les particules, mais est négligeable pour le CO_2 et le CH_4 . Il dépend pour partie des animaux et de la gestion d'ambiance dans le bâtiment. L'émission de NH_3 augmente avec la surface émettrice, la concentration dans le liquide émetteur, la ventilation (une augmentation du renouvellement d'air diminue la concentration en NH_3 de l'air), la vitesse de l'air, la température et le pH (Sommer *et al.*, 2006). Les animaux influencent l'aire de la surface émettrice (humidité, accumulation d'urines et de fèces ou fientes), l'alimentation influence la teneur des rejets en azote disponible et le pH des déjections (balance électrolytique). L'abondance de l'eau (lavage, activité à l'abreuvoir) peut diluer la concentration. Si la vitesse d'air augmente l'émission de NH_3 à court terme, son effet à moyen terme sur une baisse d'humidité de la surface peut conduire à réduire l'émission de NH_3 par lot d'animaux produits. L'émission de particules dépend de la densité et de l'activité des animaux.

Le processus de dépôt intervient dans le bâtiment pour les particules de grande taille ($> 10 \mu\text{m}$). Émises en lien avec l'activité des animaux, ces particules se redéposent pour partie par sédimentation lorsque les vitesses d'air sont suffisamment faibles dans le bâtiment.

Des facteurs d'influence multiples

Les émissions nettes de gaz ou de particules sont influencées par plusieurs facteurs. Les facteurs relatifs au bâtiment influençant les émissions sont le mode de ventilation, les choix d'ambiance (hygrométrie, vitesse d'air, éclairage qui conditionne l'activité des animaux), l'usage d'équipements de filtration d'air (NH_3 , odeurs, particules), la nature des équipements éventuels de chauffage et de récupération de chaleur, l'accès éventuel à un parcours. Les facteurs relatifs aux animaux sont l'espèce (la race, la souche), le poids, le niveau de production (croissance corporelle, lait, œufs), l'alimentation (fraction azotée, additifs destinés à moduler le pH des déjections ou l'émission de CH_4 de l'animal), la densité animale, la taille du groupe. Les facteurs relatifs aux effluents comportent en premier lieu le type de filière (solide, liquide, plusieurs effluents) et la dilution de l'azote (par l'eau pour les filières liquides, par des substrats carbonés pour les filières solides). Les émissions dépendent ensuite de la disponibilité du carbone et de l'activité microbienne (organisation de l'azote excrété, production de CH_4), de la densité de matière sèche et de la teneur en eau pour les filières solides (Oudart, 2013), de la durée de stockage (en bâtiment, en fumière, au champ). Les facteurs relatifs à l'environnement extérieur comportent le climat d'une part, le maillage entre les éléments de paysage d'autre part (végétation, autres bâtiments). Dans certains cas, ces paramètres peuvent réduire significativement l'émission observée directement à la sortie du bâtiment par « récupération » d'une partie des émissions par la végétation avoisinante.

Cycles biogéochimiques et impacts sur les flux de polluants

Les éléments majeurs tels que l'azote, le phosphore, le potassium et le soufre sont indispensables à la vie, car ils sont, avec le carbone, l'oxygène et l'hydrogène, constitutifs de tout être vivant (ADN, protéines, enzymes). Ces éléments

ne sont pas indépendants et la composition des matières organiques respecte des rapports stœchiométriques³⁹ qui peuvent être différents selon les organismes vivants. Les cycles de ces éléments majeurs sont donc couplés au niveau des écosystèmes, et tout déséquilibre (par exemple lié à la fertilisation) pourra avoir des conséquences sur les flux de ces éléments au sein des agroécosystèmes. L'exemple le plus démonstratif par rapport aux échanges avec l'atmosphère est celui de l'azote. Les excédents d'azote apportés aux cultures favorisent les émissions de polluants atmosphériques (NH_3 , NO_x), car la végétation n'a pas la capacité d'absorber et d'assimiler assez rapidement cet azote pour former de la matière organique par le biais de la photosynthèse. Inversement, il est aujourd'hui bien établi que les dépôts d'azote réactif sur les écosystèmes naturels favorisent le stockage de carbone dans les sols (Erisman *et al.*, 2011 ; Cellier et Générmont, 2016).

Concernant le cycle du soufre, les réglementations mises en œuvre dans le cadre de la Convention de Genève (1979) ont conduit à une forte réduction des émissions de dioxyde de soufre par les activités industrielles. Cela a profondément modifié le cycle biogéochimique du soufre, et a généré en particulier une forte baisse de ses dépôts atmosphériques. Les sols reçoivent ainsi 7 à 8 fois moins de soufre par dépôts atmosphériques en 2015 par rapport à 1980, et cet élément est devenu dans certains écosystèmes naturels et agricoles un facteur limitant de la production végétale, donc de la production agricole et du stockage de carbone dans les sols (Cellier, 2017). C'est là un des rares exemples où la baisse des niveaux de pollution a eu des effets négatifs sur des écosystèmes oligotrophes à moyenne et grande échelle.

► Intégrations des processus à différentes échelles spatiales selon les impacts étudiés

Il est reconnu depuis longtemps qu'il existe des interactions entre l'organisation du paysage, sa structure et son fonctionnement physique, chimique et biologique, éléments généralement fortement modifiés par les activités anthropiques. Les espaces ruraux, couverts par différents types de cultures ou d'élevage et de forêts composées d'un mélange variable de types d'arbres, les zones urbaines et périurbaines de différentes superficies coexistent au sein des territoires, voire sont très imbriquées, formant des mosaïques d'occupation des sols au contact d'un compartiment atmosphérique unique et sans frontières. Par conséquent, une parcelle agricole a le potentiel d'influencer les parcelles qui l'entourent, sur une gamme d'échelles temporelles et géographiques qui dépendront des processus considérés, comme l'illustre la figure 3.2. Ce transport horizontal des masses d'air induit des échanges rapides d'eau, de chaleur ou de polluants entre zones voisines. En ce qui concerne la qualité de l'air, les composés émis par une zone agricole peuvent ainsi être déposés en champ proche (quelques mètres à quelques centaines de mètres) si

39. Un rapport stœchiométrique représente les proportions dans lesquelles les éléments chimiques sont impliqués dans la composition d'un composé ou d'un être vivant.

leur affinité avec la végétation est forte (exemple de l'ammoniac) ou être transportés vers des endroits éloignés, si leur durée de vie dans l'atmosphère est longue, et subir des transformations chimiques dans l'atmosphère. Ces transferts et transformations influencent donc la composition chimique de l'air et peuvent induire des impacts dans des régions proches ou lointaines.

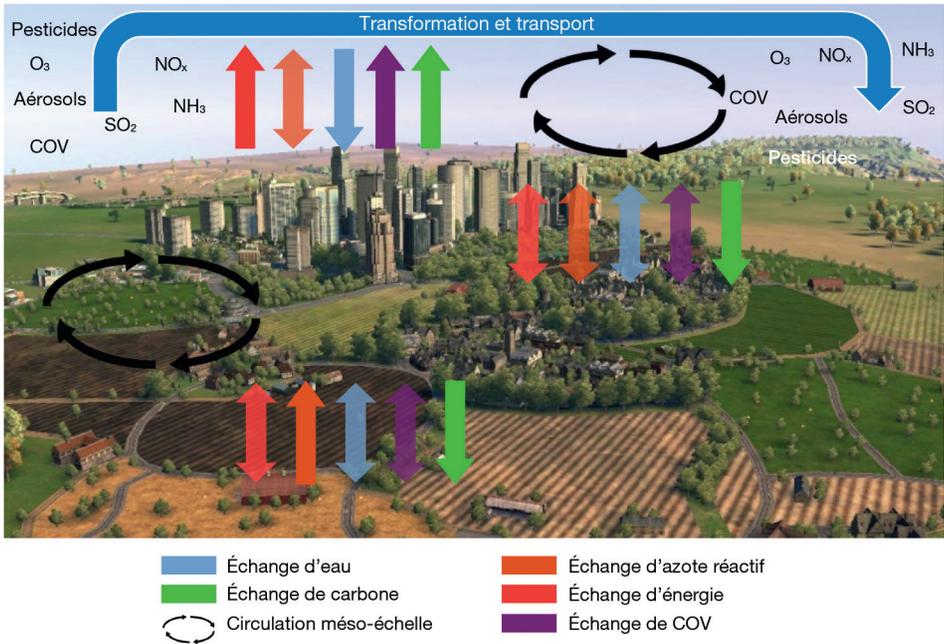


Figure 3.2. Interactions entre différentes parties du paysage et tendances majeures de la direction du flux gazeux à partir de chaque type de surface (d'après Massad *et al.*, 2019).

Les différentes couleurs représentent les différents types de composés. Les flèches monodirectionnelles indiquent les points où les composés sont principalement émis ou déposés par le type de surface en question. Les flèches bidirectionnelles correspondent aux cas où les composés peuvent être émis ou déposés en fonction des conditions atmosphériques et des écosystèmes. Ces composés peuvent être transportés et transformés sur de longues distances (flèche bleue du haut) ou plus localement (flèche noire).

La proximité d'une zone urbaine modifie également le fonctionnement des écosystèmes naturels, comme cela a été démontré par plusieurs études. Comme mentionné précédemment dans ce chapitre, les concentrations d'ozone affectent la photosynthèse et donc la productivité des écosystèmes. La dégradation des écosystèmes à proximité des grandes villes, due à de multiples causes, a été étudiée principalement dans la perspective d'analyser l'effet sur les services écosystémiques et les effets ultérieurs sur les populations en général et les populations vulnérables en particulier (Haase *et al.*, 2014).

Ces interactions complexes concernant la pollution de l'air et l'agriculture à l'échelle des paysages et de petites régions sont illustrées ci-dessous à partir de trois exemples.

La cascade de l'azote : transfert, transformation et impacts de l'azote réactif

Le concept de cascade de l'azote, introduit par Galloway *et al.* (2003), est un exemple emblématique de l'importance d'intégrer les différents processus impliquant l'azote réactif utilisé en agriculture et ses pertes, de celle des relations spatiales, de la diversité des impacts et de l'influence anthropique sur un cycle. L'azote réactif perdu depuis les systèmes agricoles va circuler dans différents milieux (air, eaux, sols, écosystèmes) où il peut être stocké, mais surtout s'y transformer par le biais de processus physiques, chimiques et microbiologiques en diverses formes, qui peuvent chacune successivement créer des impacts sur la santé, les écosystèmes et le climat (Sutton *et al.*, 2011). Ceci a amené Galloway *et al.* (2003) à introduire le concept de cascade de l'azote, qu'il définit comme le transfert séquentiel de l'azote dans les systèmes environnementaux, s'accompagnant de transformations en différentes formes d'azote réactif, et ses conséquences en termes d'impacts. La figure 1.2 du chapitre 1 met en évidence cette chaîne de transferts, transformations et impacts dans l'environnement avec un focus sur les zones agricoles. Galloway *et al.* (2003) donnent quelques exemples, que nous reprenons sous une forme différente ici, pour illustrer cette chaîne de processus et d'impacts. Au départ, une molécule d'azote atmosphérique (N_2) est convertie en ammoniac par le processus Haber-Bosch pour produire de l'engrais. La moitié de l'azote apporté aux cultures se retrouve dans les récoltes utilisées comme aliment pour l'homme ou le bétail. L'autre moitié s'échappe vers l'atmosphère (NH_3 , NO_x , N_2O , N_2) ou vers l'eau (NO_3^- , azote organique dissous), ou encore est stockée dans le sol sous forme de matières organiques plus ou moins stables. L'ammoniac émis à cette occasion peut participer à la pollution atmosphérique en intervenant dans la formation de particules fines dommageables pour la santé, ou peut être déposé par la pluie sur un écosystème naturel qu'elle va fertiliser, mais aussi contribuer à acidifier et/ou à eutrophiser si les doses sont trop fortes. Le sol de cet écosystème, tout comme celui de la parcelle agricole initiale, produit aussi du NO émis vers l'atmosphère où il contribue à la formation d'ozone troposphérique, impactant la santé humaine et celle des écosystèmes. L'azote déposé peut aussi être transformé en nitrate qui risque de migrer vers les eaux et les écosystèmes aquatiques, produisant là encore des désordres trophiques. Ce nitrate peut être dénitrifié en N_2O (qui contribue alors au réchauffement global et à la dégradation de la couche d'ozone stratosphérique) ou en N_2 (dénitrification complète), retournant ainsi à une forme non réactive de l'azote qui arrête la chaîne des impacts. Les chaînes de transformations et d'impacts illustrées précédemment concernent aussi bien les engrais synthétiques que les effluents d'élevage ou l'azote contenu dans les déchets produits par l'homme (ordures ménagères, boues de stations d'épuration), de même que des apports d'azote réactif par combustion ou fixation symbiotique.

Le triptyque écosystèmes urbains-agricoles-naturels dans un contexte de pollution azotée

Alors que l'agriculture est mise en cause depuis plusieurs décennies pour ses impacts sur la qualité de l'eau (nitrates et PPP) et pour sa contribution au changement

climatique (émissions de N_2O et CH_4), la question de sa contribution à la pollution atmosphérique en milieu urbain et périurbain n'a émergé que récemment dans le débat public, ainsi que rappelé dans la partie introductive de cet ouvrage, en lien avec des épisodes récents de pollution par les aérosols au printemps ou par l'impact de l'application de PPP à proximité de zones habitées. Par exemple, la France subit régulièrement des pics de pollution par les aérosols (PM_{10} - $PM_{2.5}$), en particulier à la fin de l'hiver et au début du printemps, comme en mars 2014, lorsque des conditions météorologiques favorables ont coïncidé avec le début de l'épandage d'engrais. L'ammoniac, qui est en grande partie émis par les effluents d'animaux et par l'application d'engrais minéraux et organiques, contribue à ces pics par la formation d'aérosols secondaires (chapitre 2). La réduction de ses émissions est donc un enjeu important pour l'amélioration de la qualité de l'air. Pour cela, il faut bien connaître et quantifier les sources d'ammoniac, évaluer les coûts et les avantages des méthodes de réduction ainsi qu'analyser les pratiques et les stratégies de réduction à court et long terme. Leur contrôle est devenu une préoccupation majeure aux niveaux régional, national et international, qui se traduit par la mise en place, depuis la fin des années 1990, de tout un ensemble de réglementations (chapitre 7). Pour recommander des leviers d'action appropriés à court terme afin de limiter l'ampleur de ces épisodes et leurs impacts sanitaires et écotoxicologiques, il est nécessaire de prendre en compte la dynamique temporelle fine (échelle journalière) et la variabilité spatiale des sources agricoles d'ammoniac. La réalisation de cadastres d'émissions dynamiques à l'échelle nationale, mais aussi à l'échelle régionale à l'interface entre zones rurales et urbaines (Ramanantenasoa *et al.*, 2018), a permis des progrès significatifs dans ce domaine pour améliorer la prévision de la qualité de l'air locale et régionale.

Cet exemple illustre la pluridisciplinarité (en termes d'agronomie, de physique, d'éco-physiologie et de chimie) des études à mener pour améliorer les prévisions d'émissions d'ammoniac, de transport et de réactions en relation avec les conditions météorologiques, les processus biologiques du sol et la phénologie des plantes. Cependant, pour développer des pistes d'action, une coopération entre la société civile agricole, les collectivités territoriales et les acteurs des politiques publiques est nécessaire pour définir d'une part, la flexibilité souhaitable sur les dates de fertilisation au printemps et d'autre part, la façon d'introduire la problématique des émissions de polluants agricoles dans la planification territoriale des zones urbaines et périurbaines.

Le verdissement urbain : îlot de chaleur urbain et impact sur la boucle $COV_b/NO_x/O_3$

De nombreuses études ont exploré des techniques permettant de contrebalancer les effets néfastes de l'urbanisation sur l'environnement local. Parmi les nombreuses solutions déjà proposées, le verdissement urbain est l'une des plus intéressantes en jouant sur le phénomène d'îlot de chaleur urbain (Feyisa *et al.*, 2014), sur les émissions et transformations chimiques de polluants, ainsi que sur la dispersion des polluants (Stathopoulou *et al.*, 2008).

Les zones vertes urbaines telles que les parcs, les jardins ou les toits et les murs végétaux suscitent actuellement une attention soutenue de la part des scientifiques

et des urbanistes (Feyisa *et al.*, 2014) avec certaines expériences interdisciplinaires et intercommunautaires déjà établies. Un nombre croissant d'études se concentre sur l'évaluation de la qualité de l'air en milieu urbain afin de quantifier les impacts de la végétation urbaine (Selmi *et al.*, 2016). Les modifications des espèces végétales sélectionnées et de leurs surfaces peuvent d'une part augmenter ou diminuer les échanges et le devenir des composés réactifs émis, tels que les COVb ou les composés azotés selon les cas, et donc influencer sur la composition chimique de l'air (molécules gazeuses et aérosols) (Ghirardo *et al.*, 2016 ; Janhäll, 2015). D'autre part, les rétroactions sur la qualité de l'air par l'atténuation de l'îlot de chaleur urbain ne sont pas prises en compte, mais pourraient conduire à une dégradation de la qualité de l'air, en affectant le processus physico-chimique comme la dispersion des précurseurs de l'ozone par exemple (Lai et Cheng, 2009). Pour quantifier dans quelle mesure le verdissement urbain peut contribuer à atténuer le climat local urbain et la pollution atmosphérique, avec ses effets ultérieurs à l'échelle régionale, il est donc nécessaire d'adopter des approches interdisciplinaires (Baró *et al.*, 2014), impliquant des scientifiques en écophysiologie et en physique et chimie de l'atmosphère, mais aussi des urbanistes. En effet, bien que les rôles de la forme urbaine, du tissu urbain et de la disposition et de l'orientation des bâtiments sur l'atténuation de l'îlot de chaleur urbain aient été explorés dans de multiples études, ce n'était pas le cas pour la composition atmosphérique.

► Influences de la pollution de l'air d'origine agricole sur d'autres problématiques environnementales

Les exemples de la section précédente ont parfois souligné que les émissions ou les dépôts de polluants atmosphériques dans les agroécosystèmes pouvaient très largement toucher à d'autres problématiques environnementales. Nous allons ici illustrer ces effets de manière synthétique sur trois problématiques majeures : climat, eaux et biodiversité.

Agriculture, pollution de l'air et changement climatique

Les agroécosystèmes sont des sources et des puits à la fois de polluants atmosphériques et de gaz à effet de serre et, par là même, interviennent très significativement dans les relations entre climat et pollution de l'air (Cellier et Générumont, 2016).

Tout d'abord, les processus biogéochimiques au sein des agroécosystèmes émettent à la fois des polluants atmosphériques et des gaz à effet de serre, parfois par le biais des mêmes processus. L'exemple le plus significatif est celui du cycle de l'azote (Sutton *et al.*, 2011), qui conduit à des émissions d'ammoniac, de NO_x et d'HONO (polluants atmosphériques), mais aussi de N₂O (gaz à effet de serre). Les émissions d'ammoniac contribuent d'une part aux émissions indirectes de N₂O, après transfert vers d'autres écosystèmes, et d'autre part à la formation de particules secondaires qui ont un effet refroidissant sur le climat de l'échelle régionale à l'échelle globale. Enfin, les composés azotés réactifs présents dans l'atmosphère se déposent

tôt ou tard et permettent aux écosystèmes de stocker des quantités plus importantes de carbone (Erisman *et al.*, 2011). À l'inverse, la croissance attendue des niveaux d'ozone troposphérique dans les prochaines décennies à l'échelle globale est une menace pour le stockage de carbone par les écosystèmes, en affectant les capacités photosynthétiques des écosystèmes terrestres. Sitch *et al.* (2007) ont ainsi montré que cet effet pouvait être du même ordre de grandeur que le pouvoir de réchauffement radiatif de l'ozone.

Sur un tout autre plan, la protection des cultures participe à la contamination de l'atmosphère par les PPP. Dans une synthèse, Delcour *et al.* (2015) rappellent que les infestations des cultures seront modifiées en raison de l'augmentation des températures et de la modification des régimes pluviométriques liées au changement climatique, et risquent de conduire à une augmentation de l'usage des PPP. Ces mêmes facteurs pourraient favoriser la volatilisation, mais aussi la dégradation des PPP dans l'environnement. Mais la protection des cultures pourrait aussi participer à limiter le changement climatique en favorisant la production végétale et donc le stockage de carbone dans les sols (Hugues *et al.*, 2011). Concernant les forêts, Seidl *et al.* (2018) estiment que l'invasion de nouvelles maladies due aux changements climatiques pourrait contribuer à une perte de 1 027 Tg C vers l'atmosphère. Dans cet exemple, tout comme dans le précédent, établir un bilan des effets positifs et négatifs amène à comparer des interactions de natures très différentes, ayant des impacts très divers (santé humaine et des écosystèmes, qualité des eaux et de l'air, climat...).

Enfin, concernant surtout le cas des forêts, on sait aujourd'hui que le changement climatique augmentera très significativement les risques d'incendie (Bedia *et al.*, 2014), incendies qui peuvent générer de graves épisodes de pollution de l'air (particules, oxydes d'azote et de carbone...) sur des échelles allant de la petite région (10 km) au continent. Les exemples se sont multipliés dans les années 2010 en Europe (Grèce, Portugal, France, Suède), en Californie, en Sibérie et en Asie du Sud-Est (Indonésie, Chine). Dans le nord-est de la Chine, des pratiques très répandues de brûlage des résidus de cultures de maïs créent des épisodes de pollution intenses et diminuent les stocks de carbone dans les sols.

Agriculture, qualité de l'air et qualité des eaux

La contribution des transferts atmosphériques de polluants émis par les agroécosystèmes à la contamination des eaux peut être significative, avec des effets sur les organismes aquatiques, ainsi que présenté dans le chapitre 1, et présente des situations très diverses.

Le cas qui vient le premier à l'esprit est celui des PPP, qui peuvent être transférés en quantités non négligeables vers les écosystèmes voisins (fossés, cours d'eau, haies, forêts) par dérive des gouttelettes de pulvérisation au moment de l'application ou par dispersion et dépôt de la fraction de composés volatilisés (transfert gazeux) dans les jours suivant l'application. Cette voie de contamination peut être significative (Bedos *et al.*, 2013) et, pour certains PPP, du même ordre de grandeur que les transferts par ruissellement superficiel dans les surfaces aquatiques (fossés, cours d'eau, étangs) et les zones humides voisines.

Pour ce qui concerne les composés azotés, les dépôts atmosphériques d'ammoniac, consécutifs à la volatilisation dans les agroécosystèmes, peuvent représenter des quantités importantes dans le bilan d'azote des zones aquatiques où ces apports se rajoutent aux apports par voie hydrologique dans les plans d'eau continentaux ou les zones marines. Cette situation a en particulier été soulignée dans le cas de la mer Baltique, entourée des zones d'agriculture intensive, dans laquelle les dépôts d'ammoniac contribuent significativement au bilan d'azote de certaines zones (Asman *et al.*, 1995). Ceci est d'autant plus important que le développement du phytoplancton est souvent limité par l'azote dans ces zones.

Sur les écosystèmes forestiers, les dépôts acidifiants (dont l'ammoniac représente une part croissante) modifient les équilibres physico-chimiques dans les sols et contribuent non seulement à l'acidification des eaux, mais aussi à la libération d'ions métalliques (Al^{3+} , Mg^{2+} ...), pouvant rendre les eaux impropres à la vie de certaines espèces végétales (notamment le phytoplancton) et animales (poissons, batraciens, arthropodes, mollusques). Ces effets ont été très étudiés dans le contexte de l'étude des impacts des « pluies acides »⁴⁰.

D'autres phénomènes peuvent se produire à des échelles plus larges. Il a pu ainsi être estimé par modélisation que les niveaux élevés de pollution (toutes sources confondues) dans le Sud-Est asiatique pouvaient avoir des conséquences sur le bilan hydrique local en diminuant les précipitations, mais aussi sur des zones lointaines (Australie) en modifiant la circulation atmosphérique à grande échelle (Rotstajn *et al.*, 2007).

En outre, en modifiant le fonctionnement des plantes en matière d'évapotranspiration et d'humidité du sol, les dépôts d'ozone peuvent affecter le cycle hydrologique, ce qui affectera à leur tour les dépôts de surface, mais également les dépôts humides de polluants et d'éléments nutritifs.

À l'inverse, des problèmes de qualité des eaux peuvent être à la source d'émissions de polluants atmosphériques. C'est le cas des émissions d'ammoniac et d'hydrogène sulfuré liées à la prolifération d'algues vertes en Bretagne (depuis plusieurs décennies) ou d'algues sargasses aux Antilles (surtout depuis les années 2010). Dans les deux cas, l'altération de la qualité des eaux est liée aux excès de nutriments d'origine agricole dans les eaux côtières ou pélagiques. Les émissions de polluants sont produites par la décomposition de ces algues suite à leur dépôt sur les zones littorales, et peuvent conduire à des impacts sanitaires majeurs⁴¹.

Agriculture, qualité de l'air et biodiversité

Comme on l'a souligné dans le chapitre 1 de cet ouvrage, l'agriculture est régulièrement pointée du doigt dans la diminution importante de la biodiversité, touchant les espèces végétales ou animales (en particulier les insectes et les oiseaux, qui sont souvent mentionnés). Ces impacts sont souvent le résultat de voies d'exposition multiples par les sols, les eaux et l'air, mais une part non négligeable de cet impact des

40. <https://www.epa.gov/acidrain/effects-acid-rain>.

41. <https://www.martinique.ars.sante.fr/les-algues-sargasses-un-phenomene-sanitaire>.

activités agricoles est une conséquence des émissions vers l'atmosphère de polluants dans les agroécosystèmes. Dans le cas des PPP, ceux-ci peuvent être transférés par dérive ou volatilisation vers les êtres vivants qui résident dans les écosystèmes voisins ou lointains (transfert à longue distance pour les produits les plus persistants). Cette voie de contamination touche souvent des cibles qui ne seraient pas affectées par les autres voies de transfert, en particulier par les eaux. Mais le cas de l'azote est également important. On sait que l'augmentation des quantités d'azote réactif et leur transfert depuis les agroécosystèmes vers les écosystèmes naturels ou semi-naturels sont l'une des principales menaces sur la biodiversité (Sutton *et al.*, 2011). De plus, l'atmosphère est la principale voie de transfert vers ces zones où se produisent ces impacts (Galloway *et al.*, 2004). Ces transferts et les impacts qui en résultent peuvent aller de distances courtes (zone naturelle voisine d'un bâtiment d'élevage ; Hicks *et al.*, 2011) jusqu'à l'échelle globale.

Pour conclure

En ce qui concerne la nature des polluants impliqués, la problématique « agriculture et qualité de l'air » met en jeu à la fois les polluants atmosphériques qui sont émis en plus ou moins grande proportion par les activités agricoles (composés azotés, méthane, COVb, PPP, particules biotiques et abiotiques), et ceux provenant d'autres secteurs qui impactent l'agriculture (ozone, SO₂, métaux). Si les gammes d'émission sont relativement bien documentées pour les composés azotés, avec néanmoins un besoin prégnant d'en diminuer les incertitudes, c'est loin d'être le cas pour les PPP ou les COVb, en raison du grand nombre de composés à prendre en compte et des difficultés de mesures. De grandes incertitudes demeurent également pour les particules primaires abiotiques, par manque de données précises à la fois sur leur distribution granulométrique et sur leur composition chimique. De plus, les polluants émergents, identifiés récemment, sont encore mal connus. Ce sont notamment les nanoparticules, les co-formulants et adjuvants de PPP, certains pathogènes et les COV d'origine agricole encore non identifiés (issus des bâtiments d'élevage, du stockage des effluents, de l'apport de produits résiduels organiques au champ ou des cultures agricoles et sylvicoles, incluant les sols).

En ce qui concerne les impacts, ces polluants affectent les organismes vivants dans les écosystèmes terrestres et aquatiques soit directement en raison de leur toxicité, soit indirectement par des effets en cascade le long des chaînes trophiques ou par l'altération des biotopes. De la même façon, la présence dans l'air de polluants atmosphériques d'origine agricole et la contamination des milieux naturels qui en résulte constituent un risque pour la santé humaine. Les professionnels de l'agriculture y sont directement exposés, par exemple lors des activités d'épandage de substances chimiques ou lors de l'inhalation de gaz émis en bâtiment d'élevage. Mais c'est aussi l'ensemble de la population qui est exposée aux polluants présents dans l'atmosphère et à ceux qui se sont accumulés dans les denrées alimentaires et les eaux destinées à la consommation humaine.

Par ailleurs, chez l'homme comme dans les écosystèmes, l'effet « cocktail » (effet induit par l'exposition à des mélanges de contaminants) est loin d'être connu, les ingrédients et les proportions variant en permanence. Aussi, la compréhension de la dégradation des agroécosystèmes dans leur ensemble, mais également des relations entre les différents compartiments physiques et les espèces qui y vivent, nécessite de développer les études d'impact le long d'un continuum reliant l'atmosphère aux milieux aquatiques, en passant par les sols et les végétaux. Ceci suppose de prendre en compte simultanément les effets à long terme, l'exposition à un mélange de polluants, la capacité d'adaptation des végétaux, l'identification des voies d'exposition (voies stomatique vs cuticulaire pour les végétaux, inhalation vs contact cutané

pour les hommes) selon l'état du polluant (gaz vs particulaire), ou encore la désagrégation des effets confondants qui restent encore mal connus. C'est pourquoi les disciplines comme la toxicologie, l'écotoxicologie, l'épidémiologie, mais aussi la physique, la chimie, l'agronomie, l'écologie, la biologie, l'écophysiologie doivent se concerter pour faire évoluer les connaissances sur cette problématique liant l'exposition aux polluants atmosphériques et leurs impacts. Cette approche intégrative permettrait de mieux appréhender les effets concomitants et les interactions entre les différentes sources de nuisances et d'envisager des mesures de gestion en considérant les éventuels antagonismes sous-jacents entre différents leviers d'action identifiés.

Les processus conduisant à la présence de ces polluants dans l'atmosphère sont de différentes natures (physique, chimique, physico-chimique, biologique). Ils peuvent être communs à plusieurs polluants (par exemple, les transferts de solutés dans le sol, le transport atmosphérique) ou spécifiques d'un polluant donné ou d'une famille de polluants (par exemple la nitrification). Leur déterminisme est connu pour la plupart des processus ici présentés, les principaux facteurs impliqués étant en général identifiés. Ces facteurs relèvent des caractéristiques intrinsèques des polluants (à noter toutefois une incertitude pouvant être significative en ce qui concerne l'estimation de leurs propriétés physico-chimiques), et des conditions pédoclimatiques, physiques, physico-chimiques et biologiques du milieu et des pratiques agricoles (intrants, travail du sol, culture considérée). Ainsi, une bonne compréhension du devenir des composés d'intérêt repose sur une description de ce milieu et de son évolution, de manière plus ou moins fine selon le processus considéré. Cette description concerne également les pratiques agricoles qui doivent être documentées au mieux (type de travaux, date, caractéristiques).

Il reste cependant un certain nombre de fronts de sciences, évoqués ci-après, sans exhaustivité. En premier lieu, tous les mécanismes sous-jacents expliquant le comportement ou la concentration d'un composé ne sont pas toujours clairement identifiés. Par exemple, la réponse physiologique d'une plante soumise à un ou plusieurs stress n'est pas très bien comprise, et sa capacité de détoxification, l'émission de COV signaux de stress sont autant de questions encore ouvertes. Nous pouvons également citer le domaine de la chimie hétérogène, avec la formation d'aérosols secondaires nécessitant encore des travaux pour en comprendre les déterminants. On peut aussi évoquer les réactions chimiques à l'intérieur du couvert végétal. Celles-ci restent difficiles à appréhender, en raison non seulement de la diversité des précurseurs, mais aussi de la concomitance entre ces réactions et les processus d'échanges (émission, dépôt), intenses aux interfaces sol-végétation-atmosphère, ainsi que de la variabilité des conditions météorologiques dont ils dépendent. Ce dernier exemple illustre un autre point délicat dans la compréhension du devenir des composés dans l'environnement, à savoir l'existence de couplages entre les processus : certains processus peuvent entrer en synergie ou au contraire être antagonistes, alors que d'autres peuvent donner lieu à des rétroactions complexes difficiles à anticiper. En effet, si les processus pris séparément sont généralement bien identifiés, le déterminisme d'un système complexe (pouvant être multipolluants, multisources, multisecteurs) impliquant un ensemble de processus, dont certains non linéaires, devient rapidement difficile à appréhender, d'autant plus pour les systèmes vivants ayant des

capacités plus ou moins grandes d'adaptation aux conditions du milieu, voire de modification de celle-ci. Quant aux interactions entre l'ensemble des polluants, elles sont encore mal connues. On peut citer par exemple l'absence de connaissances sur l'influence des co-formulants sur le comportement des substances actives contenues dans les PPP, notamment leur pénétration dans les feuilles, ou l'hypothèse généralement avancée d'idéalité des solutions aqueuses étudiées (eau du sol, aérosols), négligeant ainsi les éventuelles interactions entre composés.

Ainsi qu'explicité dans le chapitre 3, les processus s'expriment dans un environnement en évolution en lien avec les changements globaux, que ceux-ci relèvent du climat, du changement d'usage des terres, ou encore des changements de pratiques (par exemple avec les systèmes agricoles du futur tels que l'agriculture urbaine, l'agroforesterie, les cultures associées). Ces évolutions modifient les conditions du milieu et donc l'expression de ces processus. Les rétroactions peuvent en être modifiées. Il est également important de prendre en compte la notion de plasticité et de capacité d'adaptation ou de résilience des organismes vivants lors de la quantification de leur réponse à la pollution ou au changement climatique, en particulier s'il s'agit de comprendre les rétroactions sur le compartiment atmosphérique. Une vision intégrée du système devient indispensable. Nous avons présenté la gamme des interactions ayant lieu au sein même de la parcelle agricole, en essayant d'identifier l'effet des pratiques agricoles elles-mêmes sur le comportement des polluants, au niveau spatial sur un territoire donné, mais également en lien avec des problématiques environnementales comme le changement climatique, la qualité des eaux ou la biodiversité. La complexité des interactions en jeu ainsi qu'une connaissance limitée des pratiques agricoles aux échelles régionale ou nationale engendrent une réelle difficulté à prédire la variabilité spatio-temporelle des émissions, nécessaire à l'identification de leviers d'action efficaces pour réduire la contribution des activités agricoles à la pollution de l'air. Voilà ce qui constitue véritablement les défis à relever pour proposer des outils de gestion et d'aide à la décision efficaces (chapitre 7).

Partie II

Méthodes de mesure et de modélisation

Mesures des concentrations et des flux de polluants atmosphériques

Benjamin Loubet, Dominique Baisnée, Mathieu Cazaunau,
Audrey Fortems-Cheiney, Raluca Ciuraru, Cathy Clerbaux,
Jean-François Doussin, Gaëlle Dufour, Cristian Focsa,
Christian George, Valérie Gros, Mélynda Hassouna,
Jean-Luc Jaffrezo, Julien Kammer, Patricia Laville,
Abdelwahid Mellouki, Maurice Millet, Denis Petitprez,
Etienne Quivet, Nathalie Redon, Roland Sarda-Esteve,
Stéphane Sauvage, Gaëlle Uzu, Éric Villenave, Nora Zannoni

- Estimer la contribution de l'agriculture à la pollution de l'air et au réchauffement climatique est une nécessité pour comprendre et limiter son impact sur l'environnement et le climat et est même une obligation légale. Mais il est tout aussi important d'estimer la capacité de nouvelles pratiques à réduire ces émissions ou de caractériser les dépôts, voire les impacts des polluants atmosphériques sur les agrosystèmes. Ce chapitre présente les méthodes de mesures des concentrations en polluants atmosphériques ainsi que des flux d'échanges à l'interface sol-végétation-atmosphère.

La contribution de l'agriculture aux émissions de polluants est essentiellement estimée *via* des facteurs d'émissions, voire des modèles, qui prennent éventuellement en compte les pratiques et le climat (chapitres 5 et 6). Pour établir ces modèles et ces facteurs d'émissions, il faut des mesures d'émissions, précises et représentatives des climats, sols et pratiques régionales. Il faut également des mesures qui permettent d'identifier la contribution agricole à la pollution de l'air et qui permettent d'extrapoler les résultats

dans le futur. Or les mesures existantes dans le domaine agricole sont encore très parcel-laires : même pour l'ammoniac, qui est le composé sans doute le plus caractéristique des émissions agricoles, il n'existe que peu de données mesurées au champ en France (Hafner *et al.*, 2018). Par ailleurs, les méthodes utilisées pour établir ces données sont controversées (Sintermann *et al.*, 2012). Pour le N_2O , autre composé caractéristique de l'agriculture, les méthodes de mesures spatialement, voire temporellement ponctuelles rendent difficile et incertaine l'extrapolation des données à des échelles plus larges. Pour d'autres composés comme les COVb et le HONO, les données sur les sites agricoles sont quasi inexistantes. Ainsi, existe-t-il encore aujourd'hui un besoin fort de mesurer les flux de polluants entre les agrosystèmes et l'atmosphère.

Dans ce chapitre, nous brossons un panorama des principales méthodes de mesure des concentrations atmosphériques et des flux de polluants en lien avec l'agri-culture tels que présentés dans le chapitre 1. Les composés présentés sont d'une part les composés émis par les activités agricoles, et en premier lieu les composés azotés, principalement gazeux, qu'il s'agisse de gaz à effet de serre comme le N_2O ou de polluants comme l'ammoniac, mais aussi les composés organiques volatils biogéniques (COVb), incluant le méthane et les PPP (qui sont des composés orga-niques semi-volatils ; encadré 4.1). Il s'agit d'autre part des composés qui ont un impact sur la biosphère et en particulier les agrosystèmes. On retrouve dans cette catégorie les composés émis directement, mais également les composés dits « secon-daires », et en particulier l'ozone et les particules.

Ce chapitre traite des méthodes actuelles de mesure des concentrations et des flux, mais aussi des méthodes permettant d'attribuer l'origine des composés atmosphé-riques aux sources d'origine agricole ainsi que celles permettant de comprendre les mécanismes réactifs dans l'atmosphère qui conduisent à la formation d'aérosols et d'ozone. Cet ensemble permet ainsi d'évaluer l'impact sur la santé humaine et l'en-vironnement des composés émis par l'agriculture. En fin de chapitre, un aperçu est donné des techniques émergentes de mesure des polluants et gaz à effet de serre qui permettront dans un avenir proche de mieux caractériser les émissions d'origine agricole et les impacts de la pollution de l'air sur l'agriculture. Le lecteur désireux d'en savoir plus pourra utilement lire le rapport de l'Ademe « Mesurer les émissions gazeuses en élevage : gaz à effet de serre, ammoniac et oxydes d'azote » (Hassouna *et al.*, 2015), qui traite de ces composés en particulier, mais aussi de méthodes qui s'appliquent à tout type de composé.

► Méthodes de mesure des familles de composés chimiques et biologiques dans l'atmosphère

Les polluants atmosphériques émis ou ayant un impact sur l'agriculture sont multiples et se présentent sous forme de composés gazeux ou de particules (chapitre 1). La mesure de ces composés implique une panoplie de techniques très variées qui pour la plupart utilisent des méthodes établies depuis des dizaines d'années (chimie aqueuse, chromatographie gazeuse, chimie-luminescence, spec-troscopie, pesée, microscopie, comptage optique). C'est toutefois le perfection-nement de ces techniques et leur démocratisation qui permettent l'essor actuel

de mesures multicomposés. On peut notamment noter l'apport de diodes laser à cascades quantiques dans le domaine de la spectroscopie, des méthodes de temps de vol et des modes d'ionisation maîtrisés comme le transfert de proton en spectrométrie de masse. Le tableau 4.1 reprend la liste des composés les plus importants pour la problématique agricole et donne pour chacun les méthodes existantes pour la mesure avec les références bibliographiques correspondantes ainsi qu'une estimation des gammes de concentrations et de flux rencontrés dans l'environnement.

Encadré 4.1. Mesure des pesticides dans l'air.

Comprendre les effets de l'agriculture sur la qualité de l'air nécessite la mise en place de campagnes de mesures de grande envergure qui, pour des polluants semi-volatils comme les pesticides à l'état de traces, sont lourdes et coûteuses. Les niveaux de concentrations couvrent une gamme assez large, de quelques pg m^{-3} à quelques $\mu\text{g m}^{-3}$ au niveau des sources (Guiral *et al.*, 2016). Actuellement, aucun système d'analyse en ligne n'est disponible et opérationnel pour évaluer la contamination de l'atmosphère par ces substances (à noter toutefois que les analyseurs de type PTR-MS de dernière génération offrent une perspective intéressante et prometteuse pour l'avenir, Vesin *et al.*, 2012). Les systèmes de prélèvements couramment employés (par les Aasqa notamment) utilisent un pompage à plus ou moins haut volume avec un piégeage des composés sur un filtre, suivi d'un adsorbant solide (PUF, XAD) pour la collecte respectivement des phases particulaire et gazeuse (Anses, 2017). Les composés sont ensuite extraits avec des solvants organiques. Toutefois, la capacité de ces systèmes à séparer les phases gazeuse et particulaire présente des biais, liés à la volatilisation possible des pesticides depuis les particules piégées sur le filtre vers l'adsorbant gazeux placé en aval. La durée de prélèvement avec ce type de système varie entre un et sept jours le plus souvent. Pour des mesures de concentrations sur des pas de temps plus courts (quelques heures), des prélèvements à bas débit sur des adsorbants de type Tenax peuvent également être utilisés. Les composés piégés peuvent être alors désorbés thermiquement, ce qui améliore les limites de quantification. Ces adsorbants sont particulièrement utilisés pour le suivi des émissions par volatilisation (Bedos *et al.*, 2006).

Pour l'étude des concentrations en pesticides dans l'atmosphère à grande échelle, l'échantillonnage passif constitue une méthode alternative intéressante par sa simplicité d'utilisation (léger, simple à installer, ne requérant pas de source d'énergie) et son coût peu onéreux. Le principe consiste à échantillonner l'air ambiant par un flux « diffusif » à travers une membrane perméable aux gaz, et à capturer le composé sur un filtre imprégné d'un adsorbant. Ces techniques sont communément appelées « échantillonneur diffusif », « capteur passif » ou encore « techniques d'échantillonnage intégratives ». Ces techniques sont déjà appliquées à l'ammoniac (Sutton *et al.*, 2001) et au NO_2 (Tang *et al.*, 2001). Ces échantillonneurs sont utilisés pour des polluants organiques persistants (POP) tels les polychlorobiphényles (PCB), les pesticides organochlorés (OC) et les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP). Des études sur les pesticides commencent à voir le jour aux États-Unis ou en France (Levy, 2016). Une limitation de ces méthodes est la bonne tenue dans le temps des adsorbants et un point de vigilance est à apporter quant à la précision de la détermination du volume d'air échantillonné.

Tableau 4.1. Méthodes de mesures des composés gazeux et particulaires les plus importants vis-à-vis de l'agriculture.

Famille	Composé	Concentrations en milieu agricole	Flux sur des couverts agricoles	Méthodes de mesure	Références
Espèces azotées	NO _x	0,1 à 200 ppb	- 0,3 à 2 nmol · m ⁻² · s ⁻¹	Chimiluminescence Spectroscopie ultraviolet-visible (UV-vis)	Villena <i>et al.</i> , 2012 Fuchs <i>et al.</i> , 2010
	NH ₃	0,1 à 1 000 ppm	- 10 à 200 nmol · m ⁻² · s ⁻¹	Chimiluminescence « Denuder » + conductivité Spectroscopie infrarouge (IR) Spectrométrie de masse	Marx <i>et al.</i> , 2012 Von Bobrutzki <i>et al.</i> , 2010 Von Bobrutzki <i>et al.</i> , 2010 Sintermann <i>et al.</i> , 2011
	HNO ₃	0,01 à 5 ppb	- 0,001 à - 0,25 nmol · m ⁻² · s ⁻¹	« Denuder » + chromatographie Badge à diffusion passive Spectrométrie de masse Spectroscopie IR	Nemitz <i>et al.</i> , 2004 Zbieranowski et Aherne, 2012 Le Breton <i>et al.</i> , 2014
	HONO	10 à 1 000 ppt	- 0,1 à 0,2 nmol · m ⁻² · s ⁻¹	Spectroscopie Conversion chimique « Denuder » + chromatographie Spectrométrie de masse	Barnes <i>et al.</i> , 2013 Laufs <i>et al.</i> , 2016 Huang <i>et al.</i> , 2002 Barnes <i>et al.</i> , 2013
Espèces soufrées	SO ₂	0,1 à 20 ppb	- 0,001 à - 1 nmol · m ⁻² · s ⁻¹	Spectroscopie UV et IR Spectrométrie de masse	Kurten <i>et al.</i> , 2011
	H ₂ O ₄			Spectrométrie de masse	Kurten <i>et al.</i> , 2011
	DMS		Non connu	Chromatographie	Borrás <i>et al.</i> , 2016
	H ₂ S			Chromatographie	Borrás <i>et al.</i> , 2016
Composés organiques volatils	COV oxygénés Terpènes	1 ppt à 50 ppb	1 à 1 000 nmol m ⁻² s ⁻¹	Chromatographie Spectrométrie de masse	Karl <i>et al.</i> , 2005 Apel <i>et al.</i> , 2008 Abis <i>et al.</i> , 2018
	Radicaux	OH, NO ₃		Spectroscopie Spectrométrie de masse	Fuchs <i>et al.</i> , 2012 Fuchs <i>et al.</i> , 2012
Ozone	O ₃	1 à 200 ppb	- 30 à 5 nmol · m ⁻² · s ⁻¹	Spectroscopie UV-vis et IR Chimiluminescence Électrochimie	Hoffman <i>et al.</i> , 1995 Gusten <i>et al.</i> , 1992

Famille	Composé	Concentrations en milieu agricole	Flux sur des couverts agricoles	Méthodes de mesure	Références
COSV	HAP			Chromatographie	
	Pesticides	0,01 à 1 000 ppt	0,001 à 2 nmol · m ⁻² · s ⁻¹	Chromatographie/MS, MS/MS, ECD, FID...	Bedos <i>et al.</i> , 2006
PCB				Chromatographie	
Acide chlorhydrique	HCl	0,1 à 200 ppt	- 0,0001 à 0,01 nmol · m ⁻² · s ⁻¹	« Denuder » + chromatographie	Nemitz <i>et al.</i> , 2004
Monoxyde de carbone	CO	1 à 2 ppm		Spectroscopie NIR et IR	Catoire <i>et al.</i> , 2015
				Électrochimie	Mead <i>et al.</i> , 2013
Gaz à effet de serre	CH ₄	1 800 à 1 900	- 100 à 1 000 nmol · m ⁻² · s ⁻¹	Chromatographie	Miller, 2004
	CO ₂	300 à 1 000 ppm		Spectroscopie NIR et IR	Goopy <i>et al.</i> , 2011
N ₂ O		300 à 5 000 ppb	0,1 à 70 nmol · m ⁻² · s ⁻¹	Spectroscopie NIR et IR	Guimbaud <i>et al.</i> , 2011
				Spectrométrie de masse	White <i>et al.</i> , 2002
Aérosols	PM _{2,5}	5 à 50 µg m ⁻³	1 à 500 ng · m ⁻² · s ⁻¹	Chromatographie	Rapson et Dacres, 2014
	PM ₁₀	5 à 120 µg m ⁻³	1 à 2 000 ng · m ⁻² · s ⁻¹	Spectroscopie NIR	Kang <i>et al.</i> , 2014
Virus et bactéries				Compteurs optiques	Liu et Daum, 2000
				Pesée	McMurry, 2000
				Microscopie	Moosmüller <i>et al.</i> , 2009
				Spectroscopie	Pöschl, 2005
				Thermo-optique	Jayne <i>et al.</i> , 2000
				Spectrométrie de masse	Canagaratna <i>et al.</i> , 2007
				Chromatographie	Herrero <i>et al.</i> , 2010
Pollens et spores	Virus			Microscopie	Griffin, 2007
	Bactéries	... - 15 000 cell. · m ⁻³		Culture et impacteur	Grinshpun <i>et al.</i> , 1994 Helin <i>et al.</i> , 2017
		0-5 000 nb · m ⁻³		Impacteur	Grinshpun <i>et al.</i> , 1994
				Microscopie	Griffin, 2007
				PILS HPAEC PAD	Sarda-Estève <i>et al.</i> , 2014
				WIBS	Lassar <i>et al.</i> , 2014

COSV : composé organique semi-volatil ; NIR : Near Infra Red ; PILS : Particle Into Liquid Collector ; HPAEC : High Performance Anion Exchange Chromatography ; PAD : Pulsed Electrochemical Detection ; WIBS : Wideband Integrated Bioaerosol Sensor.

► Méthodes de mesure des flux d'émission et des dépôts de polluants atmosphériques

Un flux est une quantité en mole ou en masse échangée verticalement par unité de surface du sol et par unité de temps entre une surface et l'atmosphère. Ce flux résulte soit d'un processus de production ou de consommation du composé (comme la respiration ou la photosynthèse), soit d'un processus d'équilibre (comme l'adsorption cuticulaire d'un polluant, ou la volatilisation). Le flux surface-atmosphère résulte par ailleurs d'une combinaison de processus de diffusion moléculaire ou brownienne dans la couche limite des objets situés à la surface (sol, plante), et de diffusion turbulente, processus dominant dès lors que l'on est éloigné de ces objets. Le flux diffusif vertical est alors le produit de la diffusivité (qui varie donc avec l'altitude) par le gradient de concentration entre la surface et l'atmosphère. Ainsi, s'il n'y a pas de turbulence (pas de vent), la diffusivité turbulente est nulle et le flux d'échange devient négligeable (la diffusion moléculaire est processus de mélange très peu efficace). Un composé présent en plus grande quantité à la surface que dans l'atmosphère présente un flux net dirigé vers le haut (émission, flux positif par convention) et inversement (dépôt sec, flux négatif par convention).

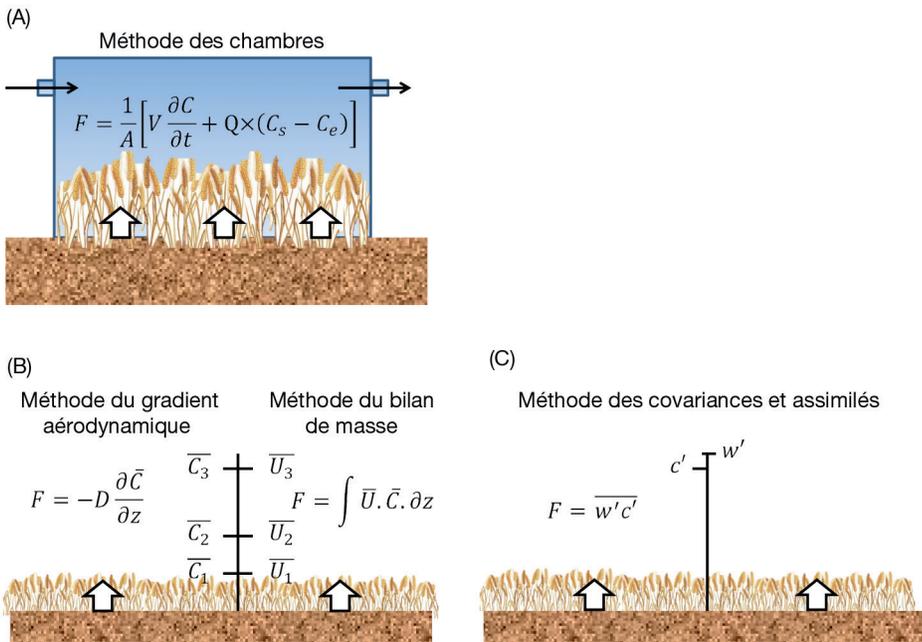


Figure 4.1. Principe des méthodes de mesure (A) de chambres, (B) de gradient aérodynamique et de bilan de masse, et (C) des covariances turbulentes.

C est la concentration du composé, U la vitesse du vent, W la composante verticale du vent, Q le débit dans la chambre, D la diffusivité turbulente, z la hauteur, t le temps, V le volume de la chambre et A sa surface au sol. C_e est la concentration d'entrée de la chambre, C_s celle en sortie. Les barres horizontales indiquent une moyenne temporelle, et les primes un écart à la moyenne. ∂ est l'opérateur de dérivation.

Mesure des flux entre la biosphère et l'atmosphère

On distingue les flux d'émission et ceux de dépôt entre les surfaces terrestres et l'atmosphère. Le dépôt se décompose en dépôt sec (flux diffusif des gaz et des particules très fines) et en dépôt humide (dépôt lié à la pluie) (chapitre 2). Dans cette section, les dépôts humides, dont la mesure se fait par des méthodes de récupération des précipitations dans des réservoirs, ne sont pas présentés. On pourra lire par exemple Krupa (2002) pour avoir une revue des méthodes existantes. Depuis les années 1960, plusieurs méthodes de mesure des flux ont été développées, d'abord pour les flux de chaleur, d'eau, de CO₂ et de quantité de mouvement, puis pour les autres composés.

Pour mesurer un flux au champ dans le continuum sol-végétation-atmosphère, il existe deux catégories de méthodes : soit les méthodes des chambres, qui consistent à enfermer la partie de l'écosystème que l'on étudie dans une chambre ; soit les méthodes micrométéorologiques non invasives, où les mesures sont faites dans l'air libre au-dessus de l'écosystème.

Les méthodes de chambres incluent les chambres statiques, qui consistent à enfermer une surface et à mesurer l'accroissement de concentration avec le temps, proportionnel au flux, et les chambres dynamiques, dans lesquelles l'air dans la chambre est renouvelé avec un débit d'air constant, filtré ou non, et le flux est proportionnel à la différence de concentration entre l'entrée et la sortie. Les méthodes des chambres ont l'avantage d'être plus sensibles que les méthodes micrométéorologiques et requièrent donc des analyseurs moins précis pour mesurer un même flux. En revanche, elles ont comme désavantage de perturber l'environnement du système mesuré (rayonnement, température, humidité), de ne pas être représentatives des conditions réelles, en particulier pour les composés en équilibres thermodynamiques avec la surface (comme l'ammoniac par exemple) et d'être sensible à la variabilité spatiale des émissions, qui peut être très forte.

Les méthodes micrométéorologiques incluent notamment :

- les méthodes de bilan de masse, qui consistent à faire un bilan des flux horizontaux entrant et sortant d'un volume virtuel englobant la source ; le flux horizontal est estimé comme le produit de la concentration du composé par la vitesse horizontale du vent. Ces méthodes ont été les plus utilisées pour estimer les émissions d'ammoniac ;
- les méthodes du gradient aérodynamique, qui consistent à estimer le flux comme le produit du gradient vertical de concentration et de la diffusivité turbulente, en application de la loi de Fick. La méthode repose donc sur la mesure du gradient vertical de concentration au-dessus de l'écosystème par un séquençage des mesures sur un capteur unique ou l'utilisation de plusieurs capteurs ;
- enfin, les méthodes des covariances turbulentes, qui consistent à « compter » les molécules qui montent et celles qui descendent et qui sont basées sur la mesure à haute fréquence des composantes du vent et de la concentration du composé. Ces méthodes, qui deviennent la référence aujourd'hui, seront détaillées plus loin dans ce chapitre.

Les méthodes micrométéorologiques font l'hypothèse que le flux mesuré à quelques mètres au-dessus de la surface est égal au flux à la surface. Ceci n'est pas nécessairement le cas s'il existe des puits ou sources de la molécule d'intérêt, notamment par réactions photochimiques ou hétérogènes, *in situ*, dans la colonne d'air entre la surface

et la hauteur de mesure. Par exemple pour O_3 , NO_x et COV, des corrections doivent être apportées *a posteriori* aux flux mesurés (Stella *et al.*, 2012 ; Vuolo *et al.*, 2017).

Chaque méthode est adaptée à une échelle donnée, présentant des avantages et des inconvénients : la méthode des chambres possède un seuil de détection très bas et est peu chère, mais elle impose un temps de résidence long (typiquement quelques minutes) qui peut donc modifier les conditions environnementales (températures, rayonnement) de la surface, rendre les termes de réactions chimiques non négligeables et donc biaiser les mesures réalisées. Elle est également peu représentative (échelle du mètre carré) de la variabilité des processus que l'on cherche à caractériser. La méthode du bilan de masse est moins sensible, mais elle ne perturbe pas le système observé. En revanche, elle n'est adaptée qu'à des sources de dimensions réduites (quelques dizaines de mètres carrés), car il faut intégrer l'ensemble du panache émis par la source sur toute la hauteur. Cette méthode est par ailleurs sensible au rapport entre concentration ambiante et niveau de la source. La méthode du gradient aérodynamique (détaillée dans l'encadré 4.2) possède un seuil de détection relativement bas, adapté à des échelles allant d'un à plusieurs dizaines d'hectares, mais elle requiert une très bonne résolution entre niveaux et donc une grande précision des analyseurs. L'utilisation d'un analyseur unique avec un système de commutation entre les niveaux est adaptée à condition que le signal ne soit pas trop instationnaire et ne change donc pas d'une commutation à l'autre. La méthode des covariances turbulentes est aujourd'hui la référence, car c'est une mesure directe. Elle est adaptée aux mêmes échelles que la méthode du gradient et requiert également une bonne résolution de mesure. Elle est peu sensible aux dérives du zéro et est adaptée à des mesures à long terme, mais elle nécessite des analyseurs rapides. C'est la méthode de référence en 2019.

Encadré 4.2. ROSAA : un analyseur développé par l'Inra pour la mesure des flux d'ammoniac.

L'analyseur ROSAA (Robust and Sensitive Ammonia Analyser) développé par l'Inra permet de mesurer la concentration en ammoniac sur 6 canaux simultanément toutes les 30 minutes. L'ammoniac est tout d'abord capturé dans des minidenuders (A) dans lesquels passent une solution légèrement acide et un débit d'air régulé à contresens. La solution est stockée dans des réservoirs avant injection (B) pour analyse par conductimétrie et séparation sur membrane (C). Une série d'électrovannes (D) permet la sélection des échantillons et d'étalons toutes les deux heures (E) ainsi qu'un contrôle qualité (F). Une balance (G) permet de mesurer la quantité de liquide contenue dans chaque réservoir, tandis qu'un détecteur de bulle (H) permet de contrôler l'injection.

Les deux graphes ci-dessous (figure 4.3) illustrent la mesure des flux d'ammoniac entre une surface agricole et l'atmosphère. Ces graphes montrent une séquence d'émission d'ammoniac (les flux sont positifs quand il s'agit d'émission) suivant l'incorporation de féverole (famille des *Vicia faba*) dans le sol le 22 mai, suivie d'une pluie le 25 mai 2014 dans une parcelle du Centre de recherche agronomique de Rutigliano, Italie du Sud. On observe que l'émission d'ammoniac est provoquée par un épisode de pluie, apportant l'humidité au sol habituellement sec de la région, et permettant ainsi aux micro-organismes du sol de décomposer la féverole et d'en utiliser l'ammonium.

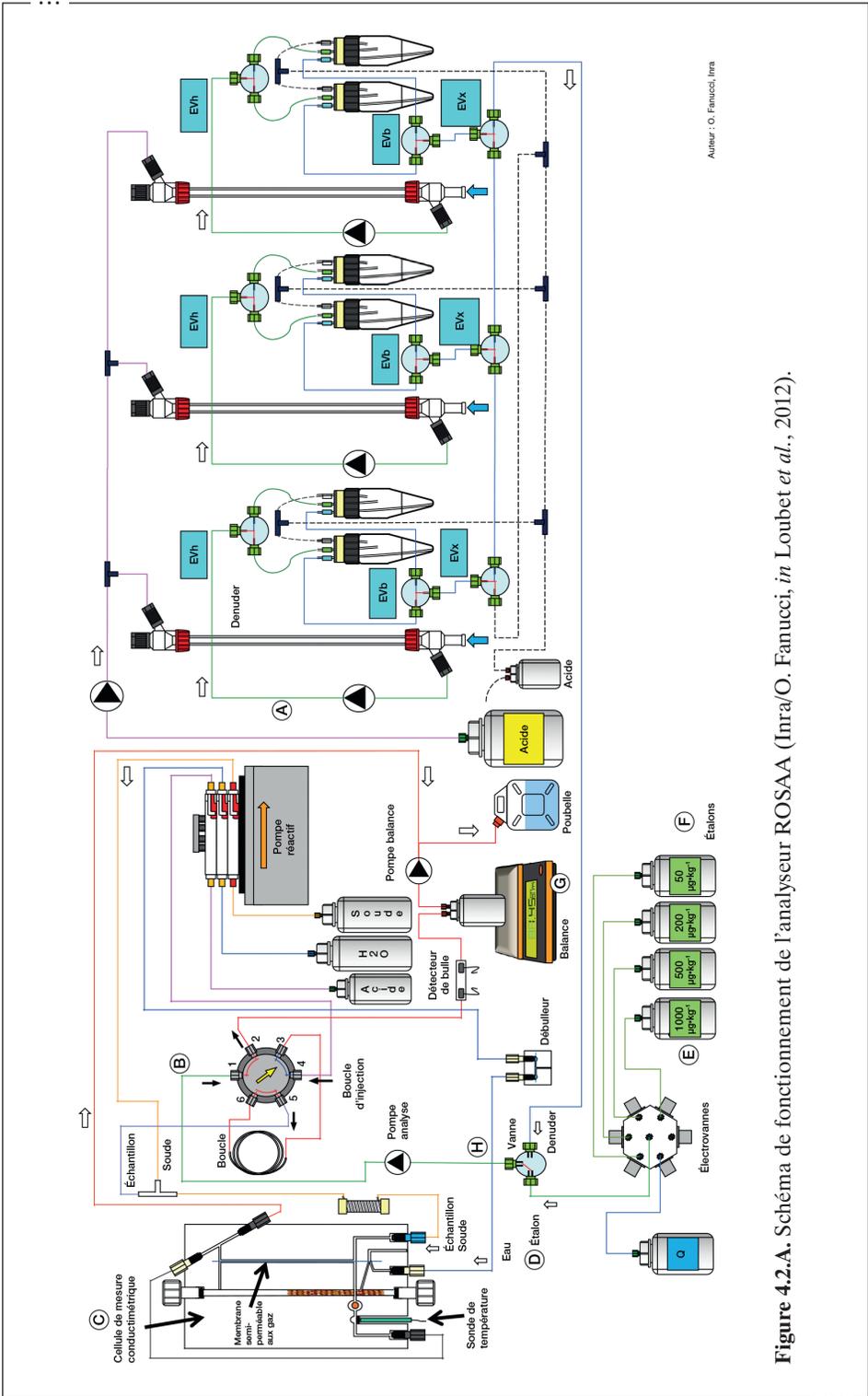


Figure 4.2.A. Schéma de fonctionnement de l'analyseur ROSAA (Inra/O. Fanucci, in Loubet *et al.*, 2012).



Figure 4.2.B. Photo des denuders lors d'une expérimentation réalisée en Inde en 2017 (© Céline Décuq).

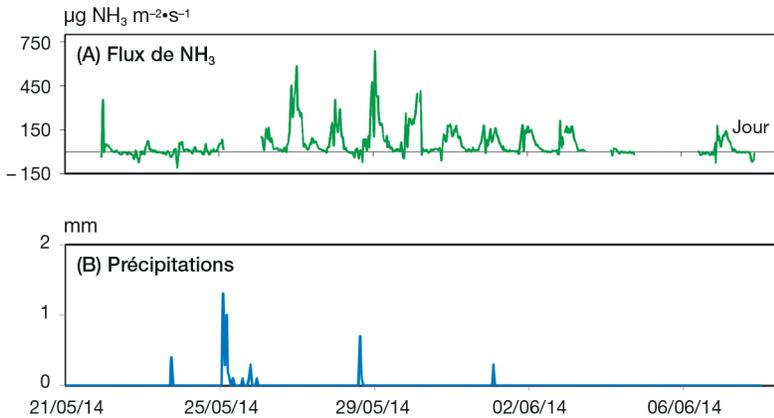


Figure 4.3. Mesures au champ de flux de volatilisation d'ammoniac à partir du système ROSAA lors de l'enfouissement d'une féverole le 22 mai 2014 (A) et précipitations horaires (B).

La méthode des covariances turbulentes et dérivées

Le principe de la mesure d'un flux vertical par covariances turbulentes revient à compter les molécules qui traversent le plan horizontal au niveau du point de mesure en un temps donné. En effet, la quantité de molécules qui traverse ce plan à chaque instant est égale au produit de la concentration du composé C ($\text{mol} \cdot \text{m}^{-3}$) par la composante de la vitesse du vent normale à ce plan W ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$). Si l'on moyenne ce « flux » instantané, on obtient le flux moyen F ($\text{mol} \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) sur la période : $F = \overline{wc}$ (où la barre indique une moyenne temporelle). Afin d'éviter les erreurs dues aux imprécisions et aux dérives de zéro des capteurs, l'équation ci-dessus a été développée pour ne faire apparaître que les fluctuations de vitesse de vent et de concentration autour des moyennes (w' et c' ne sont pas affectées par les dérives). On a pu ainsi établir que $F = \overline{w'c'}$ (Aubinet *et al.*, 2000). Cependant, plusieurs hypothèses fondamentales sont nécessaires pour l'établissement de cette loi, et la détermination de c' qui nécessite la mesure de concentration à haute fréquence est rarement dénuée de biais. Deux hypothèses fondamentales en particulier vont limiter son application : d'une part, l'écoulement doit être homogène horizontalement (pour que $\overline{w} = 0$) et stationnaire (pour que c' et w' soient définis) sur une période de 15 minutes à 2 heures, c'est-à-dire qu'il n'y ait pas de variations brusques du climat ou de l'écoulement d'air au cours de ces périodes. Les lecteurs désireux d'approfondir ces notions peuvent se référer à Mahrt (2010). D'autre part, la mesure doit être faite à une fréquence « nettement » supérieure à la fréquence des tourbillons qui transportent la masse (typiquement 10 Hz) et sur une durée suffisante pour englober les tourbillons aux fréquences les plus basses. Une littérature très abondante est disponible concernant la méthode des covariances turbulentes (on pourra par exemple lire Baldocchi, 2003). Un exemple de mesure de flux de COVb, utilisant des analyses rapides par PTR-MS, est présenté sur la figure 4.4.

Il existe de nombreuses dérivées de la méthode des covariances pour s'adapter aux contraintes des analyseurs qui ne peuvent mesurer à cette fréquence élevée ou qui mesurent successivement un grand nombre de composés (spectromètres de masse) : la méthode Relaxed Eddy Accumulation (REA), qui consiste à capturer le gaz à analyser en fonction du signe de la composante verticale du vent dans deux contenants (sacs, pistons...) qui sont ensuite analysés toutes les 5 à 30 minutes ; les méthodes Disjunct Eddy Covariance (DEC) et Virtual Disjunct Eddy Covariance (vDEC), qui consistent à échantillonner l'air toutes les 1 à 10 secondes sur une durée de l'ordre de 100 millisecondes et à analyser successivement ces échantillons.

La méthode des covariances turbulentes est une méthode de référence aujourd'hui pour le CO₂, l'eau et la chaleur sensible. Elle a été évaluée à de nombreuses reprises à l'aide d'approches théoriques ou pratiques (Ueyama *et al.*, 2012). Malgré tout, il n'existe qu'un nombre limité d'études comparant cette méthode à d'autres techniques, et il reste des questions importantes sur les possibles biais de la méthode des covariances turbulentes et de ses dérivées, notamment en raison des pertes du signal à hautes fréquences liées à un système de prélèvement ou à un analyseur trop lent (Massman, 2000). Cette question est cruciale pour les composés réactifs ou très solubles comme l'ammoniac, qui sont adsorbés et se désorbent sur les tubes (Whitehead *et al.*, 2008). La non-stationnarité de l'écoulement et la zone d'origine du flux mesuré sont également une source d'incertitude importante, mais que l'on peut

identifier par des tests standard (Aubinet *et al.*, 2000) et des modèles d'empreintes (Kljun *et al.*, 2015). Enfin, la composante basse fréquence du flux liée à la topographie du site (vallonné, plat) et la façon dont cette topographie est prise en compte dans le traitement des données peuvent engendrer des incertitudes.

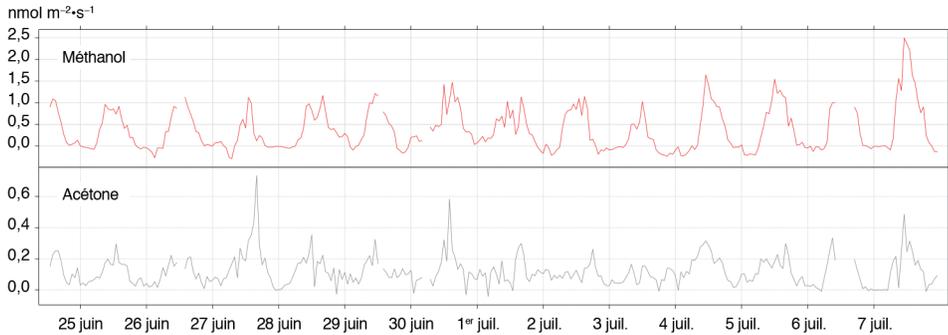


Figure 4.4. Exemple de flux de composés organiques volatils mesurés par la méthode des covariances turbulentes avec un PTR-Qi-TOF-MS (spectromètre à transfert de protons et temps de vol) sur une parcelle de blé à maturité en 2016 (parcelle ICOS de Grignon).

Mesure des émissions depuis les bâtiments d'élevage

Bien que cet ouvrage ne se focalise pas sur les émissions par les bâtiments d'élevage, cette courte section rappelle ici les éléments clés pour la mesure des émissions de ces systèmes. En effet, sur une exploitation d'élevage, une grande partie de l'azote excréte par les animaux (variable suivant les productions et les conditions d'élevage) est volatilisée dans les bâtiments d'élevage sous forme gazeuse (essentiellement ammoniac) (Peyraud *et al.*, 2012). Au cours de ces vingt dernières années, la communauté scientifique a contribué au développement de méthodes de mesure des émissions des bâtiments d'élevage (Hassouna *et al.*, 2015). Ces méthodes peuvent être divisées en trois catégories et distinguées en fonction de certaines caractéristiques métrologiques (instruments, gaz ciblés, diversité des mesures, durée et continuité des enregistrements, coût, complexité, compartimentation, perturbation du milieu).

La première catégorie comprend les méthodes de mesure d'émissions « à la source », qui reposent sur la quantification des débits et des concentrations pour des sources confinées (méthodes non intrusives, globales), ou les méthodes qui s'appuient sur l'utilisation de chambres statiques ou dynamiques (intrusives et locales). Les premières dérivent de celles utilisées dans l'industrie et sont particulièrement adaptées pour les mesures d'émissions dites « canalisées », comme par exemple celles des bâtiments à ventilation dynamique avec cheminées (Zong *et al.*, 2015). Les secondes ont dû être mises au point pour étudier les émissions « surfaciques » comme celles des fosses à lisier (Balsari *et al.*, 2007) ou des aires d'exercice en stabulation bovine (Baldini *et al.*, 2016). Couplées à des modèles d'extrapolation, elles donnent accès aux émissions de l'effluent.

La deuxième catégorie concerne les méthodes dites « indirectes », qui permettent d'estimer les émissions à distance des sources sans perturber leur fonctionnement

(méthodes non intrusives, globales). Les émissions sont estimées à partir de mesures de concentrations à distance de la source associées à des mesures micrométéorologiques. Les flux sont ensuite estimés à partir de ces mesures et de modèles de dispersion utilisés pour calculer les coefficients de dispersion (McGinn *et al.*, 2016). Ces techniques sont assez contraignantes à mettre en œuvre, sont très liées aux conditions météorologiques et ne sont pas adaptées à l'enregistrement de dynamiques d'émission sur un cycle d'élevage. Enfin, si elles sont utilisées pour caractériser l'émission globale au niveau d'une surface présentant des sources d'émissions hétérogènes et diffuses, elles ne permettront pas de distinguer les émissions propres à chacune des sources.

La dernière catégorie relève des stratégies qui reposent sur des bilans massiques des éléments des composés volatils comme le carbone et l'azote. Ces méthodes ne reposent pas sur une mesure directe des émissions, mais sur une estimation à partir de l'évolution dans le temps des stocks d'éléments. Elles sont plus faciles à mettre en œuvre que les méthodes décrites précédemment. Cependant, elles ne permettent pas d'avoir accès à des valeurs d'émissions par espèce chimique (N-NH₃, N-N₂O, N₂, C-CH₄ et C-CO₂), ni de cinétique temporelle en lien avec des paramètres techniques (agronomique ou zootechnique) ou avec les variations climatiques. La précision des bilans de masse dépendra des informations techniques et zootechniques disponibles, mais aussi de la caractérisation des effluents, et, dans certains cas, de la durée de la période concernée sur laquelle sont réalisés les calculs (Hassouna *et al.*, 2015).

Ces méthodes suivent l'évolution des matériels de mesure et nécessitent des adaptations à la variabilité des systèmes d'élevage par exemple. Pour certaines, on trouvera des protocoles détaillés ayant fait l'objet d'un consensus national ou international qui permet d'avancer vers la standardisation (de Klein *et al.*, 2012). Néanmoins, les différents objectifs motivant cette standardisation ne peuvent être atteints que si les incertitudes sur les mesures sont évaluées.

► Méthodes d'attribution des sources

Les mesures présentées dans les deux sections précédentes permettent de mesurer les flux des composés identifiés émis depuis, ou déposés vers, les systèmes agricoles. Dans cette section, nous nous intéressons aux méthodes permettant d'identifier et de quantifier la contribution des sources d'origine agricole à la pollution atmosphérique. La première méthode (mesure de la capacité oxydante) permet de quantifier l'impact des couverts agricoles sur la pollution atmosphérique et d'identifier ainsi les manques de connaissances sur les composés qui sont émis. La seconde méthode permet d'attribuer l'origine de la pollution mesurée en un point particulier et ainsi de quantifier la part de l'agriculture dans cette pollution.

Identification des sources manquantes par mesure de la réactivité OH

Parmi les polluants atmosphériques émis par différentes sources (qu'elles soient d'origine naturelle ou anthropique, y compris les émissions agricoles), la famille

chimique des composés organiques volatils (COV) est impossible à caractériser de manière exhaustive. En effet, des études récentes suggèrent qu'il existe plus de 10^4 - 10^5 COV présents à l'état de trace dans l'atmosphère (Golstein et Galbally, 2007). Même si les méthodes de mesure de plus en plus pointues permettent de mesurer *a priori* les COV les plus significatifs, il reste primordial de s'assurer que des composés potentiellement importants pour la chimie atmosphérique ne sont pas ignorés, car non mesurés par les techniques existantes. Une méthode permettant ce diagnostic est celle de la mesure dite « de la réactivité OH ». En effet, le radical hydroxyle OH est le principal oxydant de la troposphère et le puits principal de la grande majorité des COV (ainsi que d'autres espèces telles que le méthane ou le monoxyde de carbone). En mesurant la réactivité OH totale et en la comparant à celle calculée à partir de la somme des réactivités des composés mesurés individuellement (voir équation ci-dessous, avec X_i tout composé réagissant avec OH et k_i la constante cinétique associée), il est ainsi possible de vérifier que l'ensemble des composés importants pour la réactivité OH atmosphérique est bien mesuré.

$$\text{Réactivité} = \sum_i k_{i(X+OH)} [X_i] \quad (4.1)$$

S'il y a une différence significative entre réactivité mesurée et calculée, on parle de réactivité manquante. Les études réalisées ces dix dernières années montrent une réactivité manquante significative (jusqu'à 80 %) dans de nombreux environnements, en particulier dans les écosystèmes émetteurs de composés biogéniques (Nölscher *et al.*, 2016), donc y compris potentiellement dans des écosystèmes gérés.

Différentes méthodes ont été mises au point pour la mesure de la réactivité OH totale (qui représente aussi l'inverse du temps de vie d'OH) et sont décrites dans la récente publication de Yang *et al.* (2016). Parmi elles, la technique dite de « Comparative Reactivity Method » (CRM) est particulièrement adaptée pour les équipes spécialisées dans les mesures de COV, puisqu'elle utilise comme détecteurs des instruments courants dans la communauté de chimie atmosphérique (PTRMS, chromatographie en phase gazeuse). Mise au point à la fin des années 2000 par Sinha *et al.* (2008), cette méthode est basée sur l'injection d'un traceur (n'existant pas dans l'atmosphère réelle, mais réagissant avec OH selon une constante cinétique connue) dans un réacteur en verre où sont produits artificiellement des radicaux OH. L'injection alternative d'air zéro et d'air ambiant (dont les espèces réactives vont réagir avec OH) dans le réacteur va permettre de calculer par différence la réactivité de l'air ambiant.

Cette méthode CRM a été déployée plusieurs fois sur le terrain et pour la première fois sur une culture agricole (blé et colza) dans le cadre du projet Ademe-COV3ER (collaboration entre le Laboratoire des sciences du climat et de l'environnement et l'UMR Écosys de l'Inra) au printemps 2016 puis 2017. À titre d'illustration, la figure 4.5 montre que dans un environnement dominé par les émissions d'isoprène, un bon recouvrement de la réactivité mesurée et calculée de jour est observé. On note en revanche une réactivité manquante, durant certaines périodes, qui pourrait être due à des espèces non mesurées et liées entre autres à l'oxydation des composés biogéniques (Zannoni *et al.*, 2016). La mesure de la réactivité OH constitue donc un apport important dans la caractérisation des sources de COV, en particulier celles très peu documentées comme le sont les sources d'origine agricole.

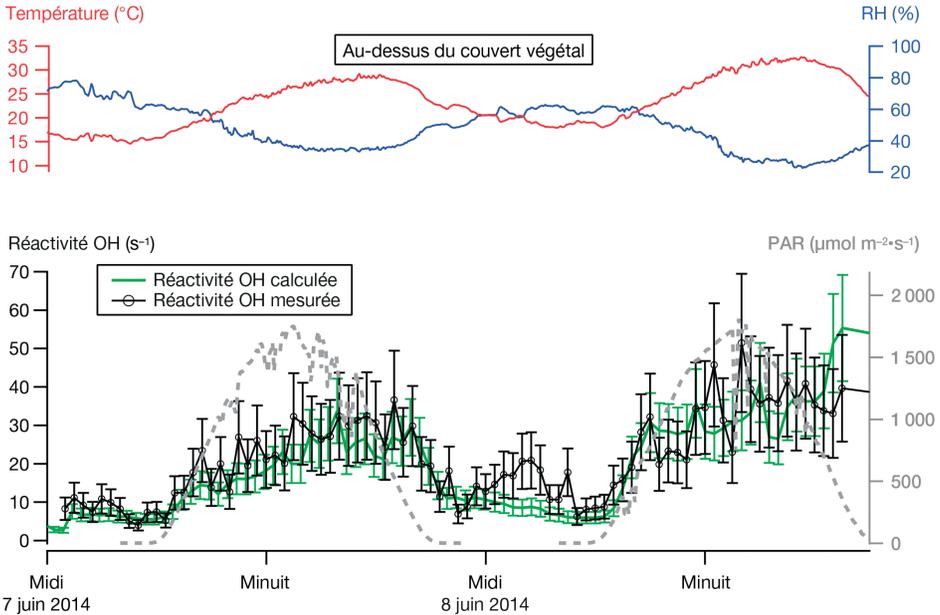


Figure 4.5. Réactivité OH totale mesurée (en noir) et réactivité OH calculée (en vert) à l'Observatoire de Haute-Provence en juin 2014, sur une forêt de chênes blancs. Les conditions atmosphériques — température, humidité relative (RH) et rayonnement photosynthétique (PAR) — sont également reportées (traduit de Zannoni *et al.*, 2016) (sous la licence Creative Commons 3.0).

Attribution des sources de polluants par PMF et isotopie

Plusieurs familles de modèles mathématiques complémentaires permettent d'identifier et d'estimer les contributions des différentes sources d'émission de polluants à la composition de l'air (on parle ici d'attribution des sources) : les modèles de dispersion dits « sources orientées » utilisant les émissions des sources basées sur des inventaires, et les modèles dits « récepteurs orientés », basés sur des mesures de concentrations sur un site récepteur. Les modèles « récepteurs orientés » tentent d'identifier des signatures de sources en s'appuyant sur des mesures de composés chimiques observés dans l'environnement ambiant (le site d'étude). Les modèles récepteurs les plus couramment utilisés sont le Chemical Mass Balance (CMB), nécessitant une très bonne connaissance des profils chimiques des sources à l'émission, mais pouvant être appliqués sur un échantillon unique, et les modèles de type Positive Matrix Factorization (PMF), qui ne requièrent pas *a priori* cette connaissance détaillée, mais nécessitent un grand nombre d'échantillons. Durant la dernière décennie, le nombre d'études utilisant les modèles « récepteurs orientés » n'a cessé d'augmenter. Afin d'harmoniser les méthodologies d'attribution des sources par l'utilisation de ces modèles, un guide a été proposé en 2014, établi par de nombreux acteurs dans un cadre européen (Belis *et al.*, 2014). En outre, un exercice de comparaison d'application de ces modèles sur un même jeu de données (composition

chimique des particules en suspension) a été organisé en 2016 à l'échelle européenne de manière à évaluer la dispersion potentielle des résultats. L'outil Delta-SA a ainsi été élaboré et rendu accessible en ligne pour l'évaluation des modèles d'attribution des sources⁴².

Les modèles de type PMF (Paatero et Tapper, 1993) s'appuient sur le principe de conservation de la masse. Il s'agit alors de résoudre le bilan de masse de chacune des espèces chimiques choisies présente sur chacun des prélèvements au site récepteur :

$$x_{ij} = \sum_{k=1}^p g_{ik} f_{kj} + e_{ij} \quad (4.2)$$

Avec x_{ij} la concentration de l'espèce j dans l'échantillon i , g_{ik} la contribution de la source k à l'échantillon i , f_{kj} la concentration de l'espèce j pour la source k , e_{ij} la partie résiduelle, non expliquée par le modèle, p le nombre de sources d'émission. Pour être interprétable physiquement, la non-négativité des facteurs est une contrainte intégrée aux calculs. Par son principe de résolution (minimisation de la part résiduelle par les moindres carrés point par point), les résultats du PMF sont quantitatifs (pour les espèces primaires peu réactives). En outre, ce modèle intègre les incertitudes de toutes les observations pour tenir compte du niveau de confiance attribué aux données de concentration.

Cette méthode réalise donc une analyse factorielle en décomposant une matrice de données, correspondant aux concentrations mesurées, de taille $n \times m$, où n est le nombre d'échantillons et m le nombre d'espèces chimiques, en deux matrices : l'une correspondant aux contributions des sources d'émission p (appelées facteurs) pour chaque échantillon n , de taille $(n \times p)$, et l'autre correspondant aux profils des sources (composition chimique), de taille $(p \times m)$. Cette approche effectue donc une déconvolution en différents facteurs en associant dans chacun des facteurs des fractions de masse de chacune des espèces chimiques, dont les concentrations évoluent temporellement de façon semblable. Ce sont les connaissances géochimiques (composition du facteur, identification des traceurs, adéquation avec les cycles saisonniers ou les épisodes spécifiques connus, etc.) qui permettent d'attribuer *a posteriori* une signature de source ou de processus d'émission à chacun des facteurs.

Les modèles de type PMF sont majoritairement appliqués à la spéciation des particules. La méthodologie s'applique aussi aux dépôts, aux polluants organiques persistants (POP, HAP...), aux COV ou encore à la distribution en taille des particules. Une attention particulière doit être portée sur la réactivité potentielle des espèces (en particulier pour les gaz), puisque le principe de conservation de masse d'une espèce entre la source et le récepteur peut ne plus être respecté. Néanmoins, cette approche a permis d'identifier qualitativement des signatures de sources ou de processus (voir par exemple Sauvage *et al.*, 2009).

Le succès de ces approches repose sur une stratégie expérimentale adaptée. Le premier élément déterminant est la représentativité du site d'étude. Le choix des espèces est également important. Il devra comprendre des traceurs spécifiques des sources recherchées. Il pourra être intéressant de combiner différentes informations comme la spéciation des gaz et des aérosols, ou la prise en compte de données

42. <http://source-apportionment.jrc.ec.europa.eu/>.

auxiliaires comme les paramètres micrométéorologiques. Dans tous les cas, le nombre d'observations doit être suffisant pour discerner les co-variations d'espèces et identifier des signatures de sources.

Il existe plusieurs variantes du PMF (PMF/ME2 SoFi, EPA PMF 5,0) et des développements de ces modèles sont en cours en permanence. La figure 4.6 présente les résultats d'un travail dans la vallée de l'Arve, qui tire parti de ces possibilités (Chevrier, 2016).

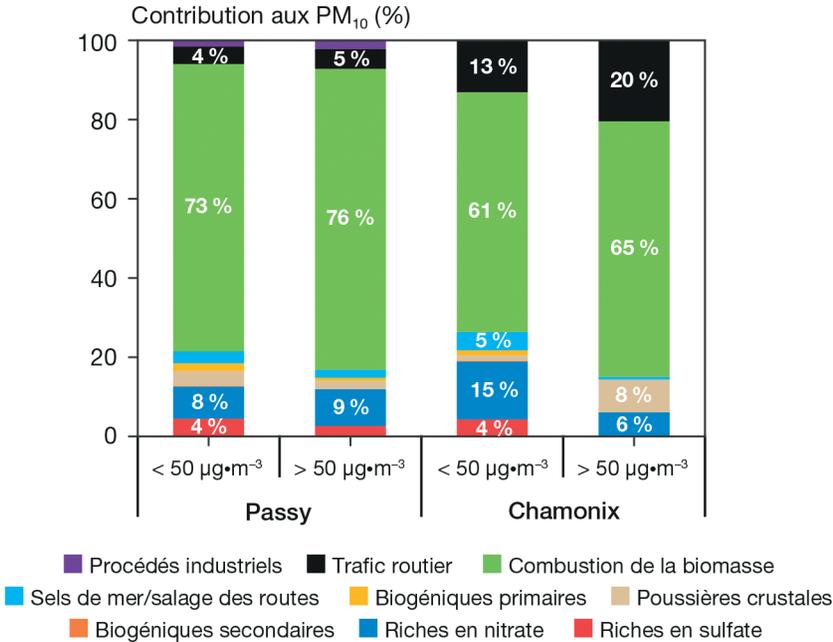


Figure 4.6. Exemple de résultat d'attribution des sources pour un milieu faiblement impacté par l'agriculture.

Contributions des sources aux PM₁₀ en période hivernale pour deux sites de la vallée de l'Arve, estimées par une approche de modélisation source récepteur PMF/ME-2. Les données ont été obtenues dans le cadre du programme Decombio (Ademe) entre novembre 2013 et octobre 2014. Le jeu de données intègre des mesures par aethalomètre et des données issues de l'analyse du radiocarbone. On présente les moyennes hivernales (hiver 2013-2014) pour les cas hors épisodes de pollution (PM₁₀ < 50 µg · m⁻³) et lors d'épisodes de pollution (PM₁₀ > 50 µg · m⁻³). Ces résultats montrent que la source « combustion de la biomasse » est la source majoritaire en hiver dans ces environnements, et que son importance croît lors des épisodes de dépassement du seuil de 50 µg · m⁻³.

À notre connaissance, il n'existe pas actuellement d'étude de type PMF identifiant un facteur « sources agricoles » spécifique grâce à ces techniques. Les raisons sont sans doute multiples. D'une part, les sources agricoles sont très variées, et leurs profils chimiques sont tout autant variables, peu connus et peu caractérisés par des traceurs spécifiques. Pour les sources qui pourraient être bien identifiées (comme les épandages de PPP), il n'existe pas d'étude PMF dédiée qui intègre les analyses de ces molécules. D'autre part, des espèces comme les poussières crustales caractéristiques des travaux du sol sont aussi émises par d'autres sources, ce qui nuit à l'élaboration

d'un facteur « agricole » bien identifié. Enfin, une partie importante des émissions agricoles étant également présente sous forme gazeuse, une approche PMF nécessiterait de combiner les espèces gazeuses et les espèces particulaires, ce qui reste peu développé actuellement et demande des précautions particulières (telles que des mesures simultanées, une homogénéité des jeux de données, la réactivité potentielle des espèces). Finalement, ces modèles donnent actuellement des résultats très intéressants et prometteurs pour l'étude des sources liées aux activités agricoles, compte tenu des évolutions analytiques et de l'accès à de nouvelles molécules traceurs, mais aussi de l'élaboration et de l'harmonisation des modèles utilisés.

► Méthodes de mesure de la réactivité des composés atmosphériques

Dans la section précédente, nous avons exposé les méthodes permettant d'identifier l'origine d'une pollution donnée et de diagnostiquer une situation actuelle ou passée. Dans cette section, nous nous attachons à décrire les méthodes permettant de caractériser l'impact d'un ou plusieurs polluants primaires sur le niveau de pollution atmosphérique par le biais des réactions chimiques. C'est cette information qui permet *in fine* d'identifier les émissions sur lesquelles il faut agir en priorité pour réduire la pollution de l'air. Cette information est également cruciale afin d'évaluer par le biais de modèles de chimie de l'atmosphère l'efficacité des mesures de réduction des émissions. Ainsi, par exemple, Pozzer *et al.* (2017) montrent que la réduction des émissions d'ammoniac de 50 % en Europe et en Amérique sans réduction simultanée des émissions d'oxydes d'azote par les transports entraîne une baisse limitée (~ 10 %) de la concentration en PM_{2,5}. Un autre exemple montre que l'effet d'attaques d'herbivores sur des résineux en Europe entraînerait une émission de composés organiques très réactifs conduisant à une augmentation significative des concentrations en PM_{2,5} (Bergstrom *et al.*, 2014). Ces deux études montrent bien l'importance des mesures de réactivité des composés atmosphériques gazeux ou particulaires pour la prévision de l'impact des changements climatiques et des usages et pratiques agricoles sur la qualité de l'air.

Mesure de la réactivité des composés atmosphériques en chambres de simulation atmosphérique

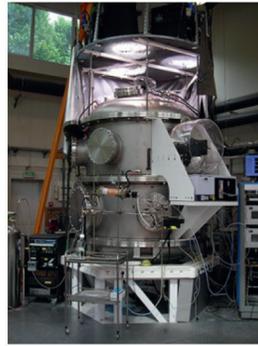
Comme indiqué dans l'introduction, il s'agit ici de comprendre les processus physico-chimiques afin d'être en mesure de décrire et de simuler l'évolution de l'atmosphère et l'impact de la biosphère sur celle-ci. Facile à dire... mais très difficile à faire ! En effet, appréhender la complexité de l'atmosphère est un véritable défi, requérant une instrumentation très spécifique telle que les chambres de simulation atmosphérique décrites ci-après. Il s'agit de réacteurs de grands volumes permettant de recréer au laboratoire des conditions contrôlées proches de celles effectivement présentes dans l'air ambiant (figure 4.7).

Les chambres de simulation atmosphérique sont des enceintes dont les parois sont en téflon, en quartz, en pyrex ou en acier inoxydable. Ces installations sont équipées

des outils et des moyens analytiques les plus modernes pour la métrologie des gaz et aérosols, comme les méthodes spectroscopiques dans l'infrarouge et l'ultraviolet-visible, la spectrométrie de masse, la chromatographie (gaz et liquide) ou certains analyseurs spécifiques pour des gaz et particules. Les études en chambre de simulation atmosphérique consistent à injecter les réactifs à étudier dans les enceintes et à suivre leur évolution temporelle ainsi que celle des produits de leurs dégradations. Les oxydants atmosphériques sont soit injectés directement dans l'enceinte avec les réactifs, comme c'est le cas avec l'ozone, soit produits *in situ* par réactions chimiques, comme dans le cas des radicaux nitrates (NO_3), ou par photolyse, comme dans le cas des radicaux hydroxyles (OH). Les chambres de simulation atmosphérique peuvent utiliser le rayonnement solaire comme source d'irradiation (par exemple Helios, Euphore) ou des lampes permettant de simuler le rayonnement solaire (par exemple Cesam).



Chambre de simulation
atmosphérique « Helios »,
Orléans



Chambre de simulation
atmosphérique « Cesam »,
Paris-Créteil

Figure 4.7. Photos des chambres de simulation Cesam et Helios.

Lisoprène (2-méthylbuta-1,3-diène) est le COVb le plus émis à l'échelle de la planète, avec une émission annuelle globale estimée entre 440 et 660 Tg C (Guenther *et al.*, 2006). Lisoprène est une espèce insaturée, comportant donc des doubles liaisons $\text{C}=\text{C}$, comme presque toutes les espèces biogéniques. Une fois injecté dans une chambre de simulation (comme celle représentée en figure 4.7), il devient possible d'étudier le mécanisme de conversion chimique de ce composé en présence des différents oxydants atmosphériques (O_3 , OH , NO_3 ...) et les produits formés. Lisoprène réagit rapidement avec le radical OH par addition sur l'un des carbones portant l'insaturation. Outre les études cinétiques, les travaux en chambre de simulation atmosphérique ont permis d'identifier les produits primaires principaux de la dégradation de l'isoprène, c'est-à-dire la méthacroléine (MACR), la méthyl vinyl cétone (MVK), le formaldéhyde (HCHO) et le 3-méthylfurane (3-MF), qui ont été retrouvés sur le terrain (par exemple Karl *et al.*, 2009), illustrant l'aptitude des chambres de simulation à reproduire des environnements réels.

Comme tout processus d'oxydation troposphérique de COV, en présence suffisante d'oxyde d'azote (NO_x), la photo-oxydation de l'isoprène conduit à la formation de quantités importantes d'ozone troposphérique à l'échelle régionale

(Wiedinmyer *et al.*, 2001). Par ailleurs, les produits d'oxydation majoritaires issus de la photo-oxydation de l'isoprène étant volatils, il a été considéré pendant des années que l'isoprène ne contribuait pas de manière significative à la formation des aérosols organiques secondaires dans la troposphère (Pandis *et al.*, 1991). Cependant, plusieurs études en site naturel (Claeys *et al.*, 2004) ou de suivi de mesures en chambre de simulation atmosphérique (Boge *et al.*, 2006) ont confirmé la contribution significative de l'isoprène aux aérosols organiques secondaires atmosphériques.

La réactivité des PPP dans l'atmosphère a fait l'objet d'un certain nombre d'études en chambres de simulation atmosphérique. Ainsi, les déterminations des constantes de vitesse de réaction ont montré qu'une grande partie des PPP pouvaient réagir avec les radicaux OH et que ce processus représentait un puits potentiellement important pour les PPP dans la troposphère. La photolyse par le rayonnement solaire semble être aussi un processus important, notamment pour des substances actives comme la trifluraline et la chloropicrine, pour lesquelles ce processus est le puits atmosphérique dominant. Des produits gazeux et particulaires ont été détectés dans certaines études, ce qui suggère des mécanismes de dégradation par photolyse pour ces espèces chimiques.

In fine, les chambres de simulation représentent un ensemble d'outils permettant d'apporter des connaissances nécessaires aux simulations numériques de chimie atmosphérique. Elles correspondent donc à un maillon essentiel de la chaîne de connaissance pour comprendre l'évolution de la qualité de l'air en réponse aux évolutions des émissions de polluants primaires par l'agriculture liés aux changements d'usages et de pratiques agricoles ainsi qu'aux réponses des agrosystèmes aux changements climatiques.

Mesure de la réactivité des composés atmosphériques en conditions réelles

Le paragraphe précédent a présenté les moyens existants pour caractériser au laboratoire la réactivité des composés atmosphériques. Toutefois, la complexité de la composition atmosphérique dépasse ce qu'il est possible de simuler en conditions contrôlées. C'est pourquoi il est important de mesurer *in situ* cette réactivité.

Une méthode de mesure directe de la réactivité consiste à évaluer la différence de flux d'un composé entre deux niveaux de mesure. En effet, moyennant quelques précautions, cette mesure donne la quantité de composé produit ou consommé lors de son transport entre les deux niveaux. C'est ce que montrent Finco *et al.* (2018) pour le NO et l'ozone. Il peut également être envisagé dans certains cas de confronter les mesures à un modèle de transferts physiques. De fortes différences entre les sorties du modèle et les observations pourront être interprétées comme résultant de réactions chimiques (Lamaud *et al.*, 2009 ; Kammer *et al.*, 2019).

Une autre mesure de réactivité au champ consiste à utiliser directement sur le terrain des chambres de simulation atmosphérique, comme décrit dans la section précédente. Comme en laboratoire, il s'agit de faire réagir ces composés avec une quantité connue d'ozone, de radicaux OH ou de NO₃. L'observation de la décroissance

des radicaux OH, de l'ozone et des gaz réactifs permet alors d'évaluer directement la réactivité en atmosphère réelle et le potentiel de formation d'aérosols (par exemple Lambe *et al.*, 2011).

La réactivité peut aussi avoir lieu sur des échelles de temps plus longues. En effet, si les composés moins réactifs sont faiblement oxydés en champ proche, ils vont réagir au cours de leur transport dans l'atmosphère. Ainsi, plus une masse d'air sera « âgée », c'est-à-dire éloignée de la source, plus celle-ci sera oxydée : on parle alors de vieillissement de la masse d'air. L'âge d'une masse d'air peut de ce fait être évalué en comparant le rapport entre deux composés de réactivités différentes, dont les ratios à la source sont connus. Par exemple, dans le cadre d'une masse d'air d'origine anthropique, plus le rapport entre benzène et toluène sera grand, plus l'âge de la masse d'air sera élevé (Gelencsér *et al.*, 1997). Pour évaluer le vieillissement d'une population d'aérosols, la méthodologie consiste à rechercher des traceurs d'une réactivité avancée, comme la présence de composés organo-soufrés ou de composés de fort poids moléculaire, ou l'état d'oxydation de la matière organique particulaire (par exemple Kristensen *et al.*, 2016).

Notons qu'actuellement et malgré son importance, il n'existe que très peu de mesures de réactivité concernant le milieu agricole. Il existe donc un réel besoin de développer ce type d'expérimentations de terrain afin de mieux caractériser l'impact de l'agriculture sur la qualité de l'air et le climat.

Le cas de la réactivité des PPP sur les aérosols

La majorité des PPP couramment utilisés sont des composés organiques semi-volatils et sont donc souvent associés à des particules atmosphériques. L'étude de la réactivité hétérogène est d'importance, car les cinétiques de transformation des PPP en phase particulaire peuvent être plus lentes qu'en phase gazeuse (Socorro *et al.*, 2016). Le champ d'investigation est vaste, car le support d'adsorption (origine, surface spécifique, taille des pores, hydrophobicité...) joue un rôle important sur la réactivité. Aujourd'hui, si la plupart des études sont conduites sur des particules minérales comme la silice, le quartz, la kaolinite, le sable d'Arizona (Socorro *et al.*, 2015), il existe également des travaux utilisant des supports organiques (Wang *et al.*, 2012), voire végétaux comme la feuille de pommier (Sleiman *et al.*, 2017). Le composé est déposé sur le support par des méthodes variées (adsorption liquide-solide, adsorption gaz-solide, formation *in situ*). Les particules enrobées de composés sont alors exposées à la lumière ou aux oxydants atmosphériques (ozone, radicaux OH et NO₃) en présence ou non d'humidité. Les constantes de second ordre et le temps de demi-vie des produits sont déterminés à partir de l'évolution des concentrations des particules, des radicaux et des produits de réaction. Les constantes cinétiques obtenues peuvent parfois varier de plusieurs ordres de grandeur en fonction des conditions comme la nature du support, l'humidité, le taux de recouvrement du PPP sur l'aérosol, mais aussi des montages expérimentaux ou de la méthode de calcul. La modélisation de ces processus est encore en phase de développement. Elle nécessitera d'attendre un plus grand nombre d'études pour produire des références incontestables (Socorro *et al.*, 2017).

► Méthodes de mesure futures

Les sections précédentes ont présenté les moyens existant pour caractériser les émissions par les surfaces agricoles et le potentiel de formation de polluants secondaires. Nous nous attacherons dans ce chapitre à décrire les évolutions technologiques récentes qui ont un fort potentiel pour mieux évaluer les sources agricoles de polluants atmosphériques et l'impact des pollutions atmosphériques sur les surfaces agricoles. Parmi celles-ci, la télédétection de l'ammoniac et des particules, mais aussi la modélisation inverse permettent de contraindre les émissions par des mesures spatialisées, tandis que l'évolution des techniques de mesure, comme la spectrométrie de masse et la spectroscopie, permet de mesurer davantage de composés, en plus faible quantité, plus rapidement et avec des instruments plus compacts.

Télédétection des concentrations d'ammoniac

L'ammoniac est, avec les PPP, le composé atmosphérique le plus caractéristique des activités agricoles intensives. Par ailleurs, son temps de vie dans l'atmosphère est court et sa concentration est donc très variable spatialement. Les mesures de la concentration atmosphérique en NH_3 à partir de l'espace sont possibles depuis seulement quelques années (Coheur *et al.*, 2009). Ils permettent d'avoir une couverture spatiale inatteignable par des capteurs classiques et essentielle à l'évaluation de l'impact de l'agriculture sur la qualité de l'air. À ce jour, cinq sondeurs atmosphériques embarqués, américains et européens, peuvent mesurer l'ammoniac : les sondeurs US AIRS/AQUA et CrIS/Suomi-NPP (en orbite depuis 2002 et 2011) et la famille des trois sondeurs IASI (Clerbaux *et al.*, 2009) embarqués à bord des plateformes EU Metop-A, Metop-B et Metop-C (lancées en 2006, 2012 et 2018) qui combinent à la fois une bonne résolution spectrale, une bonne couverture spatiale, et qui permettent de produire des cartes à l'échelle globale (figure 4.8). Ces instruments utilisent tous le rayonnement infrarouge émis par la surface terrestre, et enregistrent les modulations du signal quand il traverse l'atmosphère. Comme les gaz qui composent l'atmosphère ont chacun une signature spectrale spécifique, la concentration du gaz dans la colonne atmosphérique mesurée peut être déduite, en analysant le signal reçu par le satellite. Ce composé absorbe, dans une région spectrale particulière, la fenêtre atmosphérique, localisée entre 8 et 12 μm , et qui a comme caractéristique d'être transparente au rayonnement infrarouge (hormis une bande d'absorption intense associée à l'ozone autour de 10 μm). Dès lors, même si sa concentration atmosphérique est relativement faible par rapport à d'autres gaz, son spectre d'absorption est très clairement visible et permet de mesurer sa concentration, puis de dériver les flux d'émission à l'aide de modèles d'inversion *ad hoc* (voir section « Évaluation des sources par modélisation inverse. Exemple de l'ammoniac »). Ces dernières années, des versions successives de l'algorithme de traitement qui permet d'extraire les concentrations à partir des luminances observées par IASI ont été développées et sans cesse améliorées, et validées avec les mesures *in situ* existantes (par exemple Van Damme *et al.*, 2014). Les mesures journalières depuis le lancement de la mission IASI sont disponibles *via* la base de données Aeris⁴³.

43. www.aeris-data.fr.

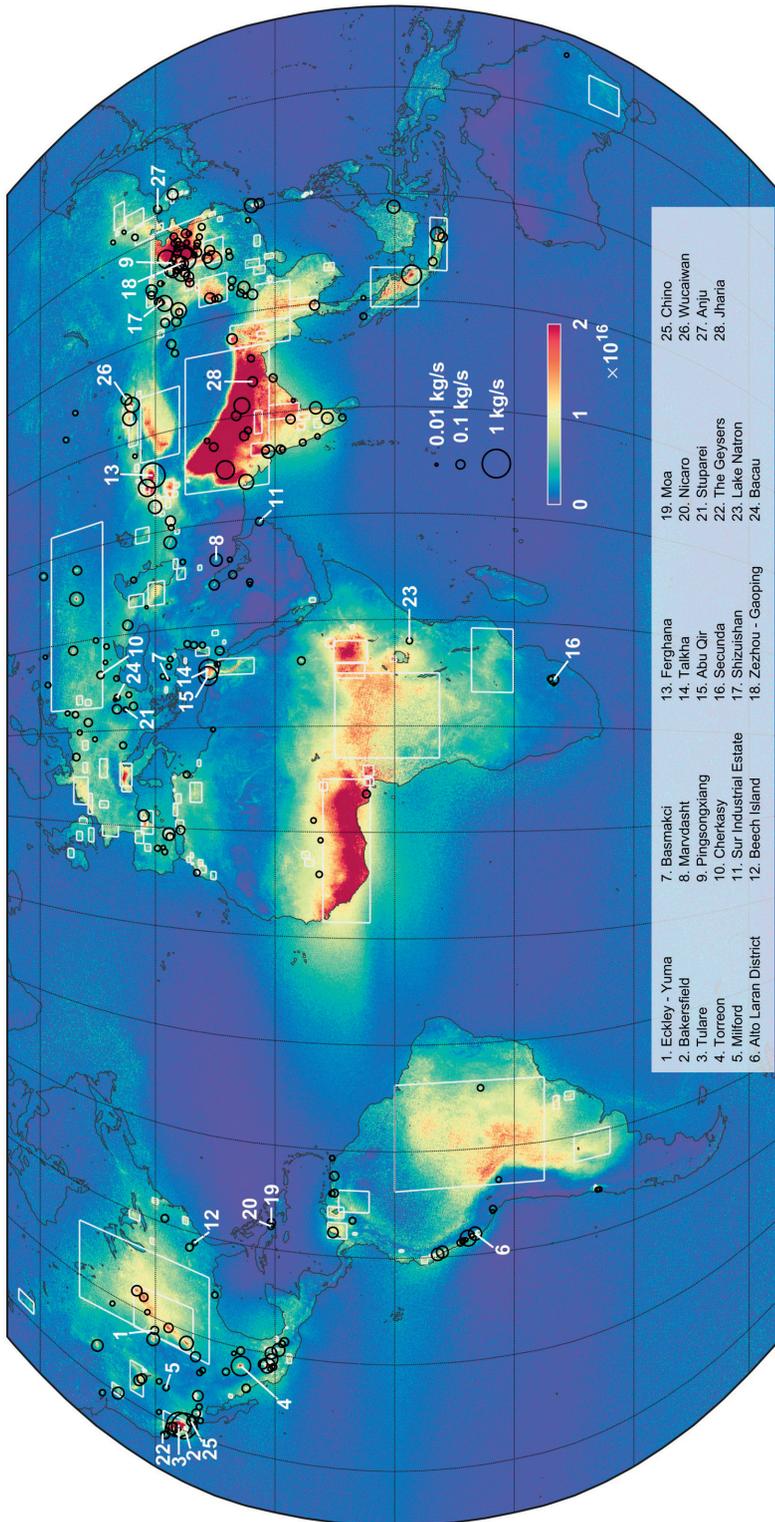


Figure 4.8. Cartographie des contenus en ammoniac de la colonne troposphérique (échelle de couleurs en molécules par centimètre carré) et des points chauds d'émission d'ammoniac (cercles en kg d'ammoniac par seconde) estimés par modélisation inverse (d'après Van Damme *et al.*, 2018).

Téledétection des aérosols par spectrométrie infrarouge

L'agriculture contribue à l'émission d'aérosols primaires et secondaires. Le challenge de la téledétection des aérosols est d'obtenir des informations sur leur taille, leur concentration en nombre et leur composition chimique ou minéralogique (par exemple Mishchenko *et al.*, 2004). Des travaux récents (par exemple Clarisse *et al.*, 2013) montrent que les observations dans le domaine infrarouge ($400\text{-}4\,000\text{ cm}^{-1}$) issues de spectromètres à haute résolution spectrale (AIRS, IASI ou Tanso-FTS) peuvent être exploitées pour détecter des particules minérales émises lors d'épisodes intenses tels que les tempêtes désertiques. Ils présentent l'avantage d'offrir des observations de jour comme de nuit, d'être sensibles à la nature des particules, mais aussi de restituer simultanément la phase gazeuse. Cependant, la détermination des paramètres des aérosols (taille, concentration en nombre, forme, nature chimique) reste encore très délicate, coûteuse en temps, mais surtout dépend très fortement de la qualité des propriétés optiques de ces aérosols disponibles dans les bases de données (par exemple Thomas et Gaultier, 2009).

En effet, deux processus distincts interviennent lors de l'interaction entre un faisceau lumineux et une particule : l'absorption et la diffusion. Le phénomène d'absorption est fortement lié à la nature chimique de la particule et celui de diffusion sera dépendant de la forme et de la taille de la particule. Seules quelques équipes ont réalisé ces expériences sur des particules sous forme d'aérosols en suspension, permettant de caractériser ces processus et d'en tirer des modèles mathématiques pour l'inversion des données satellitaires (Hubert, 2017). C'est toutefois en combinant différentes techniques instrumentales de téledétection (plusieurs gammes spectrales, détection active ou passive, dans l'axe de visée ou hors axe) qu'il sera possible de caractériser les aérosols et d'identifier leurs sources à l'avenir.

Évaluation des sources par modélisation inverse. Exemple de l'ammoniac

Une façon de contrôler les évaluations des émissions d'ammoniac réalisées par des cadastres est d'utiliser des méthodes de modélisation inverses qui se sont développées ces deux dernières décennies. Ces méthodes utilisant des observations atmosphériques pour contraindre les émissions sont potentiellement très performantes pour compléter les approches traditionnelles. Le développement des observations satellitaires et l'amélioration de leur qualité au cours de la dernière décennie ont fortement contribué aux premiers succès de ces méthodes alternatives, en fournissant notamment des informations sur des régions peu documentées par les mesures *in situ* (voir section précédente « Téledétection des concentrations d'ammoniac »). L'approche bayésienne consistant à rechercher la distribution spatiale et temporelle des flux la plus probable compte tenu des flux *a priori*, des observations, du modèle utilisé et des erreurs associées est la plus largement utilisée. Elle a été d'abord appliquée à l'échelle globale pour des composés peu réactifs (CO_2 , CH_4 , CO), puis pour des composés plus réactifs pour contraindre les émissions de NO_x (Miyazaki *et al.*, 2017), de SO_2 (Huneeus *et al.*, 2013), de certains COV biogéniques et anthropiques (par exemple Stavrakou *et al.*, 2015). À l'échelle régionale, ce sont surtout

les émissions de NO_x qui ont été étudiées à partir des colonnes troposphériques de NO_2 (par exemple Mijling *et al.*, 2013). Une étude récente a montré le potentiel des observations d'IASI pour déterminer les émissions agricoles d'ammoniac en combinant celles-ci au modèle de chimie-transport Chimere (Fortems-Cheiney *et al.*, 2016). Cette étude a montré en particulier la possibilité de restituer, avec les observations satellites, les émissions journalières d'ammoniac pendant la période d'épandage d'engrais ciblée et ainsi d'améliorer les capacités du modèle à simuler les concentrations d'ammoniac et des particules ($\text{PM}_{2,5}$) pendant le pic de pollution. L'application des méthodes inverses à l'échelle régionale est amenée à se développer en s'appuyant sur les futurs instruments satellitaires comme TROPOMI et IASI-NG et devrait permettre d'aller vers des résolutions spatiales plus fines et de contraindre de nouvelles espèces avec une meilleure précision.

À noter que ces méthodes inverses sont aussi utilisées à l'échelle locale pour estimer les émissions d'ammoniac au champ (Loubet *et al.*, 2010 ; 2018).

Spectrométrie de masse

Un des points importants pour caractériser les émissions de polluants d'origine agricole concerne la mesure des concentrations des composés en question. La spectrométrie de masse est une technique qui fait des progrès très rapides et qui permet de quantifier un nombre toujours plus important de composés dans des quantités de plus en plus faibles. Cette méthode est en particulier essentielle pour les PPP et les composés organiques volatils.

La spectrométrie de masse dans ses nombreuses variantes (seule ou en combinaison avec des méthodes de séparation préalable, par exemple chromatographie, électrophorèse, mobilité ionique) représente une technique de choix, ultra-sensible, résolue et sélective. Les performances d'un spectromètre de masse se caractérisent en général par sa limite en masse (des appareils pouvant atteindre 10^6 Dalton sont aujourd'hui disponibles), sa résolution (aptitude à séparer des ions de masses proches, les meilleures performances étant de l'ordre de 10^{-6} fois la masse de l'ion), sa précision pour la mesure de la masse ($\sim 10^{-6}$ dans les meilleurs instruments actuellement) et sa sensibilité (capacité à détecter de faibles quantités, souvent dans les domaines attomole/ppb). La spectrométrie de masse se caractérise par une grande diversité d'appareils disponibles sur le marché ou développés au sein des laboratoires de recherche. Cette diversité se retrouve notamment au niveau des sources d'ionisation (ionisation par impact électronique, photo-ionisation, ionisation chimique ou par transfert de proton, électro-ébulisation, etc.) et des analyseurs (quadripolaire, trappe ionique, temps de vol, résonance cyclotronique et transformée de Fourier, secteurs électriques et magnétiques, Orbitrap).

En phase gazeuse, la mesure des COV par spectrométrie de masse par transfert de protons (PTR-MS) avec ionisation chimique douce (basée sur le transfert d'un proton de l'ion hydronium H_3O^+ vers le COV à analyser) a été identifiée comme la méthode la plus robuste, en raison notamment de sa réponse rapide, de sa sensibilité élevée, de l'absence de réactions de l' H_3O^+ avec les principaux constituants de l'air (Ellis et Mayhew, 2014). Dans le domaine de l'ionisation chimique douce (Chemical

Ionization Mass Spectrometry, CIMS), d'autres réactants (NO^+ , O_2^+ , O^- , O_2^- , OH^- , NO_2^- , NO_3^- , iode, acétate, etc.) pour réaliser le transfert de charge vers la molécule à analyser ont été proposés pour permettre de détecter une gamme plus large de composés, et non pas seulement ceux ayant une affinité protonique supérieure à celle de l'eau. Au cours des dernières années, le PTR-MS a été utilisé avec succès pour l'étude des émissions provenant de sources variées liées à l'agriculture et aux pratiques agricoles (Park *et al.*, 2013 ; Bachy *et al.*, 2018). Il a également permis d'identifier les émissions de COV par l'élevage (Yuan *et al.*, 2017 ; Feilberg *et al.*, 2015) ainsi que par différents types de compost (Abis *et al.*, 2018). Les techniques PTR-MS (ou, plus généralement, CIMS) continuent de connaître une dynamique importante d'innovation (Laskin *et al.*, 2018). On peut mentionner les efforts de miniaturisation, le couplage avec la chromatographie ou la mobilité ionique pour la séparation des isomères, ou bien encore l'utilisation de modules d'introduction (*inlet*) spéciaux pour l'analyse simultanée des phases gazeuse et particulaire.

Pour ce qui concerne l'analyse de la phase condensée de l'aérosol atmosphérique, on distingue deux catégories de techniques : les approches *off-line*, dans lesquelles les particules sont déposées sur un substrat qui est ensuite amené pour analyse dans le spectromètre de masse, et les analyses *on-line*, où les particules sont injectées directement (souvent à l'aide de lentilles aérodynamiques pour la sélection en taille) de l'atmosphère dans le vide poussé du spectromètre de masse pour une analyse en temps réel sur particule individuelle ou sur un ensemble de particules. Les approches sur particules individuelles (Single Particle Mass Spectrometry, SPMS) utilisent un module de détection optique pour la sélection en taille (typiquement 0,1 à 3 μm) et un ou plusieurs lasers pour la vaporisation (ablation) des particules et l'ionisation de la matière vaporisée (Murphy, 2007). Cette méthode est très utile pour la classification des particules selon leur type et leur origine, mais reste cependant affectée par une fragmentation importante, due aux densités de puissance élevées nécessaires à l'ablation et à l'ionisation avec un seul laser. Des développements très récents cherchent à pallier ces limites (par exemple Passig *et al.*, 2017). Les techniques de spectrométrie de masse pour l'analyse chimique *on-line* des aérosols atmosphériques gagnent une place de plus en plus importante, et ce pour les émissions liées à l'agriculture au sens large : détection de PPP en traces sur particule individuelle (Barker *et al.*, 2010), caractérisation des aérosols générés pendant la tonte de la pelouse (Drewnick *et al.*, 2008), par les émissions des plantes (Kiendler-Scharr *et al.*, 2009), des arbres (Faiola *et al.*, 2015), des algues (May *et al.*, 2018) ou du sol et de la litière (Faiola *et al.*, 2014).

Spectrométrie infrarouge pour la mesure au sol

La spectroscopie d'absorption optique infrarouge est un moyen de mesure et d'observation non invasif reconnu, mais encore en plein développement. Elle est largement utilisée pour le suivi de la pollution atmosphérique et des gaz à effet de serre (Cui *et al.*, 2012). Les méthodes optiques sont multiples. Elles se distinguent tant par la source que par le détecteur. Elles peuvent exploiter de la lumière cohérente comme le laser ou des sources non cohérentes comme les lampes ou les diodes électroluminescentes (DEL), qui couvrent des domaines plus étendus

en fréquence d'émission. Dans l'infrarouge proche, une révolution est encore en cours autour des « diodes laser à rétroaction distribuée » (Distributed Feedback, DFB). Développées initialement pour les télécommunications sur fibre dans l'infrarouge proche, elles ont vu leur usage étendu à la mesure de molécules en phase gazeuse (Spott *et al.*, 2016). Ces sources particulièrement robustes fonctionnent à la température ambiante dans le proche infrarouge entre 1 et 2,7 μm . Pour l'infrarouge moyen, on a vu apparaître des sources à semi-conducteurs alternatives, nettement supérieures aux diodes à sel de plomb (DSP) : ce sont les « lasers à cascades quantiques » (QCL), fonctionnant en continu et en monofréquence, mais dont le coût est encore élevé, spécialement pour les modèles fonctionnant à la température ambiante.

La lumière transmise par un milieu de longueur L éclairé avec une intensité I_0 suit une loi de décroissance exponentielle connue sous le nom de loi de Beer-Lambert, $I = I_0 e^{-\alpha L}$, avec $\alpha(\lambda) = n \sigma(\lambda)$ (exprimé en cm^{-1}) le coefficient d'absorption du gaz dépendant directement de la longueur d'onde λ , considérée fonction de la section efficace d'absorption $\sigma(\lambda)$ ($\text{cm}^2 \cdot \text{molécule}^{-1}$) et de la concentration n de l'espèce moléculaire considérée. Mesurer une concentration très faible implique donc une très bonne sensibilité sur la mesure de l'absorbance α , mais aussi un choix de longueur d'onde pour laquelle $\sigma(\lambda)$ est élevée. Optimiser le rapport signal à bruit de I et I_0 est donc très important, mais il est tout aussi fondamental d'augmenter autant que possible le trajet de la lumière à travers l'échantillon. Une méthode consiste à utiliser des cellules multipassages, qui équipent de nombreux appareils commerciaux compacts, mais leur sensibilité est limitée autour de 10^{-8}cm^{-1} (par exemple QCL Aerodyne, Pitt *et al.*, 2016). La technique de la cavité résonante, connue en anglais comme Cavity Enhanced Absorption Spectroscopy (CEAS), peut être comparée à un amplificateur d'absorption (O'Keefe *et al.*, 1999). Une autre façon de mesurer les pertes par absorption de la cavité consiste à mesurer le temps de vie des photons dans la cavité. C'est la Cavity Ring Down Spectroscopy (CRDS) (par exemple Nakaema *et al.*, 2011). Pour le mesurer, il suffit de couper la source laser quand la cavité contient suffisamment de photons. Celle-ci se vide alors exponentiellement. Le temps d'amortissement de la résonance est fonction de la réflectivité des miroirs et de l'absorption $\alpha(\lambda)$. Cette technique est notamment utilisée par le constructeur Picarro (Picarro Inc, Santa Clara, Californie, États-Unis). D'autres constructeurs utilisent quant à eux directement le signal transmis par la cavité, c'est le cas notamment de Los Gatos Research (LGR, San Jose, Californie, États-Unis) ou d'AP2e (Ap2e ProCeas, Aix-en-Provence, France).

De nombreuses espèces chimiques absorbent dans le proche et moyen infrarouge. Ce sont bien sûr les principaux gaz à effet de serre (CO_2 , N_2O , CH_4 , H_2O), mais également d'autres molécules plus réactives pouvant avoir un intérêt dans le domaine de la qualité de l'air. Les spectromètres actuels sont capables de détecter une atténuation de l'intensité lumineuse de 10^{-9} , le seuil de détection par espèce dépendra de l'intensité de leurs raies d'absorption et d'éventuelles interférences avec d'autres espèces. Le tableau 4.2 indique à titre d'exemple les limites de détection que l'on peut atteindre pour différentes molécules suivant la longueur d'onde choisie.

Tableau 4.2. Exemple de limites de détection que l'on peut atteindre pour différentes molécules en 1 seconde.

Espèce	CO ₂	H ₂ S	NH ₃	CO	CH ₄	H ₂ O	HCL	C ₂ H ₄	HF	NO, NO ₂	N ₂ O
Limite de détection à 1 Hz (ppb)	300	100	1	1	1	1	1	50	0,2	0,1	0,1
λ (nm)	1 600	1 604	2 326	2 326	2 326	1 390	1 742	1 620	1 297	410	4 464

Capteurs connectés

Autrefois peu sensibles et réservés à des applications spécifiques (surveillance en milieu professionnel), les mini-capteurs connaissent depuis quelques années une vague sans précédent de développement conduisant à des objets plus petits, moins chers, potentiellement performants et de plus en plus connectés. Dans le domaine de la qualité de l'air, ces mini-capteurs permettent de mesurer en temps quasi réel (résolution de quelques minutes ou mieux) les concentrations de différents polluants gazeux et particulaires dont le monoxyde de carbone, l'ozone et les oxydes d'azote. Il faut toutefois noter que de nombreux interférents sont associés à cette technique qui nécessite des algorithmes de correction adaptés. Sensibilité et précision sont un des enjeux de ces mini-capteurs, car, comme l'a montré une étude récente du Joint Research Centre (Ispira, Italie) sur les capteurs d'oxydes d'azote, nombreux sont ceux dont les performances ne sont pas adaptées aux niveaux de concentrations et à la variabilité des composés en atmosphère « réelle ». En ce qui concerne les polluants particulaires, différents types de capteurs ont été développés. Des micro-aethalomètres portables permettent par exemple de mesurer un équivalent « carbone-suie » et ont déjà été utilisés dans plusieurs études (par exemple Reche *et al.*, 2014).

En ce qui concerne l'application de ces technologies dans le domaine de la pollution en milieu rural, elle reste pour l'instant marginale, mais devrait également connaître un développement important ces prochaines années, avec l'émergence des capteurs permettant de mesurer des composés liés aux émissions agricoles. En particulier, l'ammoniac (NH₃) et les particules secondaires de petite taille (diamètre < 2,5 μm), comme le sulfate d'ammonium ((NH₄)₂SO₄), le nitrate d'ammonium (NH₄NO₃) ou le chlorure d'ammonium (NH₄Cl), sont visés. Les micro-capteurs à base de polymères conducteurs intrinsèques développés ces dernières années permettraient d'apporter une réponse appropriée à cette problématique. Ils s'avèrent très performants par rapport à leurs concurrents, avec une limite de détection de l'ordre de quelques ppb (contre 1 ppm pour les cellules électrochimiques), une gamme de mesure sur plusieurs ordres de grandeur de concentrations, et enfin une réponse instantanée réversible et sans interférence (Wojkiewicz *et al.*, 2017). Les laboratoires de recherche sont également sollicités pour développer des surfaces sensibles susceptibles de répondre à des besoins spécifiques de mesure de la pollution rurale, comme la détection du sulfure d'hydrogène ou encore de nitrate d'ammonium particulaire.

Vers une mesure de l'impact sanitaire

La pollution atmosphérique a des effets délétères sur la santé, ainsi que présenté dans le chapitre 1, notamment sur le système cardio-pulmonaire (WHO, 2016). Une des voies d'exposition se situe au niveau du poumon après l'inhalation d'espèces réactives de l'oxygène (ROS) transportées ou générées par les particules atmosphériques (PM) ainsi que par certaines espèces gazeuses oxydantes. Le stress oxydatif est défini comme un déséquilibre en antioxydants participant aux défenses du système immunitaire dans le milieu pulmonaire, engendré par les espèces oxydantes absorbées. Ceci conduit à des dommages cellulaires et est à l'origine de multiples pathologies comme l'asthme ou la bronchite. Si l'on comprend un peu mieux chaque jour les mécanismes complexes qui gouvernent l'apparition des pathologies, l'indicateur réglementaire qui permet aujourd'hui de lancer les alertes sanitaires lors des événements particuliers ne prend en compte que la masse des PM. Or une grande part de la masse des PM présente une toxicité faible. À l'inverse, certaines espèces comme les métaux de transition et certains composés organiques contribuent peu à la concentration totale des particules, mais possèdent une forte réactivité et toxicité.

Ainsi, la capacité intrinsèque des espèces atmosphériques à générer des ROS dans un milieu biologique, aussi appelée « potentiel oxydant » (PO), est un indicateur qui se développe rapidement pour sa pertinence à prédire la nocivité des polluants atmosphériques. Cette mesure intègre les hétérogénéités de taille, de composition, de surface des particules et représente une alternative prometteuse aux simples mesures de concentration massique des PM actuellement en vigueur pour la réglementation ou utilisées dans la majorité des études épidémiologiques (Kelly et Fussel, 2012). Depuis une petite dizaine d'années, plusieurs méthodes *in vitro* et *in vivo* ont été développées pour mesurer le PO des PM. Les méthodes *in vivo* consistent à mesurer des biomarqueurs du stress oxydatif directement dans le sang ou l'urine (glutathion, cytokines, 8 OdG). Les méthodes *in vitro* consistent à mettre en contact des cellules épithéliales pulmonaires avec des particules et à mesurer l'expression des marqueurs de l'inflammation cellulaire. À cause de leur spécificité à certains types de ROS ou à certains composants des PM, aucun consensus n'est aujourd'hui proposé sur le test biochimique le plus représentatif des effets sanitaires réels, et la communauté s'oriente vers des combinaisons de plusieurs méthodes.

Aucune étude ne se focalise actuellement spécifiquement sur les effets des émissions agricoles, mais un intérêt pourrait émerger compte tenu des émissions des PPP et potentiellement d'espèces biogéniques primaires par ce secteur d'activité.

Détection, identification et quantification des particules d'aérosols biologiques primaires atmosphériques en temps réel

Les particules d'aérosols biologiques primaires (PBAP) sont constituées d'organismes morts ou vivants (algues, bactéries, virus), de bioparticules (pollens, spores de champignons) et de fragments divers (végétaux, produits d'excrétion). L'agriculture contribue fortement aux émissions de ces particules. La taille des bioaérosols varie de quelques nanomètres jusqu'à une centaine de micromètres. Ils sont impliqués

dans la régulation du climat en fonction de leurs propriétés physiques et chimiques. Ils peuvent notamment conduire à la formation de nuages et de précipitations en jouant le rôle de noyaux de condensation provoquant la formation de cristaux de glace, de neige et de gouttelettes d'eau (Fröhlich-Nowoisky *et al.*, 2016).

Pour documenter la variabilité dans l'atmosphère des bioaérosols, il est nécessaire de les collecter, de les dénombrer et de les identifier. Les dispositifs de collecte des bioaérosols jusqu'alors utilisés sont basés sur les forces d'inertie comme les impacteurs ou sur des méthodes d'échantillonnage non inertielles telles que la filtration ou le dépôt passif. Généralement, le dénombrement et l'identification sont ensuite réalisés au laboratoire par des cultures sur milieux nutritifs sélectifs et des observations par microscopie optique. Pour la collection et l'identification des particules supérieures à 10 μm comme les pollens et les spores fongiques, le dispositif le plus utilisé est le capteur volumétrique de type Hirst, Lanzoni (Grinshpun *et al.*, 1994), dont le principe est basé sur l'aspiration d'un volume d'air connu avec impaction des particules sur une bande enduite d'un revêtement adhérent fixée sur un tambour qui défile, permettant de réaliser un prélèvement sur 7 jours. Après exposition, la bande est analysée au microscope optique (Thibaudon *et al.*, 2013).

La détection optique ou chimique des micro-organismes atmosphériques en temps réel constitue un véritable défi en physico-chimie analytique. Les dispositifs de détection optique sont basés sur le comptage de particules isolées et de leur fluorescence induite qui permet de distinguer les particules ayant une activité biologique (Crawford *et al.*, 2015). Le dispositif de détection chimique est quant à lui basé sur une technique de collection et de mise en solution des aérosols atmosphériques (Particle Into Liquid Sample, PILS) couplée à une chromatographie liquide haute performance, avec une détection par spectrométrie de masse (HPLC-MS) qui cible des métabolites cellulaires. Les méthodes optiques sont simples à mettre en œuvre, mais permettent une quantification sans différenciation des bioaérosols, alors que la méthode PILS-HPLC-MS permet la quantification et la différenciation des moisissures et des spores fongiques atmosphériques (Sarda-Estève *et al.*, 2014). Parmi les instruments de détection optique testés, le Wideband Integrated Bioaerosol Sensor (WIBS) s'est avéré être le plus performant (Lassar *et al.*, 2014).

Aujourd'hui, les différentes approches de détection, d'identification et de quantification de la présence des bioaérosols dans l'air sont en pleine évolution. Les travaux de recherche en cours pour améliorer la sensibilité, la spécificité ainsi que la quantification de bioaérosols permettront dans un avenir proche de proposer des instruments de réseaux simples et efficaces.

Modélisation des échanges : de l'échelle des processus aux échelles régionales

Raia Silvia Massad, Andrée Tuzet, Erwan Personne,
Carole Bedos, Matthias Beekmann,
Isabelle Coll, Jean-Louis Drouet,
Audrey Fortems-Cheiney, Sophie Générmont,
Benjamin Loubet, Sébastien Saint-Jean

• Les chapitres précédents ont permis de dresser l'état des connaissances actuelles
• sur les processus d'échanges et de devenir dans l'atmosphère des différents
• polluants d'origine agricole ou impactant les agroécosystèmes, mais aussi sur
• la complexité des interactions en jeu, les quantités de matière échangées entre
• les agroécosystèmes et l'atmosphère et les méthodes de mesures permettant de
• les quantifier. Ce chapitre montre comment sont retranscrites ces connaissances
• dans des outils de simulation mathématiques. Les modèles ainsi développés, qui
• vont des échelles très locales à des échelles très globales, nous permettront *in*
• *fine* d'évaluer l'impact des changements de pratiques agricoles ou des change-
• ments climatiques sur les échanges de polluants entre l'atmosphère et les agro-
• écosystèmes et d'identifier des leviers d'action sur les émissions présentés en
• chapitre 7.

L'analyse de la pollution de l'air nécessite la mise en place d'outils numériques permettant de décrire la relation causale entre les émissions, la météorologie, les concentrations atmosphériques, les dépôts et les autres facteurs en jeu. En effet, si les mesures de pollution de l'air fournissent des informations importantes et

quantitatives sur les concentrations ambiantes et les dépôts, elles ne décrivent la pollution de l'air qu'à des endroits et à des heures spécifiques, rendant difficile l'identification des causes de la contamination. La modélisation, au contraire, peut donner une description déterministe plus complète de la pollution de l'air. Ainsi, les modèles ont vocation à :

- mieux comprendre certains processus et leurs interactions ;
- hiérarchiser la sensibilité des émissions et des concentrations ambiantes à différents facteurs (climatiques, pratiques agricoles, types de sols) et identifier des leviers d'action sur les émissions ;
- prédire les échanges et les concentrations dans divers scénarios de conditions pédoclimatiques, dans des climats futurs ou suite à des changements de pratiques agricoles et d'usage des terres ;
- parfois identifier de nouvelles questions de recherche. Les modèles de pollution atmosphérique sont des outils indispensables dans la réglementation et la recherche.

On peut distinguer deux grandes catégories de modèles. Les modèles empiriques sont obtenus en appliquant sur un ensemble de jeux de données un modèle statistique de régression, afin de mettre en évidence les principaux facteurs influençant le processus d'intérêt ; certains sont utilisés pour produire les facteurs d'émission. Les modèles dits « mécanistes » permettent la formalisation mathématique et le couplage des processus. Dans la diversité des modèles existants, on peut distinguer différents niveaux de prise en compte des interactions et différentes échelles. Du point de vue des interactions, les modèles décrivent soit les processus d'échanges à l'interface surface-air, soit le couplage des échanges de polluants aux bilans énergétiques et d'évapotranspiration, soit les rétroactions agroécosystèmes/atmosphère.

Du point de vue des échelles spatiales, on distingue plusieurs échelles qui chacune répond à des objectifs différents et intègre des connaissances et des contraintes différentes (figure 5.1).

À l'échelle des processus (plante, sol ou litière, bâtiment d'élevage), on restitue ce que l'on connaît du déterminisme des processus d'échanges, des transformations chimiques et biochimiques à la surface ou à l'intérieur des éléments considérés.

À l'échelle de l'entité agricole, qui peut être une parcelle agricole ou un bâtiment d'élevage, on considère l'espace correspondant suffisamment petit pour que tous les facteurs et conditions liés au climat, au sol et aux techniques soient considérés comme homogènes, mais suffisamment grand pour appréhender le couvert végétal ou le bâtiment comme une entité dotée de propriétés émergentes et globales par rapport aux organes végétaux et plantes individuelles ou animaux dont il est constitué. La plupart des modèles développés à cette échelle donnent les variabilités locales entre les différentes parcelles et les pratiques agricoles, mais ne permettent pas de prendre en compte d'une façon explicite l'influence des parcelles environnantes et leurs rétroactions sur les flux de la parcelle considérée.

Les échelles supérieures se scindent en deux catégories. La première est l'échelle du paysage agricole ou de l'exploitation agricole. Ce sont dans les mosaïques paysagères que les transferts par les voies atmosphériques et hydrologiques redistribuent

les polluants réactifs (comme NO_3^- ou NH_3) entre les composantes du paysage et que s'expriment les premiers impacts sur les écosystèmes naturels ou que se produisent les transformations ultérieures. On utilise le plus souvent des modèles développés à l'échelle de la parcelle et/ou des bâtiments d'élevage (sources ponctuelles) pour simuler les émissions et les dépôts qui sont couplés avec des modèles de transports hydrologique et/ou atmosphérique. La seconde catégorie est l'échelle régionale/globale : les modèles développés à ces échelles comprennent les modèles de transport et de chimie atmosphérique de polluants. Ces modèles sont calibrés avec des mesures de concentration ou de flux atmosphériques (approche *top-down*). Ils peuvent aussi être paramétrés avec des facteurs d'émissions qui sont fonction de l'occupation des sols. Ces modèles prennent rarement en compte de manière mécaniste les effets des pratiques agricoles et de la gestion agricole et sont rarement couplés avec des modèles d'écosystèmes ou de ferme.

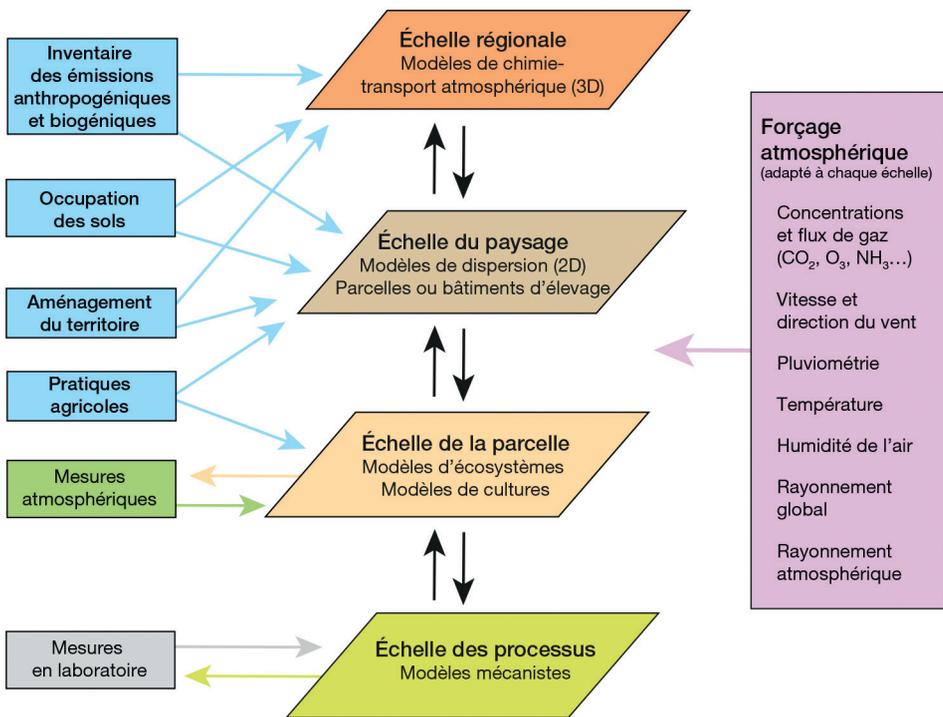


Figure 5.1. Schéma des changements d'échelle à travers la modélisation et liens possibles avec les mesures expérimentales et les bases de données.

Ce chapitre présente les différents types de modèles existants en allant de l'échelle élémentaire (agrégat de sol, feuille, etc.), où les échanges reposent principalement sur des processus indépendamment de la dimension considérée (0D), aux modèles traitant de l'échelle de l'entité agricole, où l'on considère les échanges se faisant uniquement dans la dimension verticale de l'espace (1D), pour arriver aux échelles régionales, où les échanges se font dans les deux ou trois dimensions de l'espace (2D et 3D).

► Échelle de la feuille et de l'élément de sol (0D)

Nous nous focalisons dans cette partie sur la description des modules ou modèles développés concernant des processus élémentaires ayant lieu au niveau des feuilles et du sol. Pour cela, nous distinguons les échanges d'une part avec la feuille, qu'ils soient stomatiques ou cuticulaires, et d'autre part avec le sol et les résidus, en différenciant les émissions d'origine biologique et les échanges physico-chimiques. Et, pour être plus exhaustifs dans cette description, nous aborderons de façon relativement succincte les échanges avec les différentes composantes des bâtiments d'élevage (animaux, litières, sols souillés de déjections, stockage).

Feuille

Échanges stomatiques au niveau des feuilles

Composés azotés

Plusieurs modèles à l'échelle foliaire ont été développés récemment pour simuler les échanges de composés azotés entre l'atmosphère et les plantes en lien avec les mécanismes physiologiques cellulaires. Les approches les plus communément utilisées pour introduire l'échange bidirectionnel sont celle du point de compensation stomatique (concentration à laquelle la végétation passe d'un statut de puits à celui de source, définition et relations présentées au chapitre 2) pour tous les composés, ou celle du potentiel d'émission pour NH_3 (Γ_s , défini comme étant le rapport des concentrations de NH_4^+ et de H^+ dans l'apoplasme). Le challenge des modèles est alors de déterminer la valeur de ces paramètres et d'en décrire les variations temporelles selon leurs principaux déterminants agropédoclimatiques.

Le modèle d'échanges de NH_3 , StAmP (Stomatal Ammoniac Compensation Point), développé à l'échelle des feuilles par Massad *et al.* (2010b), relie le potentiel d'émissions Γ_s au métabolisme N et C de la plante. Dans ce modèle, cinq compartiments sont considérés explicitement : le xylème, le cytoplasme, l'apoplasme, la vacuole et la cavité sous-stomatique, tandis que les principaux processus pris en compte sont : le transport de NH_4^+ , NH_3 et NO_3^- entre les cinq compartiments ; la production de NH_4^+ par la photorespiration et la réduction du NO_3^- ; l'assimilation de NH_4^+ par le cycle GS/GOGAT ; les équilibres chimiques et thermodynamiques dans tous les compartiments ; et le transfert stomatique de NH_3 . StAmP différencie la nutrition basée sur NH_4^+ et NO_3^- . Cependant, le modèle StAmP ne représente qu'une feuille dans un stade végétatif de croissance. StAmP ne tient pas compte des effets de la sénescence sur le métabolisme de NH_3 , limitant l'applicabilité du modèle. Le modèle a été validé par rapport aux valeurs mesurées dans des chambres à flux avec 7 à 9 plants de colza âgés de 5 semaines, mais n'a pas été étendu à l'échelle du couvert végétal.

Un autre modèle intéressant est le modèle développé par Wu *et al.* (2009), qui intègre le modèle de dépôt sec MLBC (Multi-Layer BioChemical) de Wu (2003) et dont le but est d'explorer d'un point de vue théorique la question des réactions potentielles entre les émissions, les dépôts et la température des feuilles sur la dynamique des Γ_s . Les simulations avec ce modèle montrent que le potentiel d'émission

Γ_s modélisé présente une variation diurne significative lorsque l'effet tampon des processus métaboliques sous-jacents générant ou consommant du NH_4^+ est ignoré : la capacité prédictive du modèle pour la simulation des flux à l'échelle du couvert végétal sur des plants de soja, par comparaison avec des mesures, est en effet légèrement améliorée quand on prend en compte l'impact des flux de NH_3 sur les concentrations apoplasmiques de NH_4^+ par rapport à une approche où Γ_s est constant.

Un des premiers modèles avec lequel on a simulé les émissions de NH_3 en utilisant l'approche du point de compensation stomatique est le modèle de prairie PaSim décrit plus loin (Riedo *et al.*, 2002).

Concernant les flux de NO_x , les recherches sont moins avancées. Ganzeveld *et al.* (2002b) ont cependant utilisé l'approche du point de compensation pour introduire l'échange bidirectionnel de NO_x dans leur modèle. Des mesures existent mais très peu de travaux sur la modélisation : Raivonen *et al.* (2009) ont élaboré un modèle du point de compensation du NO_x du pin sylvestre en décrivant les processus de consommation et de production de NO_x . Le dépôt est supposé se produire à travers les stomates et sur les surfaces des aiguilles. Les émissions sont calculées en fonction des réactions photochimiques sur la surface des aiguilles et sont dépendantes du rayonnement solaire (UVA) et de la concentration en N déposé.

Composés organiques volatils

Les COV émis par la végétation (forêts et agroécosystèmes) comportent un large éventail de produits, mais cet éventail est dominé principalement par les isoprénoides.

Depuis de nombreuses années, les émissions d'isoprène ont été paramétrées en fonction d'un taux d'émission standard modulé par des facteurs correctifs empiriques, dépendant en particulier de la température foliaire ou du rayonnement solaire (Guenther *et al.*, 2012). Cette paramétrisation des émissions traduit les réponses des plantes aux variations des facteurs du milieu, mais on sait que les COV sont synthétisés à l'intérieur des cellules des plantes selon des mécanismes étroitement associés à leur métabolisme. On sait également que les émissions dépendent non seulement de la disponibilité en carbone, en azote ou en soufre, mais aussi de l'énergie produite par le métabolisme primaire et de sa répartition entre la photosynthèse, la photorespiration, la production de COV et les processus de détoxification. Des auteurs comme Niinemets *et al.* (2004) ou Grote *et al.* (2014) ont proposé des paramétrisations des émissions d'isoprène qui rendent compte de leur lien très étroit avec le métabolisme photosynthétique (chapitre 2). Ces paramétrisations sont développées pour la plupart sur forêts (en raison du manque de données sur d'autres types d'écosystèmes), mais elles restent généralistes du point de vue des processus pris en compte. D'autres, comme Zimmer *et al.* (2000) ou Grote *et al.* (2006), ont développé des modèles mécanistes prenant en compte plusieurs réactions enzymatiques conduisant à la formation d'isoprénoides, même si des recherches supplémentaires restent nécessaires.

Ozone et oxydes d'azote

La modélisation du dépôt d'ozone dans les cavités sous-stomatiques est souvent basée sur l'hypothèse d'une forte réactivité de l'ozone avec les parois des cellules adjacentes et donc d'une concentration nulle d'ozone dans les cavités sous-stomatiques et à la surface des feuilles. Ainsi, le flux à la surface F_{O_3-s} ($\text{mol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) est

exprimé comme le produit d'une vitesse de dépôt V_D ($m \cdot s^{-1}$) et de la concentration d'ozone dans l'air C_{O_3} ($mol \cdot m^{-3}$) (Emberson *et al.*, 2000).

$$F_{O_3-S} = V_D \times C_{O_3} \tag{5.1}$$

Cependant, pour prendre en compte les mécanismes de défense des plantes contre le stress oxydant, il est important d'introduire dans la modélisation les processus de détoxification qui piègent les espèces activées de l'oxygène, formées par la réaction de l'ozone avec diverses molécules. Une telle approche de modélisation est schématisée sur la figure 5.2 (Tuzet *et al.*, 2011). Dans ce modèle, la réponse antioxydante, d'abord initiée dans l'apoplasme par une réaction avec l'ascorbate, repose en grande partie sur l'abondance et la régénération de composés antioxydants (ascorbate, glutathion en particulier) ainsi que sur l'activité d'enzymes spécialisées.

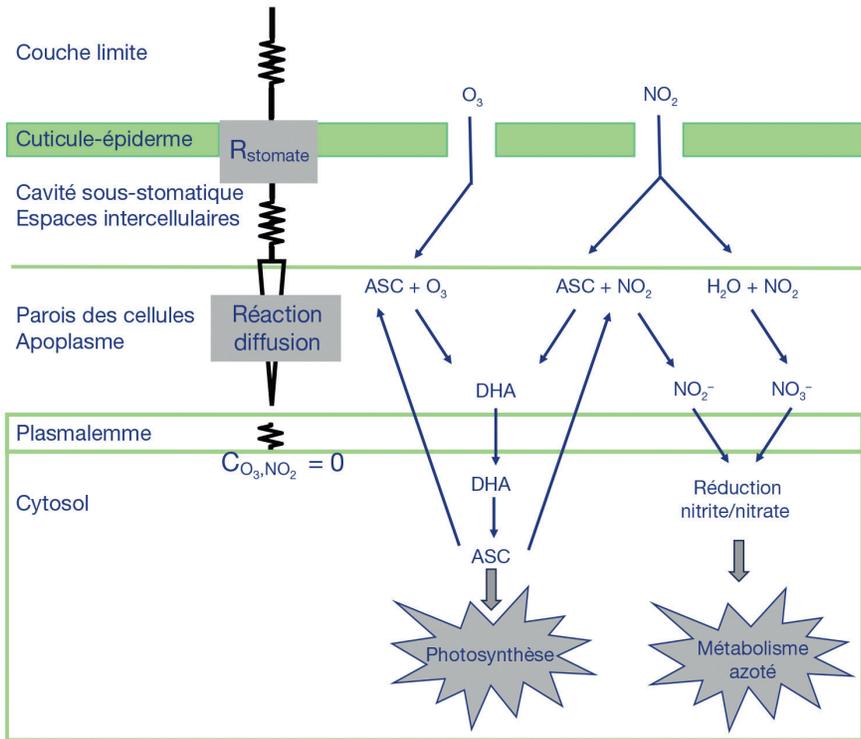


Figure 5.2. Schéma de détoxification de l' O_3 et du NO_2 et leurs conséquences sur la photosynthèse et le métabolisme de l'azote. DHA : dehydroascorbate ; ASC : ascorbate.

Échanges cuticulaires à la surface des feuilles

Composés azotés

Les gouttelettes d'eau reposant sur les surfaces des feuilles ont longtemps été connues pour agir comme des puits pour les gaz traces atmosphériques solubles. Bien que l'humidité des feuilles soit généralement supposée un facteur de réduction de la résistance de surface pour l'adsorption, Sutton *et al.* (1998) ont reconnu que l'échange avec l'eau de

surface des feuilles pouvait être réversible pour le NH_3 et ils ont développé le premier modèle basé sur le concept de capacitance pour simuler la désorption du NH_3 de la cuticule. Une hypothèse sous-jacente était que le NH_3 précédemment déposé n'avait pas réagi ou n'avait pas été absorbé par la plante et pouvait donc être relâché dans l'atmosphère lorsque les conditions atmosphériques changeaient. Ainsi, l'évaporation de l'eau de la surface entraîne une augmentation de la concentration en ion NH_4^+ dans ces gouttelettes (Flechard *et al.*, 1999). L'épaisseur du film d'eau peut être estimée en fonction de l'humidité relative de la surface et de l'indice foliaire (Burkhardt *et al.*, 2009). Cette approche où l'on considère l'humidité de surface de la feuille comme une variable dynamique signifie que le flux de NH_3 cuticulaire dépend des flux précédents (effet d'hystérésis). Cette approche a ensuite été adoptée par Neiryck et Ceulemans (2008) pour une forêt de pin. Des modèles plus simples, non dynamiques et unidirectionnels, sont le plus souvent utilisés, dans lesquels la résistance cuticulaire (R_w) est paramétrée en fonction de l'humidité relative de la surface (par exemple Flechard *et al.*, 2011). Dans certains modèles ou paramétrations, on fait dépendre R_w du rapport molaire atmosphérique entre SO_2 et NH_3 ou entre la somme des acides (HCl , SO_2 et HNO_3^-) et NH_3 (Simpson *et al.*, 2012), ou simplement de la concentration en NH_3 (Jones *et al.*, 2007). La figure 5.3 montre des courbes de décroissance exponentielle ajustées à un jeu de données de R_w publiées (à 95 % d'humidité relative) en fonction du rapport entre les acides totaux et le NH_3 , pour quatre principaux types d'écosystèmes (Massad *et al.*, 2010a). Cette paramétrisation permet de rendre compte de l'effet du niveau de pollution ammoniacale : l'absorption non stomatique est sévèrement restreinte par un pH élevé et une forte concentration en NH_4^+ à la surface.

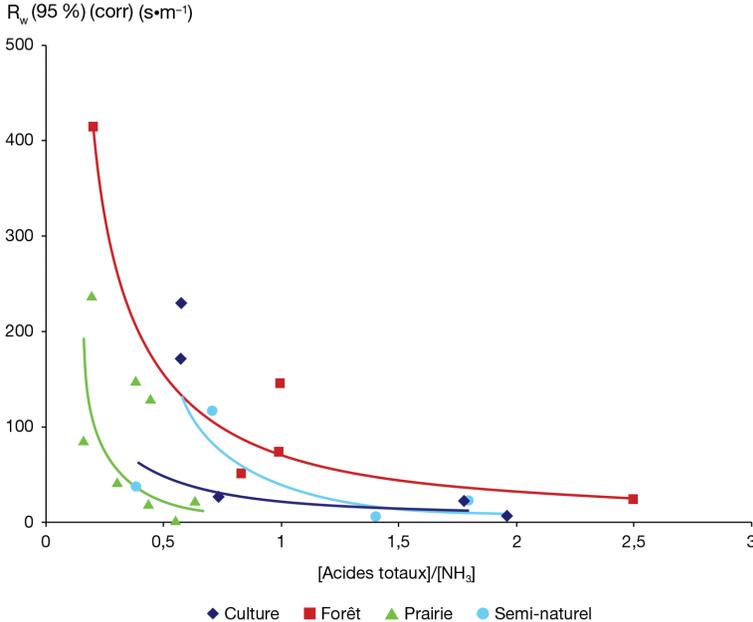


Figure 5.3. Résistance de la surface de la feuille à 95 % d'humidité relative ($R_w(95\%)$) (normalisée pour l'indice foliaire et la température) en fonction du rapport des acides totaux au NH_3 ($AR = (2\text{SO}_2 + \text{HNO}_3^- + \text{HCl})/\text{NH}_3$) dans l'atmosphère pour différents types d'écosystèmes (d'après Massad *et al.*, 2010a).

Un concept de modélisation de l'échange de NH_3 non stomatique, à mi-chemin entre les modèles qui ne prennent pas en compte un puits sur les feuilles (dit « de capacitance », voir figure 5.5) et les modèles qui considèrent que la concentration à la surface est zéro, a aussi été développé dans le modèle Depac (Deposition of Acidifying Compounds) (Wichink Kruit *et al.*, 2010). Dans ce modèle, il existe un potentiel d'émission non nul, qui varie en fonction des échanges avec l'atmosphère et qui donc augmente avec la concentration ambiante de NH_3 sur un site donné. Cette paramétrisation permet de représenter des effets de saturation à des concentrations élevées en NH_3 dans l'air.

Ozone

La modélisation du dépôt cuticulaire d'ozone fait généralement l'hypothèse que la cuticule est imperméable à l'ozone. L'enjeu est d'exprimer la résistance au dépôt d'ozone $R_{\text{O}_3\text{cut}}$ en fonction des propriétés de la surface des feuilles : ces dernières sont déterminées à la fois par les caractéristiques des cires épicuticulaires, et par la présence d'eau liquide, qui modifie la réactivité des surfaces ainsi que leur porosité. Tuzet *et al.* (2011) et Potier *et al.* (2015) ont proposé des formalismes adaptés à la description du dépôt d'ozone sur feuilles sèches ou mouillées selon l'expression :

$$F_{\text{O}_3} = \frac{C_{\text{O}_3}}{r_b + R_{\text{O}_3\text{cut}}} \quad (5.2)$$

où F_{O_3} ($\text{mol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) est le flux de dépôt, C_{O_3} ($\text{mol} \cdot \text{m}^{-3}$) est la concentration d'ozone dans l'air, R_b ($\text{s} \cdot \text{m}^{-1}$) la résistance de couche limite de la feuille, et $R_{\text{O}_3\text{cut}}$ ($\text{s} \cdot \text{m}^{-1}$) est une fonction de l'épaisseur et de la porosité de la cuticule, de la diffusivité de l'ozone dans l'air et de la probabilité de réaction de l'ozone avec les cires.

Produits phytopharmaceutiques

Le cas des interactions entre les produits phytopharmaceutiques (PPP) et les feuilles tel qu'il est pris en compte dans les modèles est assez spécifique par le fait que le PPP est mis en contact avec la feuille lors de l'application *via* la solution apportée, le plus souvent un mélange d'eau, de formulant et de la substance active en question. Seul est alors considéré le comportement de la substance active qui est soumise à des processus d'émission, de (photo)dégradation, de lessivage par la pluie et de pénétration foliaire. En raison de leur caractère liposoluble et de leur mode de contact (gouttelettes sur la feuille), l'hypothèse est faite que la pénétration des substances actives a lieu majoritairement par voie cuticulaire, en négligeant ainsi la voie stomatique.

Le passage du PPP de la surface de la feuille vers l'intérieur du tissu foliaire est effectué selon trois phases : d'abord l'adsorption à la surface de la cuticule, puis la diffusion à travers la cuticule et enfin la pénétration à l'intérieur du tissu foliaire. La distinction entre ces différentes étapes n'est pas toujours faite dans les modèles. Le modèle Pearl (Pesticide Emission Assessment at Regional and Local Scales) (Tiktak *et al.*, 2002) par exemple considère une pénétration « globale » des composés *via* une cinétique d'ordre 1 et un coefficient de pénétration (k_{pen}) empirique (Leistra et Wolters, 2004). En l'absence de telles données, Leistra (2005) propose des ordres de grandeur de k_{pen} pour cinq classes de composés présentant une propension plus

ou moins grande à pénétrer dans la plante. *A contrario*, le processus de pénétration foliaire a été simplifié dans le modèle PEM (Pesticide Emission Model ; Scholtz *et al.*, 2002), en considérant seulement la phase de diffusion dans la cuticule décrite selon la loi de Fick et en négligeant ainsi le processus de pénétration dans les cellules. Enfin, une description de la distribution du PPP entre la surface de la feuille, en distinguant la fraction de composés adsorbée sur la cuticule, la cuticule elle-même et les cellules de la feuille, est proposée par Lichiheb *et al.* (2016). Elle néglige la dissipation ultérieure au sein de la plante.

L'efficacité de la pénétration cuticulaire dépend du caractère lipophile du composé qui est décrit par le coefficient de partage octanol/eau (K_{ow}). Le modèle mathématique de Satchivi *et al.* (2001) portant sur l'influence des propriétés physico-chimiques des PPP sur l'adsorption et la dissipation de ces composés dans la plante montre qu'une augmentation du Log (K_{ow}) de -5 à -1 induit une augmentation de l'adsorption de 12 à 24 % du produit appliqué à la surface des feuilles. À partir d'expérimentations en conditions contrôlées, Lichiheb *et al.* (2016) proposent également une formalisation de la dépendance de l'adsorption avec K_{ow} : ces auteurs décrivent la quantité de résidus adsorbée sur la feuille $Q_{s,ad}$ ($\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-2}$) en fonction de la quantité totale de résidus en surface Q_s ($\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-2}$) selon la relation suivante (figure 2.3) :

$$Q_{(s,ad)} = (0,7 \text{ Log}(K_{ow}) - 1,7) Q_s \quad (5.3)$$

Au sein de la cuticule, certains modèles décrivent le transfert des PPP selon la loi de Fick (équation 5.6), par exemple le modèle PEM (Scholtz *et al.*, 2002).

Après diffusion dans la cuticule, les PPP doivent franchir la paroi cellulaire qui est un compartiment aqueux. Par conséquent, l'efficacité de la pénétration cellulaire dépend de la solubilité du composé dans l'eau. Ainsi, dans ce modèle, la fraction pénétrée dans les cellules de la feuille est décrite selon une cinétique d'ordre 1 avec un coefficient de pénétration k_{pen} (jour^{-1}) calculé à partir de la solubilité du composé dans l'eau S_w ($\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$).

Une fois le produit entré dans les cellules foliaires, il peut être dissipé, c'est-à-dire métabolisé ou transféré vers d'autres organes de la plante. La dissipation est le plus souvent décrite à l'aide d'une cinétique d'ordre 1, même si quelques approches ont aussi porté sur des cinétiques d'ordre 0 ou 2. Cependant, dans certains cas, le processus de dissipation est plus rapide immédiatement après l'application, puis la vitesse de dissipation diminue en fonction du temps, ce qui indique une non-linéarité de la dissipation ; des approches statistiques ont alors été proposées.

Il faut noter aussi le développement de modèles dédiés au devenir des composés phytopharmaceutiques organiques dans le système sol-plante-atmosphère tels que PlantX (Trapp *et al.*, 1994), qui considère cinq compartiments : le sol, la feuille, la tige, les racines et les fruits. Dans ce modèle, les processus d'extraction racinaire et de translocation vers les feuilles, les échanges gazeux feuille/atmosphère, les dépôts atmosphériques gazeux et particulaires sur le sol, la tige, les fruits ou les feuilles, la translocation feuilles/fruits, la transformation ou la dilution par la croissance de la plante sont également pris en compte. Le modèle Cemos-Plant (Trapp et Matthies, 1997), dédié à l'estimation de risques de contamination, est basé sur une représentation simplifiée de PlantX et modélise la partie aérienne des plantes.

Sol et résidus végétaux

Émissions d'origine biologique

Les émissions d'origine biologique concernent le CO₂, le N₂O, le NO et les COVb. Les émissions de CO₂ proviennent de la respiration autotrophe et hétérotrophe des sols. La modélisation détaillée de ces flux ne sera pas abordée dans le cadre de cet ouvrage. Cependant, la simulation des flux d'eau, de CO₂ et de la concentration en différents éléments minéraux du sol est essentielle pour bien représenter les flux de composés gazeux. Par exemple, il faudra tenir compte des modifications des concentrations de CO₂ dans la matrice du sol, puisque la dissolution du CO₂ dans l'eau modifie son pH et donc peut modifier les échanges de composés réactifs sensibles au pH (NH₃, SO₂, etc.). Dans cet objectif, une modélisation microscopique de la dégradation de matière organique du sol en lien avec sa structure (encadré 5.1) peut être une piste intéressante à explorer pour mieux estimer les échanges de CO₂ et de N₂O, mais aussi d'autres gaz traces dans le futur.

En ce qui concerne les gaz réactifs, les émissions de NO et de N₂O sont des produits de la nitrification et de la dénitrification (chapitre 2). Les émissions de COVb proviennent des activités microbiennes principalement impliquées dans la minéralisation de la matière organique du sol ou des différents types d'apports (produits résiduels organiques, résidus de culture...). Elles peuvent donc être de natures chimiques très différentes. À notre connaissance, il n'existe pas encore de modèle prédictif concernant les émissions de COVb par les sols. Pour ce qui est des émissions de NO, les premiers travaux de modélisation ont été réalisés par Williams *et al.* (1992). Cette approche est basée sur des expérimentations menées en conditions contrôlées de laboratoire, et permet d'exprimer les émissions comme le résultat à la fois d'un taux d'azote nitrifié émis sous forme de NO et d'un potentiel de nitrification ou d'une vitesse maximale de nitrification. La nitrification est modulée par des fonctions de réponse de la nitrification à l'état du sol, en particulier sa température, sa concentration en azote ammoniacal, sa teneur en eau et son pH.

Encadré 5.1. Modélisation couplée matière organique-structure du sol à l'échelle microscopique.

Patricia Garnier

Les modèles décrits ci-dessus sont élaborés à une échelle macroscopique, mais plusieurs articles récents suggèrent que les processus déterminants de la dégradation de la matière organique se déroulent à l'échelle microscopique des micro-organismes (Dungait *et al.*, 2012). En effet, les micro-organismes du sol vivent dans un réseau complexe de pores, résultant de l'arrangement spatial des particules solides, qui sont remplis d'eau ou d'air, interconnectés, et dans lesquels les micro-organismes et leur ressource sont distribués de manière hétérogène. L'état de la matière organique du sol conditionnant les échanges des gaz traces (adsorption, émission par exemple), il faudrait à terme inclure des modules d'échanges de gaz traces dans ces approches et en déduire des relations plus adaptées aux échelles supérieures.

... L'impact des hétérogénéités à cette échelle microscopique sur la décomposition des substrats carbonés dans le sol est intégré dans le modèle. Deux outils de modélisation en 3D de la dégradation microbienne dans la porosité du sol utilisent des images tomographiques à haute définition de la structure du sol. Le modèle Mosaic (Monga *et al.*, 2008) est basé sur des approches de modélisation géométrique et algorithmique. Il utilise une description compacte de l'espace, puisque les cellules élémentaires sont remplacées par des formes géométriques représentant des pores ou des solides, ce qui amène une considérable économie de temps de simulation numérique. La structure du sol est représentée par un réseau de sphères interconnectées constituant les nœuds d'un graphe. Les interactions entre les substrats organiques et leurs dégradants pour chaque sphère et son voisinage sont simulées par la mise à jour du graphe. Le modèle a été évalué avec des expérimentations menées sur des souches bactériennes pures dans un environnement simplifié (Monga *et al.*, 2014). Le modèle LBioS, quant à lui, est basé sur une approche de Boltzmann. Ce modèle est complémentaire de Mosaic, car il donne des résultats beaucoup plus réalistes sur la distribution de l'eau dans les pores du sol et sur la diffusion (Pot *et al.*, 2015). Par contre, il utilise une représentation par cellule de l'image 3D, ce qui rend les calculs beaucoup plus longs. Les simulations obtenues avec les deux modèles permettent d'analyser l'impact sur la décomposition ainsi que l'interaction des différents facteurs que sont la topologie, l'état de saturation de l'espace poral, la localisation spatiale des substrats carbonés et de leurs décomposeurs. Ceci permettra à terme de mieux prendre en compte l'hétérogénéité spatiale à petites échelles dans la simulation des échanges de flux gazeux entre le sol et l'atmosphère.

Échanges physico-chimiques

Émissions d'ammoniac au champ après fertilisation minérale et organique, et au pâturage

Différents concepts de modélisation ont été développés pour prendre en compte les processus physico-chimiques contrôlant les émissions de NH_3 provenant des engrais minéraux ou organiques lors de l'application sur le sol et pour simuler la dynamique des émissions de NH_3 (Sommer *et al.*, 2003 ; Montes *et al.*, 2009). Dans les modèles mécanistes, comme par exemple le modèle de van der Molen (1990) et le modèle Agrin (Beuning *et al.*, 2008) pour les lisiers, le modèle Volt'Air (Génermont et Cellier, 1997) pour tout type de produits résiduels organiques (PRO) et pour les engrais minéraux, ainsi que le modèle GAG (Generation of Ammonia from Grazing) pour les patches d'urine au pâturage (Móring *et al.*, 2016), trois équilibres sont généralement pris en compte : l'équilibre de solubilité entre l'ammoniac aqueux et l'ammoniac gazeux, l'équilibre de protonation (ou acido-basique) et l'équilibre d'adsorption de l'ion ammonium de la solution aqueuse vers la phase solide, la rétention étant négligée.

Une approximation majeure est généralement faite dans la plupart des modèles : les équations sont appliquées au cas théorique de la solution aqueuse idéale, c'est-à-dire ne contenant que de l'azote ammoniacal. Or la solution de sol n'est pas une solution aqueuse idéale, et encore moins après un apport d'engrais. L'application de tels modèles est malgré tout satisfaisante dans la plupart des cas pour les engrais

minéraux et les PRO liquides, mais atteint ses limites dans certains cas de PRO plus riches en matière sèche, comme certains fumiers, ou en particulier les composts.

Dans de tels modèles, un défi majeur consiste à simuler le pH de la couche émettrice, qui peut être assez différent ou indépendant de la valeur de pH de fond, que ce soit pour le sol après ajout d'un engrais ayant son propre pH, pour la terre végétale ou pour le PRO considéré. L'évolution très rapide du pH après l'apport est encore plus difficile à restituer par modélisation mécaniste en raison de la complexité des processus interférents (hydrolyse de l'urée alcalinisante, nitrification acidifiante, volatilisation acidifiante, compétition sur les sites d'adsorption des ions NH_4^+ et des protons, pouvoir tampon du substrat, etc.) : des modélisations relativement complexes de la dynamique du pH ont toutefois été incluses dans certains modèles, le modèle Volt'Air pour les engrais minéraux, avec un succès relatif (Le Cadre, 2004), et le modèle GAG (Generation of Ammonia from Grazing) pour les patches d'urine au pâturage (Móring *et al.*, 2016). À noter que la volatilisation de NH_3 est très sensible au pH : toute augmentation d'une unité pH de la solution à un instant donné conduit à la multiplication par 10 du flux instantané modélisé.

La modélisation de la volatilisation d'ammoniac est également sensible à la capacité d'adsorption du substrat (complexe argilo-humique du sol et/ou matière organique du produit résiduaire), mais cette dernière est très difficile à prendre en compte en modélisation. En effet, il y a un énorme hiatus entre les conditions opératoires de caractérisation du potentiel d'adsorption et les conditions d'application des isothermes obtenues : la mesure se fait en désagrégeant complètement le substrat dans un grand volume de solution aqueuse de NH_4^+ , pour différents niveaux de concentration, rendant tous les sites d'adsorption immédiatement disponibles, ce qui n'est pas le cas en conditions réelles.

Une autre difficulté réside dans la résolution du système d'équations obtenu, qui comporte parfois plus d'inconnues que d'équations : la résolution ne se fait pas analytiquement, mais par itérations successives. Certains contournent cette difficulté en exprimant l'adsorption comme étant proportionnelle à la CEC du sol. Une alternative est la modélisation empirique de la disponibilité sous forme d'ammoniac selon les types de sols et/ou d'engrais.

Produits phytopharmaceutiques

Afin de calculer les échanges de PPP à l'interface sol-atmosphère, il est nécessaire de prédire leur concentration en phase gazeuse à la surface du sol. Dans les modèles décrivant le devenir des PPP dans le sol, les équilibres pris en compte sont, d'une part, la rétention, limitée à l'adsorption, et, d'autre part, l'équilibre de dissolution, c'est-à-dire entre la solution aqueuse et l'air des pores du sol, reposant sur la constante de Henry K_h . L'adsorption depuis la solution aqueuse vers la phase solide est le plus souvent supposée instantanée, réversible, même si des cinétiques d'adsorption et des isothermes de désorption traduisant l'existence d'un phénomène d'hystérésis sont parfois proposées. Le coefficient d'adsorption K_d est le plus souvent relié au coefficient de partage K_{oc} , limitant ainsi l'adsorption à l'unique adsorption sur le carbone organique du sol. La validité de cette approche, notamment pour les sols en profondeur, est discutée par Jarvis (2016), qui propose des pistes d'améliorations. Dans l'approche classique, la prise en compte simultanée d'une adsorption linéaire

via un K_d et de l'équilibre entre la solution aqueuse et la phase gazeuse peut alors se résoudre analytiquement. C'est le cas dans le modèle BAM (Behaviour Assessment Model) (Jury *et al.*, 1983), PEM (Scholtz *et al.*, 2002) ou Volt'Air (Bedos *et al.*, 2009). Dans ce dernier, l'adsorption depuis la phase gazeuse vers la phase solide du sol est un processus considéré comme significatif pour certains composés phytopharmaceutiques organiques lorsque le sol s'assèche (Goss *et al.*, 2004). Elle a été introduite par Garcia *et al.* (2014) afin d'améliorer la description de la décroissance de la volatilisation observée en conditions sèches. Cela se traduit par l'ajout d'un terme dans les calculs d'équilibres physico-chimiques (figure 5.4) :

$$C_s = K_d C_l + K_{ads} C_g \quad (5.4)$$

Avec C_s , C_l et C_g ($\text{mol} \cdot \text{m}^{-3}$) les concentrations du composé adsorbé sur le sol, les concentrations en phase aqueuse et gazeuse respectivement, K_d ($\text{m}^3 \cdot \text{kg}^{-1}$), le coefficient d'adsorption depuis la phase liquide sur le sol, et K_{ads} ($\text{m}^3 \cdot \text{kg}^{-1}$) le coefficient d'adsorption depuis la phase gazeuse sur la matrice du sol. Malgré l'introduction de ce terme supplémentaire, la résolution analytique est toujours possible, moyennant la connaissance de K_{ads} . Or ce coefficient n'est pas disponible dans les bases de données usuelles. Il doit être calculé de manière théorique. Par ailleurs, sa dépendance à la température du sol, à l'humidité relative de l'air des pores du sol ainsi qu'à la SSA (*specific surface area*) doit être décrite, faisant ainsi appel aux fonctions de pédotransfert hydrique du sol, dont le domaine de validité couvre habituellement des conditions humides.

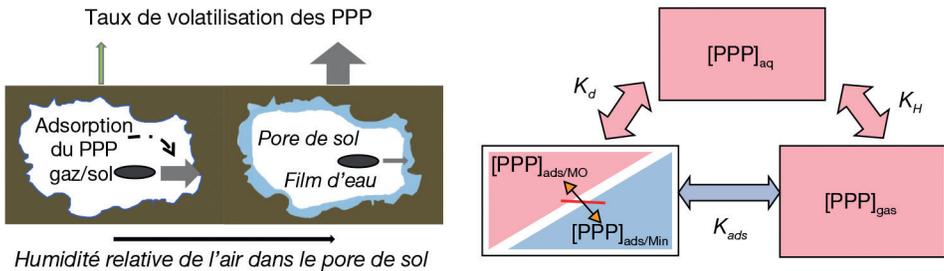


Figure 5.4. Processus d'adsorption des produits phytopharmaceutiques depuis la phase gazeuse vers le sol et équilibres physico-chimiques associés, avec K_d , K_{ads} et K_H le coefficient d'adsorption depuis la phase aqueuse, le coefficient d'adsorption depuis la phase gazeuse et la constante de Henry respectivement, $[PPP]_{ads/MO}$, $[PPP]_{ads/Min}$, $[PPP]_{aq}$ et $[PPP]_{gas}$ les concentrations en composé adsorbé depuis la phase liquide, adsorbé depuis la phase gazeuse, en phase aqueuse et en phase gazeuse respectivement (d'après Garcia *et al.*, 2014).

Ozone

Comme sur les cuticules, le dépôt sur le sol dépend de sa structure, qui définit la surface disponible pour le dépôt, ainsi que de sa texture, qui conditionne la réactivité de l'ozone. La porosité du sol et la probabilité de réaction de l'ozone avec les particules de la couche sèche du sol en surface et de la couche humide sous-jacente sont prises en compte dans le modèle MODD (Model of Ozone Deposition and Detoxification ; Tuzet *et al.*, 2011). Dans ce cas, l'expression de la résistance au dépôt d'ozone dépend aussi bien des caractéristiques de la couche sèche de surface (épaisseur de

la couche sèche, probabilité de réaction de l'ozone avec les particules de sol) que de celles de la couche humide sous-jacente (probabilité de réaction de l'ozone avec les particules de sol de la couche humide) et de la diffusivité de l'ozone dans l'air.

Pour tenir compte des molécules d'eau qui peuvent être adsorbées sur les particules de sol, de nombreux auteurs comme Stella *et al.* (2011) ont proposé une paramétrisation sur sol nu qui est fonction de l'humidité relative de l'air à la surface du sol, $H_{\text{air}}(-)$:

$$R_{O_3, \text{soil}} = R_{O_3, \text{soil min}} e^{kH_{\text{air}}} \quad (5.5)$$

où $R_{O_3, \text{soil min}}$ ($s \cdot m^{-1}$) est la résistance au dépôt d'ozone sur sol nu sans molécules d'eau adsorbées et k (-) est un coefficient empirique.

► Échelle de la parcelle agricole (1D)

À l'échelle de la parcelle, la modélisation des échanges bidirectionnels de polluants entre les agroécosystèmes et l'atmosphère se fonde sur la quantification des échanges au moyen de la description des processus (modèles mécanistes). La modélisation de ces échanges, lorsqu'elle se focalise sur les émissions, est un outil pour quantifier la contribution des activités agricoles au champ à la dégradation de la qualité de l'air, tandis que lorsque le focus est sur les dépôts, il vise surtout à évaluer ou à prédire la dépollution de l'atmosphère ou les impacts des polluants sur les productions végétales. Lorsque c'est le premier aspect qui est visé, la représentation correcte de pratiques telles que la fertilisation, l'irrigation et le travail du sol dans les systèmes de culture, ainsi que la fauche et le pâturage dans les systèmes de prairies, est nécessaire pour garantir la plus grande adéquation des résultats et reste un défi important en modélisation. Cette représentation passe par le couplage à cette échelle des modèles d'échange au-dessus de l'agroécosystème en question (présentés en première partie de cette section) avec les processus élémentaires déterminant la concentration à l'interface entre les agroécosystèmes et l'atmosphère, selon différents niveaux de couplage. Lorsque c'est le dernier aspect qui est visé, un autre défi de la modélisation est d'intégrer les rétroactions biologiques face à la pollution atmosphérique pour comprendre ou prédire les impacts, mais aussi pour évaluer à plus long terme les effets de cette pollution atmosphérique sur les agroécosystèmes et leurs échanges avec l'atmosphère.

Modèles d'échanges à l'interface sol-végétation-atmosphère

Dans cette partie nous détaillerons dans un premier temps les modèles physico-chimiques d'échanges à l'interface sol-végétation-atmosphère. Nous donnerons ensuite plusieurs exemples de couplage de ces modèles pour y intégrer la croissance des cultures, le bilan d'énergie ou le bilan hydrique et la chimie dans le couvert.

Les modèles mécanistes d'échange 1D entre l'agrosystème et l'atmosphère à l'échelle de la parcelle sont fondés sur le concept d'une proportionnalité entre le flux et le gradient vertical de concentration entre la surface biogénique et l'atmosphère pour le composé étudié (chapitre 2). Ce concept applicable à tous les gaz (en modulant par leurs constantes de diffusion dans l'air) suppose que la surface considérée est

homogène et qu'il n'y a pas d'advection des parcelles voisines (approche 1D). La modélisation des échanges entre la surface étudiée et l'atmosphère se fonde généralement sur l'équation dérivée de la loi de Fick :

$$F = -K \frac{dC}{dz} \quad (5.6)$$

qui décrit le flux comme dépendant du gradient vertical de concentration $\frac{dC}{dz}$,

c'est-à-dire entre la surface étudiée de hauteur z_s (m) et un niveau de référence dans l'air z_r (m), et dépendant du coefficient d'échange turbulent (K).

Le concept se symbolise par une schématisation résistive entre les deux niveaux considérés. Dans le cas d'une modélisation selon une telle approche résistive, la facilité ou la difficulté du transfert entre deux niveaux est évaluée par la résistance au transfert R ($s \cdot m^{-1}$) ou son inverse, la conductance ($m \cdot s^{-1}$) entre ces deux niveaux, et elle se calcule en intégrant le coefficient d'échange K (en $m^2 \cdot s^{-1}$) comme variable :

$$R = \int_{z_s}^{z_r} \frac{1}{K} dz \quad (5.7)$$

Ainsi on peut différencier la résistance aérodynamique au transfert (R_a), et la résistance de couche limite (R_{bl}). En s'approchant de la surface, la modélisation peut revêtir différents niveaux de complexité dans la description de ces échanges avec les interfaces de la biosphère, compte tenu de la possibilité d'en distinguer les différents points sources ou puits de polluants. L'avantage d'une telle modélisation qui se fonde sur une approche résistive entre deux niveaux réside dans la possibilité de représenter et de distinguer les différentes voies d'échange. On peut ainsi considérer le couvert végétal comme une surface homogène avec des caractéristiques identiques et une concentration nulle à la surface (figure 5.5A) ou prédéfinie (figure 5.5B), différencier le couvert en 2 ou 3 couches (figures 5.5C et D), considérer une capacité de stockage du composé à la surface sous forme de capacitance (figure 5.5E) ou encore la possibilité que se produisent des réactions chimiques à l'intérieur de ce stock déposé (figure 5.5F).

En ce qui concerne l'approche multicouche, le sol est considéré comme une couche indépendante de la végétation, et cette dernière peut être découpée en plusieurs couches si nécessaire. Dans certains cas, un bilan d'énergie est résolu pour chacune des couches, permettant ainsi de déterminer leur température et leur humidité d'équilibre. Contrairement à l'approche monocouche (qui consiste à supposer que la surface et le sol constituent une strate unique en interaction avec l'atmosphère), cette représentation présente l'intérêt de tenir compte du contraste thermique et hydrique entre les différentes couches de végétation et la surface du sol. Elle permet aussi de mieux prendre en compte la structure du couvert végétal, et donc d'obtenir une meilleure représentation des processus d'émission et de dépôt au sein du couvert.

Ce type de modélisation mécaniste est utilisable à l'aide des variables de forçage météorologiques classiques avec un pas de temps horaire, mais nécessite de bien savoir décrire les résistances au transfert (résistance stomatique, R_{sto} , résistance cuticulaire, R_{cut} , résistance de surface du sol, R_{sol} ...) et de maîtriser le changement d'échelle pour transposer ce qui est connu à l'échelle foliaire à l'échelle du couvert ou de la strate de végétation étudiée si le modèle est multicouche.

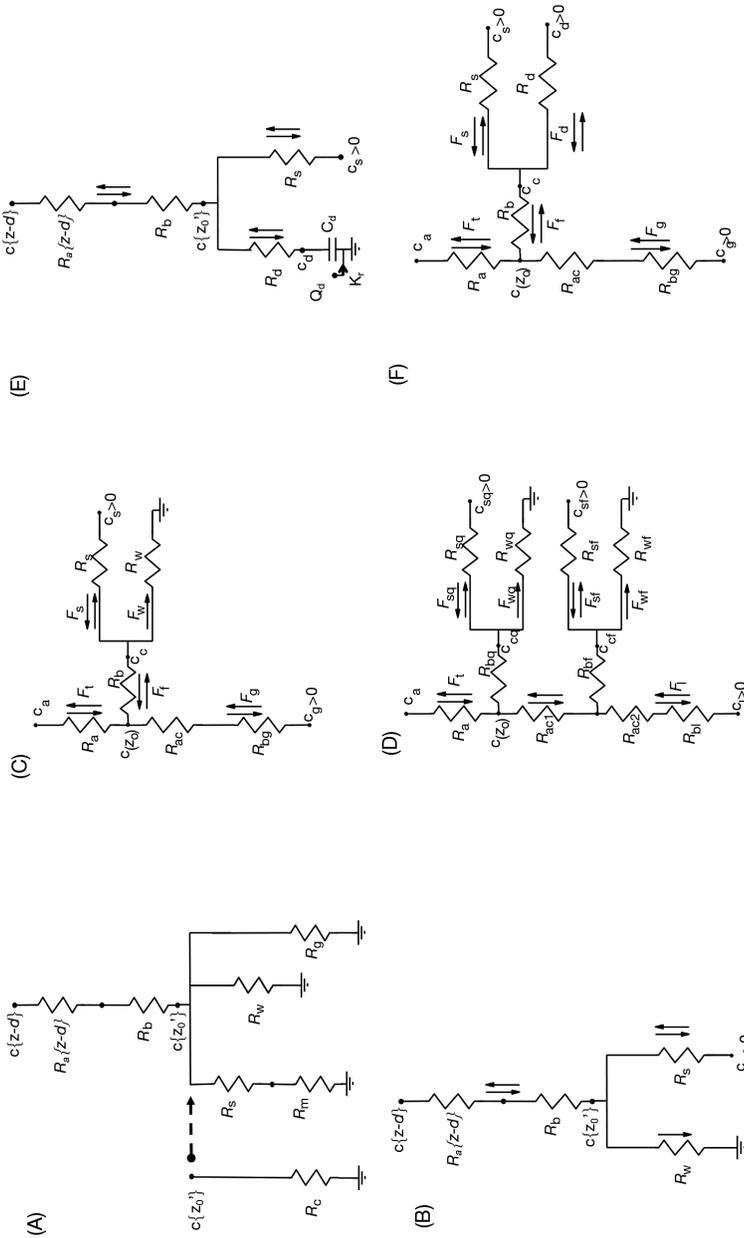


Figure 5.5. Exemples de schémas d'échanges de composés réactifs surface/atmosphère typiques (d'après Flechard *et al.*, 2013).

(A) Exemple générique de modèle de résistance de la canopée (R_c) ; (B) modèle de point de compensation de la canopée χ_s/R_w à 1 couche (d'après Sutton *et al.*, 1995) ; (C) modèle de point de compensation de canopée à 2 couches $\chi_s/\chi_g/R_w$ (d'après Nemitz *et al.*, 2001) ; (D) modèle de point de compensation à 3 couches (sol, feuillage, siltique/mflourescence) (d'après Nemitz *et al.*, 2000) ; (E) modèle de point de compensation de la canopée à capacitance à 1 couche $\chi_s/\chi_d/R_d$ (Sutton *et al.*, 1998) ; et (F) modèle de point de compensation chimique dynamique de la canopée à 2 couches $\chi_s/\chi_g/\chi_d/R_d$ (Burkhardt *et al.*, 2009).

Les schémas de transfert à l'interface sol-végétation-atmosphère par des approches résistives sont en général transposables d'un gaz à l'autre. Pour la grande majorité des polluants étudiés, il est simplement nécessaire de prendre en compte la spécificité de chaque composé gazeux au niveau des compartiments eux-mêmes, compte tenu de leurs propriétés physico-chimiques et de leur réactivité avec le fonctionnement biologique des plantes étudiées et le fonctionnement du sol. On peut donc adopter, selon le composé étudié, un schéma d'échange particulier et le paramétrer en fonction des mécanismes connus et des observations auxquels nous avons accès (tableau 5.1).

Tableau 5.1. Hypothèses le plus souvent utilisées pour les paramétrisations dérivées de mesures de flux, en fonction du type de modèle résistif.

	Modèle de dépôt	Modèle d'émission biologique	Modèle bidirectionnel	Modèle de volatilisation après apport
Variable de forçage	Observée ou modélisable	Négligeable	Mesurée	Négligeable
Concentration dans le compartiment (sol, surface des feuilles)	≈ 0	Selon le niveau mécaniste du modèle, pour le sol, dépendant des équilibres physico-chimiques dans le sol ou simplement donné par une approche empirique. La végétation est souvent négligée	Pour le sol, dépendant des équilibres physico-chimiques du sol ou simplement donné par une approche empirique. Pour la végétation, souvent dépendant du fonctionnement biologique de la plante	Modélisé selon les équilibres physico-chimiques
Éléments de paramétrisation	Focus sur R_{sto} , paramétrisation souvent empirique de R_{cut} et R_{sol}	Paramétrisation souvent empirique de R_{sol}	Focus sur R_{sto} , paramétrisation souvent empirique de R_{cut} et R_{sol}	Paramétrisation souvent empirique de R_{sol}
Cas typique	Gaz très réactifs non émis par les surfaces végétales (O_3 , $NO\dots$)	Gaz principalement émis par le fonctionnement biologique de la surface (sol ou feuille) (CO_2 , $N_2O\dots$)	Gaz pouvant être émis ou déposé à la surface de façon bidirectionnelle (NH_3)	Gaz émis après apport souvent anthropique (PPP)

Une alternative au schéma résistif est le schéma advectif (Itier et Perrier, 1976). Il repose sur une relation de proportionnalité observée de la différence du flux de surface d'un composé entre deux parcelles contiguës, l'une étant sous le vent de

l'autre, à la différence de concentration en surface du composé d'intérêt entre ces deux mêmes parcelles. Cette représentation permet de prendre en compte la taille de la parcelle dans le calcul de l'émission, ce qui se révèle particulièrement approprié lorsqu'on applique la modélisation à une petite parcelle d'essai agronomique. Elle a été par exemple adoptée dans le modèle Volt'Air (Génermont et Cellier, 1997).

Modèles de dépôt : composé type, ozone

On considère ici l'ozone comme un gaz modèle pour les composés hautement réactifs avec les surfaces. On s'intéresse ici particulièrement aux flux stomatiques, d'autant plus que c'est cette absorption qui a un impact sur le fonctionnement de la plante. L'ozone est un polluant gazeux ayant une très forte réactivité soit avec les surfaces soit avec d'autres composés gazeux et à une vitesse d'absorption régulée par l'ouverture des stomates (Emberson *et al.*, 2000). Sachant son impact sur le fonctionnement biologique des plantes, il est important de bien quantifier les doses absorbées. De nombreux modèles se cantonnent donc à la description du dépôt stomatique et considèrent le plus souvent les dépôts cuticulaires et au sol comme négligeables (Gut *et al.*, 2002). Pour tenir compte de l'hypothèse généralement admise que la concentration dans la cavité sous-stomatique est proche de zéro, la modélisation intègre un flux stomatique exprimé comme :

$$F_{\text{stom}} = \frac{C_{\text{O}_3\text{air}}}{\sum R} \quad (5.8)$$

où $\sum R$ représente la somme des résistances au transfert entre les cavités sous-stomatiques et le niveau de la mesure de concentration d'ozone $C_{\text{O}_3\text{air}}$ au-dessus du couvert. Pour l'ozone, à l'échelle de l'année, le dépôt non stomatique peut être dominant à cause des périodes de sols nus (Stella *et al.*, 2011). Les facteurs de régulation du dépôt sont donc les facteurs influençant le fonctionnement stomatique majoritairement et, si l'approche intègre aussi les composantes du sol ou cuticulaires pour calculer un flux total, alors des paramètres connectés à la réactivité du composé étudié (l'ozone ou tout autre gaz réactif avec les surfaces) sont introduits et des paramétrisations empiriques ou semi-empiriques sont souvent utilisées.

On pourra prendre pour exemple le modèle DO3SE (Deposition of Ozone for Stomatal Exchange ; Emberson *et al.*, 2000), qui se focalise sur le dépôt d'ozone et qui présente cette forme. Ce modèle permet de calculer les quantités d'ozone absorbées par les écosystèmes, notamment les forêts, et d'en déduire les impacts potentiels sur leur croissance. Le modèle DO3SE est paramétré et peut être utilisé pour les couverts typiques du nord de l'Europe, mais a pour vocation d'être générique et pourrait donc être étendu à d'autres types d'écosystèmes.

Modèle bidirectionnel : composé type, ammoniac

Les polluants gazeux qui interagissent avec le fonctionnement biologique de la plante peuvent contribuer à induire des concentrations dans le couvert végétal variables dans le temps. Ceci peut engendrer des gradients positifs, négatifs ou nuls avec l'atmosphère, et par conséquent des échanges bidirectionnels. Ceci s'applique

particulièrement à l'ammoniac qui est émis si la concentration dans l'air est plus faible que dans le couvert, tandis que la présence d'un couvert naturel pauvre en azote aura tendance à absorber l'ammoniac de l'air pour utiliser cette ressource en azote. Ce type de processus devrait entraîner une paramétrisation ou une modélisation explicite de la concentration dans le compartiment en question (feuille, sol, couvert). Le modèle SurfAtm-NH₃ (surface-atmosphère) est un bon exemple de la description de la paramétrisation adoptée pour le NH₃. Une paramétrisation empirique issue de différentes données de la littérature a été proposée par Massad *et al.* (2010a).

Modèle d'émissions : composés types, COV et NO biogéniques

Ce type de modèle concerne majoritairement les composés issus d'une production par le compartiment sol ou plante et qui ont une faible réactivité dans le sol ou la plante. La situation est celle des gaz comme les oxydes d'azote produits par nitrification et dénitrification dans les sols (NO, N₂O) (Hénault *et al.*, 2005) ou les COVb (Guenther *et al.*, 2012) produits par les plantes. Dans les deux cas, la paramétrisation adoptée introduit les paramètres climatiques et de fonctionnement des compartiments pour calculer la concentration du composé à la surface du compartiment. Pour les COVb, on pourra prendre pour exemple les calculs de concentration d'isoprène et de terpènes en fonction de la température des feuilles. Pour les émissions de NO, les modélisateurs ont parfois recours à des approches statistiques. Le modèle intègre alors les principaux facteurs influençant l'ensemble du processus d'émission de NO : des éléments de conduite des cultures (taux de fertilisation, drainage...), des propriétés du sol (texture, teneur en carbone organique, pH...), des effets des conditions météorologiques rencontrées (températures de surface et/ou du sol, porosité occupée par l'eau, parfois sous la forme de fonction de réponse) (Yienger et Levy, 1995 ; Veldkamp et Keller, 1997), voire même des conditions de transfert vers l'atmosphère (par exemple vitesse du vent pour Delon *et al.*, 2007). L'approche de Yienger et Levy (1995) par exemple est une version améliorée de Williams *et al.* (1992) qui prend en compte la dépendance des émissions de NO à la température du sol, à un taux de fertilisation et aux précipitations dépendant de la hauteur de précipitation.

Modèle de volatilisation après apport : composés types, produits phytopharmaceutiques

Ce type de modèle s'applique principalement à des produits chimiques de synthèse appliqués en surface des cultures. Ces produits ont été conçus pour rester en surface des compartiments (produit/effet dit « de contact ») ou pénétrer dans la plante ou le sol pour produire les effets escomptés (produit/effet dit « systémique »). Cela concerne les herbicides, les fongicides, les produits de type raccourcisseurs ou les hormones de synthèse. On parle plutôt de volatilisation dans ce cas, car le processus de passage dans l'atmosphère après application relève majoritairement de processus de changement d'équilibres de phase physico-chimique, où une proportion de la phase gazeuse du produit actif se retrouve dans le compartiment atmosphère. Dans ce cas, les modèles opérationnels actuels (Pearl, Van den Berg *et al.*, 2016 ;

SurfAtm-Pesticide, Lichiheb *et al.*, 2016) calculent la dynamique des concentrations en surface et utilisent des schémas résistifs classiques. Le focus de la paramétrisation se concentre sur les propriétés du composé en interaction avec la surface et le devenir du produit actif au cours du temps, comme exposé précédemment.

Modèle de dépôt de particules

Au même titre que les composés gazeux, le dépôt de particules pourra se modéliser suivant un schéma résistif. Aux processus de dépôt turbulent et diffusif, il faudra toutefois ajouter la sédimentation des particules due à la gravité. Compte tenu de la dimension des particules d'intérêt, la vitesse de chute (m.s^{-1}) s'exprime suivant la loi de Stokes :

$$V_s = \frac{D^2 g (\rho_p - \rho_a)}{18\eta} \quad (5.9)$$

avec D étant le diamètre de la particule, g l'accélération, et $\rho_p - \rho_a$ la différence de masse volumique de la particule avec l'air, et η la viscosité dynamique de l'air. L'inverse de cette vitesse de chute correspond à une résistance de sédimentation qu'il conviendra d'associer en parallèle aux autres résistances de dépôt.

Modèles couplés : échanges et processus physiques, chimiques et biologiques

Nous décrivons ici le couplage de cette approche de modélisation des échanges à l'interface air-surface avec le bilan d'énergie, le bilan hydrique ou même la chimie dans le couvert. Dans le premier cas, le bilan d'énergie des surfaces couplé au bilan hydrique permet de calculer les températures des surfaces et l'état hydrique du sol ainsi que les transferts des composés liés ou non aux transferts d'eau et de chaleur. Ces deux points sont essentiels pour l'évaluation des températures de surface des compartiments (la surface du sol et la surface des feuilles), lesquelles températures sont déterminantes dans la description des processus de volatilisation, d'adsorption, d'absorption ou de réactions physico-chimiques, chimiques ou biochimiques dans le sol et la plante.

Modèles avec interactions des échanges énergie-eau-polluants

Avec ce couplage entre l'eau et l'énergie pour l'agroécosystème étudié, les facteurs clés (température, pH ou concentration du composé) pour les équilibres physico-chimiques des composés peuvent être évalués par modélisation à partir d'un état initial. La modélisation du couplage des bilans d'énergie et hydrique permet de déterminer finement la teneur en eau et la température de la surface, qui conditionnent fortement les équilibres physico-chimiques impliqués dans la volatilisation d'ammoniac et de produits phytosanitaires (Garcia *et al.*, 2011). La prise en compte explicite d'une couche de lisier, ou de tout autre type de PRO, avec ses propriétés hydriques, thermiques et optiques, au-dessus de la surface du sol, comme cela est fait de manière différente dans les modèles Volt'Air (Garcia *et al.*, 2012) et Agrin (Beuning *et al.*, 2008), améliore les performances des modèles.

La modélisation du bilan d'énergie et hydrique permet aussi de connaître les niveaux d'état hydrique des plantes et donc leur ouverture stomatique, tandis que le pH ou la concentration du polluant étudié peuvent être déterminés par la modélisation de la source (l'évolution du stock de polluant dans son milieu). Quelques exemples de ce type de modèles sont les modèles DO3SE (Emberson *et al.*, 2000), Platin (Plant Atmosphere Interaction ; Grünhage et Haenel, 1997), SurfAtm (Personne *et al.*, 2009 ; Stella *et al.*, 2011) ou MODD (Tuzet *et al.*, 2011). On pourra noter que l'avantage de tels modèles réside aussi dans la transposition du schéma résistif pour l'eau et la chaleur au polluant étudié. Il est souvent précisé dans ces approches que la solidité des résultats obtenus pour la vapeur d'eau ou la chaleur, notamment par les comparaisons modèles/mesures pour les températures de surface et les flux de chaleur ou d'évaporation, conforte la transposition pour le composé gazeux étudié, étant entendu que les transferts turbulents des composés gazeux sont supposés identiques aux autres transferts de masse (eau et CO₂). Néanmoins, cela n'élimine pas l'incertitude liée au devenir à la surface de ces divers composés réactifs.

Modèles avec chimie dans et/ou au-dessus du couvert

Le deuxième type de couplage avec les modèles résistifs est abordé dans les modèles qui intègrent les réactions chimiques dans le schéma de transfert. L'intérêt de ces modèles multicouches est de représenter plus fidèlement la dynamique intra-couvert des émissions (notamment la chimie impliquant les COVb, NO_x et O₃) et des dépôts de polluants comme l'ozone et les NO_x. Ces modèles ne se limitent généralement pas à la diffusion, ils permettent notamment la prise en compte de la chimie dans le couvert. Ces modèles sont nécessaires pour évaluer précisément l'impact de la chimie sur les flux d'ozone. On peut citer le modèle CAFE (Chemistry of Atmosphere-Forest Exchange ; Wolfe et Thornton, 2011), qui utilise le modèle de chimie MCM (Master Chemical Mechanism ; Jenkin *et al.*, 2003), SOSA (Simulate the concentration of Organic vapours and Sulphuric Acid ; Boy *et al.*, 2011), FORCAsT (Forest Canopy Atmosphere Transfer ; Ashworth *et al.*, 2015), CACHE (Canopy Atmospheric Chemistry Emission Model ; Forkel et Knoche, 2006) et MLC-Chem (Multi-Layer Canopy Chemistry Exchange Model ; Ganzeveld *et al.*, 2002b). Le modèle ESX (European Surface Exchange Model ; Simpson et Tuovinen, 2014) récemment développé est quant à lui basé sur le même cadre conceptuel que le modèle de chimie-transport EMEP-CTM (Simpson *et al.*, 2012). Il a été conçu pour représenter la surface et les interactions physique et chimie au-dessus et dans le couvert. Il comprend une résolution explicite du bilan d'énergie, des réactions chimiques, des dépôts secs sur le sol et les plantes, de la physiologie végétale pertinente et des paramètres micrométéorologiques.

Modèles d'agroécosystèmes avec rétroactions biologiques

Plusieurs types de rétroactions peuvent exister entre les agroécosystèmes et l'atmosphère. Les réactions biophysiques se produisent lorsque le climat ou la composition atmosphérique provoquent des changements dans l'albédo de la végétation et du sol, le taux d'évapotranspiration, la structure et la phénologie de la végétation.

Ainsi, les changements de fonctionnement de la plante associés aux impacts des dépôts peuvent influencer sur l'évapotranspiration et le contenu en eau du sol, ce qui à son tour affecte les dépôts de polluants et de nutriments à la surface. Un exemple concerne l'impact des dépôts d'ozone sur la séquestration du carbone et les émissions de COVb, qui sont différents si une plus grande fraction de l'O₃ est éliminée par des réactions chimiques à l'intérieur du couvert plutôt que par l'absorption directe par les plantes (Fowler *et al.*, 2009). Rares sont les modèles qui prennent en compte ce type de rétroactions (Emberson *et al.*, 2018). Ewert et Porter (2000) et Tao *et al.* (2017) ont par exemple utilisé un modèle qui prend en compte le flux d'ozone effectif (le flux d'ozone stomatique qui dépasse la capacité de détoxification de la plante) et ses effets sur la photosynthèse, afin d'évaluer l'impact sur les rendements agricoles. Le modèle de Tuzet *et al.* (2011) intègre les processus de détoxification de l'O₃ et leurs impacts sur les flux de dépôts (concentration non nulle dans les cavités sous-stomatiques).

Il est important de noter que les rétroactions biologiques dépassent souvent l'échelle de la parcelle agricole et concernent le fonctionnement intégré des écosystèmes en relation avec les changements climatiques (chapitre 3).

Modèles intégrés au champ avec prise en compte des pratiques culturales

La modélisation intégrée des cycles de l'eau, de C et N au sein de l'agroécosystème permet de simuler les émissions de gaz trace vers l'atmosphère. Ces modèles simulent les processus biogéochimiques sous-jacents, tels que l'immobilisation du carbone et de l'azote dans le sol, la minéralisation de la matière organique, la photosynthèse des plantes ou encore la respiration, afin de déterminer la répartition du carbone et de l'azote dans la biomasse aérienne et dans la matière organique du sol. Certains modèles vont encore plus loin et simulent nitrification et dénitrification afin de prédire la disponibilité des ions NH₄⁺ et NO₃⁻ dans le sol. Ces modèles utilisent l'approche « potentiel/fonctions de réponse » et décrivent l'état du sol (teneur en eau, teneur en azote ammoniacal, température...) et son évolution avec des modèles de transfert d'eau et de solutés, de bilan d'énergie et de transfert de chaleur.

Certains de ces modèles sont spécifiques au compartiment sol et ne simulent pas la dynamique des cultures, d'autres sont des modèles d'écosystèmes ou d'agro-écosystèmes et ont été construits avec l'objectif de prédire la production végétale. Ces modèles sont souvent conçus de façon modulaire, et les modules interagissent les uns avec les autres pour décrire les cycles de l'eau, du carbone et de l'azote. Ainsi toute modification des facteurs environnementaux peut affecter plusieurs réactions biogéochimiques.

Modèles d'émissions du sol

Plusieurs modèles ont été développés, surtout pour simuler les émissions après application au champ de fertilisants (minéral et/ou organique) ou de PPP. Le modèle GAG par exemple (Generation of Ammonia from Grazing), développé par Moring

et al. (2016), est un modèle mécaniste capable de simuler la teneur en eau du sol et la teneur en azote ammoniacal sous un patch d'urine ainsi que la dynamique du pH. Les tests réalisés avec ce modèle suggèrent que la reprise éventuelle de l'hydrolyse de l'urée après une pluie peut avoir une incidence sur la volatilisation de NH_3 ainsi que sur les émissions de CO_2 du patch d'urine. Un autre type de modèle est le modèle Agrin (Beuning *et al.*, 2008) basé sur une description des processus. Il combine différents processus biologiques des sols tels que la décomposition, la nitrification et la dénitrification des matières organiques du sol (DNDC : DeNitrification-DeComposition model ; Li, 2000). Le modèle Volt'Air simule les flux de volatilisation d'ammoniac après épandage sur sol nu de fertilisants organiques (lisiers) (Garcia *et al.*, 2012) ou minéraux (Le Cadre, 2004), ainsi que la volatilisation de PPP après traitements phytosanitaires (Garcia *et al.*, 2014). Il inclut une description mécaniste des transferts, des processus physico-chimiques (équilibres entre les différentes formes chimiques, transferts dans le sol), mais aussi des mécanismes biologiques (puits et sources de N dans le sol, dégradation des PPP) de façon plus ou moins empirique. De nouveaux processus ont également été introduits pour améliorer les performances du modèle, comme une couche de PRO séparée. Il permet de prendre en compte de manière explicite les pratiques culturales les plus courantes (incorporation post-application, apport en bandes, injection, irrigation...).

D'autres approches plus empiriques permettent de modéliser les émissions d'ammoniac après application de lisier ou d'engrais de synthèse. La volatilisation est décrite de manière empirique mathématiquement soit par une simple régression linéaire (Menzy *et al.*, 1998), soit en utilisant des fonctions de réponses (Misselbrook *et al.*, 2004), soit grâce à une équation de type Michaelis-Menten (Søgaard *et al.*, 2002) intégrant plusieurs variables explicatives comme la teneur en eau du sol, la température de l'air, la vitesse du vent, le type de boue, la teneur en matière sèche du lisier, la teneur totale en azote ammoniacal du lisier, le mode d'incorporation et les techniques de mesure. Une actualisation a été faite récemment qui distingue plusieurs types de compartiments (Hafner *et al.*, 2019).

Modèles d'agroécosystèmes

Ce type de modèle couple des modules de dynamiques physiques et microbiologiques dans le sol et de croissance des cultures, ainsi que des modules dédiés aux émissions gazeuses (N_2O , NO , CO_2 , NH_3). Cet ensemble permet de simuler l'évolution temporelle des émissions grâce aux relations entre émissions, variables microclimatiques (température, humidité) et teneurs en azote dans le sol, qui sont dépendantes des dynamiques dans le continuum sol-plante. Dans la figure 5.6 nous pouvons voir un exemple de construction d'un modèle d'agroécosystèmes (DNDC ; Li, 2000) et la manière dont les différents modules communiquent entre eux. La plupart des modèles de culture actuels simulent les émissions de gaz à effet de serre vers l'atmosphère, mais peu de modèles intègrent les émissions de gaz polluants tels que le NH_3 et/ou les NO_x (Ceres-EGC, Crop-Environment Resources Synthesis, Gabrielle *et al.*, 2006 ; STICS, Simulateur multidisciplinaire pour les cultures standard, Brisson *et al.*, 2003 ; EPIC, Environmental Policy Integrated Model, Bash *et al.*, 2013 ; PaSim, Pasture Simulation, Riedo *et al.*, 1998 ; DNDC, Li, 2000) ou les COVb.

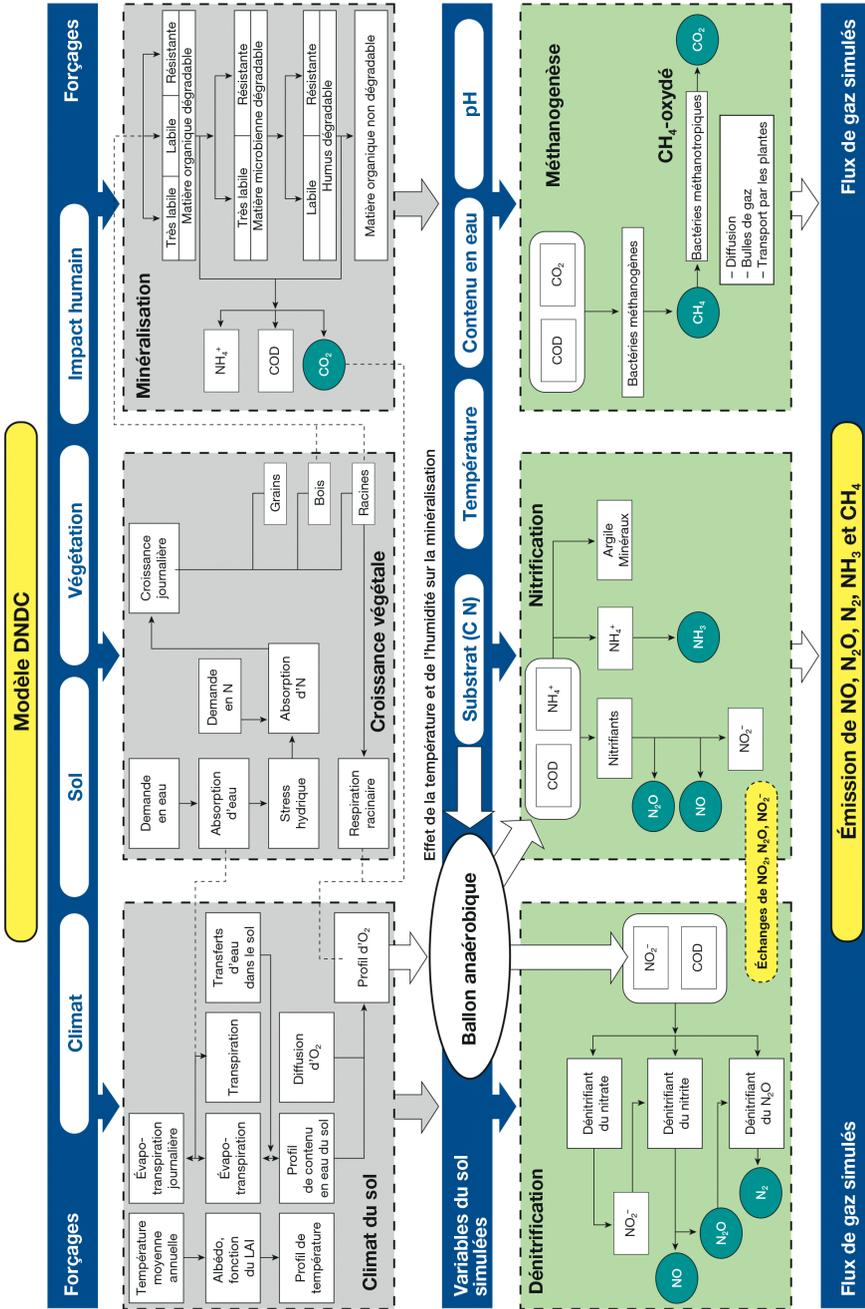


Figure 5.6. Exemple d'un modèle d'agroécosystème. Modèle DNDC à deux composants avec six sous-modèles : climat du sol, croissance des cultures, décomposition, dénitrification, nitrification et fermentation (d'après Li, 2000).
 LAI : leaf area index ; COD : carbone organique dissous.

Un des premiers modèles à avoir simulé les échanges de NH_3 est le modèle d'écosystème PaSim (Riedo *et al.*, 1998), qui simule le pâturage, la production de matière sèche ainsi que les flux de C, N, H_2O . Dans ce modèle, le stock de N foliaire est divisé en deux composantes : apoplasmique et symplasmique (Riedo *et al.*, 2002). Le stock de substrat apoplasmique a été lié à l'échange stomatique de NH_3 . Un inconvénient majeur identifié par les auteurs est que PaSim ne considère pas les formes de N absorbées par les racines (réduite ou oxydée), ce qui peut être important, car les plantes absorbant prioritairement le NH_4^+ ont des émissions de NH_3 plus élevées que les plantes absorbant prioritairement le NO_3^- .

Brilli *et al.* (2017) font une synthèse des forces et faiblesses des modèles d'agro-écosystèmes et de leurs capacités à simuler les flux de C et de N. Certains modèles comme Daycent (Daily Century, Parton *et al.*, 1998) et DNDC (Li, 2000) sont des modèles capables de simuler le fonctionnement de différents agroécosystèmes (forêt, prairie, culture), alors que d'autres modèles sont dédiés à un type d'agro-écosystème : c'est le cas des modèles Ceres-EGC ou Stics qui sont dédiés aux grandes cultures, et du modèle PaSim qui est dédié au pâturage. Il est important de noter que, concernant les modèles d'agroécosystèmes, la gestion des cultures a un impact important sur les cycles C et N.

» Échelles supérieures (2D-3D)

Les productions et pratiques agricoles entraînent des pertes de composés réactifs vers l'environnement. Ces transferts se produisent par le biais de transferts hydriques dans le sol à l'origine des augmentations des teneurs en nitrate dans les eaux en zones agricoles, mais aussi en produits pharmaceutiques, et de transferts atmosphériques pour les composés gazeux et particulaires.

Les modèles de transfert atmosphérique

Les composés gazeux ou particulaires émis dans l'atmosphère par les activités agricoles sont transportés à plus ou moins grande distance par le vent, selon leur durée de vie atmosphérique. Au cours de leur transport, ils sont dilués par l'action de la turbulence qui tend à homogénéiser leur concentration dans la troposphère.

Il existe de très nombreux modèles de transfert atmosphérique (modèles aux échelles locales, régionales et globales). Nous ne présenterons ici que les grands principes et donnerons les références de quelques modèles importants dans la communauté scientifique qui traite de pollution de l'air et d'agriculture. Le lecteur pourra consulter les revues sur les modèles existants (Leelőssy *et al.*, 2014).

Les modèles eulériens

Une première classe de modèle de transfert est constituée des modèles eulériens, qui décrivent l'évolution de la masse en chaque point du domaine par des équations aux dérivées partielles. Le cas le plus simple est celui de l'équation du bilan de

masse avec une paramétrisation du flux diffusif par une loi de Fick, qui peut s'écrire comme suit pour un composé gazeux ou particulaire :

$$\overbrace{\frac{\partial C_i}{\partial t} + u_x \frac{\partial C_i}{\partial x} + u_y \frac{\partial C_i}{\partial y} + u_z \frac{\partial C_i}{\partial z}}^{\text{Advection}} = \overbrace{\frac{\partial}{\partial x} \left(K_{xx} \frac{\partial C_i}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(K_{yy} \frac{\partial C_i}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(K_{zz} \frac{\partial C_i}{\partial z} \right)}^{\text{Diffusion}} + \underbrace{R_i(C_1, C_2, \dots, C_n)}_{\text{Chimie}} + \underbrace{E_i(x, y, z, t)}_{\text{Émissions}} - \underbrace{D_i(x, y, z, t)}_{\text{Dépôts}} + \underbrace{S_i(z, t)}_{\text{Sédimentation}} \quad (5.10)$$

où $\partial C_i / \partial t$ exprime l'évolution temporelle des concentrations C_i d'un composé i donné, en incluant les sources et pertes dues au transport advectif et diffusif, à la chimie, aux émissions, aux dépôts et à la sédimentation des particules. Les termes K_{xx} , K_{yy} et K_{zz} sont des diffusivités ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$) dans les trois dimensions de l'espace euclidien. Le terme $S_i(z, t)$ est la vitesse de sédimentation gravitaire des particules (Seinfeld et Pandis, 2016), qui peut être élevée pour des particules biotiques (Loubet *et al.*, 2007) et ne s'exprime que dans la direction verticale (z). Dans le cas d'un gaz, cette vitesse est nulle. Dans le cas de particules, le terme de diffusion est ajusté pour tenir compte soit de l'inertie des particules les plus grosses (Bouvet et Wilson, 2006), soit de la diffusion brownienne pour les particules les plus fines (Reynolds et Kassinos, 1995). L'équation du bilan de masse s'exprime de la manière suivante : la variation de concentration dans un volume de l'atmosphère au cours du temps est égale à la quantité de matière qui rentre moins celle qui sort (par diffusion et advection), additionnée d'un terme source (positif ou négatif) qui peut ainsi représenter à la fois une source primaire (émissions par un bâtiment d'élevage par exemple), un puits primaire (dépôt) et une source ou un puits secondaire (réaction avec d'autres composés).

Les modèles eulériens de chimie-transport aux échelles régionales et continentales (par exemple Chimere⁴⁴, EMEP⁴⁵) sont basés sur une équation qui est résolue numériquement (par différences finies) simultanément pour l'ensemble des composés réactifs que l'on étudie et couplée à un modèle qui décrit les interactions chimiques des composés. Les termes de dépôts sont le plus souvent intégrés comme une condition aux limites. Ces modèles sont adaptés aux grandes échelles et nécessitent que les champs de vent et de diffusivité soient fournis par des modèles ou des données météorologiques.

À l'échelle locale, les solutions semi-analytiques de l'équation du bilan de masse sont le plus souvent utilisées, car elles permettent de descendre à des résolutions du mètre avec un temps de calcul limité. Ces solutions sont obtenues en exprimant par des fonctions simples les champs de vent et de diffusivité, en faisant une hypothèse de stationnarité et en considérant chaque source de manière indépendante. Les réactions chimiques sont négligées aux échelles de temps et d'espace traités (< 5 km). La famille des modèles gaussiens ou quasi gaussiens fait partie de cette catégorie (Seinfeld et Pandis, 1998). Les modèles sont basés soit sur des données horaires (Fides, Loubet et Cellier, 2001), soit sur des statistiques hebdomadaires ou mensuelles (OPS⁴⁶). Une limite importante de ces modèles est qu'ils considèrent la surface comme uniforme et ne sont donc pas adaptés à des situations très accidentées.

44. www.lmd.polytechnique.fr/chimere/.

45. <http://www.emep.int/>.

46. <https://www.rivm.nl/media/ops/OPS-model.pdf>.

Des modèles eulériens plus complexes existent, de fermeture au second ordre ou des modèles LES (Large Eddy Simulation). On peut citer également des modèles qui intègrent un système non hydrostatique d'équations pour faire face à toutes les échelles allant de large (synoptique) à petit (grand tourbillon). Le modèle Meso-NH (Lafore *et al.*, 1997) en est un exemple, développé en France et qui est également couplé à un modèle de surface (Masson *et al.*, 2013) et à un modèle de chimie atmosphérique.

Les modèles lagrangiens

Une autre classe de modèles est constituée des modèles lagrangiens, qui expriment à nouveau la conservation de la masse d'un composé mais dans le repère lié au fluide porteur. Parmi les modèles lagrangiens, deux catégories existent, les modèles stochastiques, qui simulent un grand nombre de particules (fluides ou solides) (Wilson et Sawford, 1996), et les modèles de colonnes lagrangiennes, qui simulent le déplacement d'une colonne fluide qui suit le vent moyen et au sein de laquelle la diffusion est modélisée de façon eulérienne selon la verticale (Theobald *et al.*, 2013). Les modèles lagrangiens stochastiques peuvent simuler l'équation du bilan de masse exposé plus haut. Il s'agit de modèles de marche aléatoire (*random walk*) qui modélisent l'évolution de la position de la particule. D'autres modèles simulent de façon couplée la position et la vitesse de la particule et permettent de prendre en compte des phénomènes de transport non diffusifs, essentiels pour intégrer le transfert dans les couverts végétaux et donc adaptés aux échelles très locales (Rodean, 1996).

L'utilisation des modèles de dispersion atmosphérique pour estimer les sources

Les modèles décrits dans les sections précédentes peuvent être utilisés pour estimer les sources à partir des concentrations mesurées. Le principe est simple : on simule la ou les concentrations sur les sites récepteurs avec les modèles et on cherche les termes sources dans le modèle qui permettent de minimiser la différence entre concentrations mesurées et modélisées. La contrainte est qu'il faut au minimum autant de concentrations mesurées que de sources à estimer, sans quoi le problème n'a pas de solution unique. Il faut par ailleurs que les sites récepteurs où les concentrations sont mesurées aient une empreinte distincte afin que l'information ne soit pas redondante. Ces techniques s'appliquent à l'échelle très locale de quelques dizaines de mètres (Flesch *et al.*, 2007) ou régionale (Bousquet *et al.*, 2006). Les méthodes d'inversion permettent d'estimer les émissions d'une ou plusieurs sources et les techniques vont de la méthode de résolution de systèmes linéaires (Loubet *et al.*, 2018) aux méthodes d'inversion bayésienne (Yee et Flesch, 2010). Ces méthodes sont très appliquées pour estimer les émissions d'ammoniac par l'agriculture.

Échelle du paysage

À l'échelle du paysage, les enjeux sont de coupler différents modèles existants à l'échelle de la parcelle ou des bâtiments d'élevage. Cela concerne les modèles d'émissions et de dépôts des différents composés d'intérêt issus de la mosaïque paysagère

(cultures, prairies, forêts) ou du stockage des déjections animales (voir encadré 5.2). On cherche à prendre en compte également les transferts de ces composés par voies hydrologique et atmosphérique, en tenant compte de manière plus spécifique des effets des perturbations locales des écoulements, causées par les bâtiments d'élevage ou les haies.

Les effets des obstacles sur la dispersion

Dans cette section, est tout d'abord illustrée l'importance de bien prendre en compte les effets des obstacles sur la dispersion ainsi que les dépôts à courte distance. Sont ensuite décrits les modèles développés à cette échelle du paysage pour l'azote, d'une part, et pour les PPP, d'autre part.

Le modèle de Fleisch *et al.* (2005) montre que la perturbation du champ de vent et de turbulence par une structure (étable, réservoir de stockage, haie d'arbres) a une influence sur la dispersion des polluants, qui se fait sentir jusqu'à des distances de 5 à 10 fois la hauteur de l'obstacle. Ces effets peuvent être très importants sur les motifs de dispersion à l'échelle locale. Dans ces situations, les modèles de turbulence de type CFD (Computational Fluid Dynamics) sont très utiles, couplés ou non à des modèles lagrangiens. À titre d'exemple, on peut citer les cas de dispersion autour de bâtiments (Quinn *et al.*, 2001), d'effet des discontinuités de couverts pour la dispersion des pollens (Dupont *et al.*, 2006), des ceintures arborées pour capter l'azote réactif atmosphérique, comme le montre la figure 5.7 (Bealey *et al.*, 2014), des haies d'arbres pour capturer les gouttelettes de PPP (Charbonnier *et al.*, 2015).

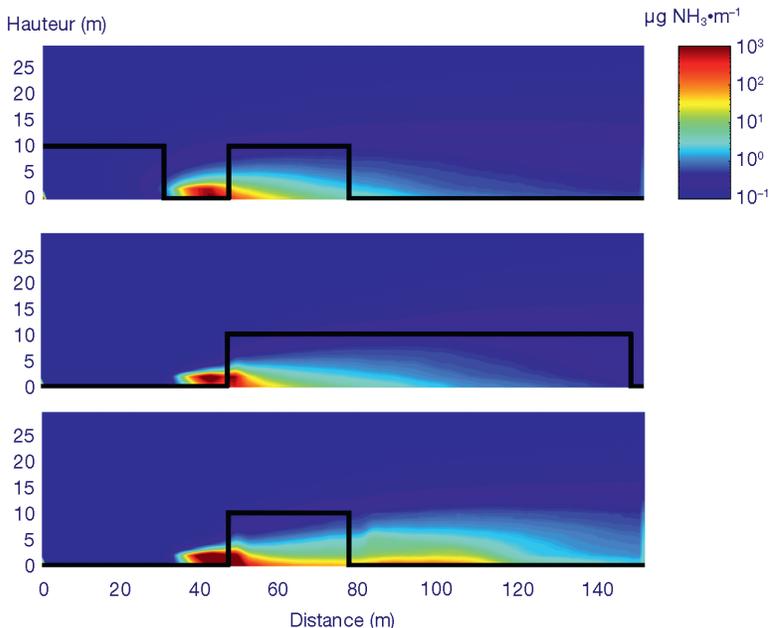


Figure 5.7. Illustration de l'utilisation d'un modèle k-epsilon combiné à un modèle lagrangien stochastique pour évaluer l'efficacité de piégeage de ceintures arborées : le trait noir indique la position des arbres autour d'un bâtiment d'élevage (Bealey *et al.*, 2014).

Le dépôt à courte distance

Comme les sources agricoles sont proches de la surface (hauteur < 10 m), les concentrations de polluants restent élevées près du sol, menant à des dépôts importants à proximité des sources, notamment pour l'ammoniac, principal composé du transfert d'azote réactif par voie atmosphérique, et composé très soluble, propriété propice au dépôt (Asman *et al.*, 1998). À ce titre, la modélisation permet d'illustrer l'importance du dépôt sec local d'ammoniac (figure 5.8) : jusqu'à 70 % des quantités émises par un bâtiment d'élevage de taille modeste peuvent se déposer dans les deux premiers kilomètres en aval de ce bâtiment.

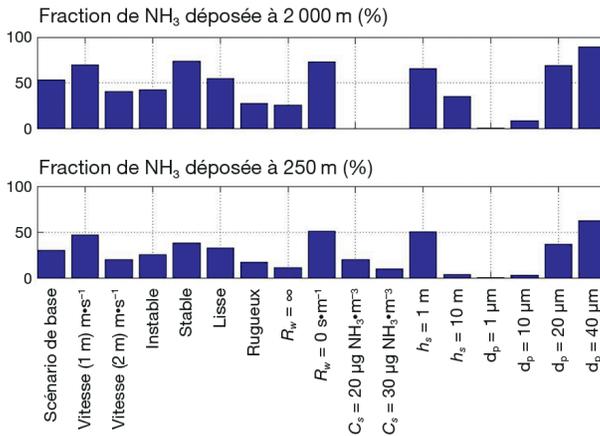


Figure 5.8. Fraction d'ammoniac déposée à 250 m et 2 000 m en aval d'un bâtiment d'élevage émettant $800 \text{ NH}_3 \cdot \text{an}^{-1}$.

La sensibilité aux paramètres du transfert atmosphérique est donnée pour : le vent (vitesse), la stabilité de la couche limite (instable, stable), la rugosité des surfaces avoisinant le bâtiment (lisse, rugueux), la résistance de surface (R_w), la concentration dans le couvert (C_s), la hauteur de la source (h_s). La comparaison avec la dispersion de particules est aussi donnée ($d_p = 1 \mu\text{m}$ à $40 \mu\text{m}$). Ces estimations ont été obtenues avec un modèle quasi gaussien (d'après Loubet *et al.*, 2009).

Paysage, le cas de NitroScape

Un défi majeur de l'agriculture consiste à proposer des stratégies pour réduire les pertes environnementales d'azote, tout en préservant la capacité de production de l'activité agricole. L'échelle du paysage agricole (quelques kilomètres carrés à quelques dizaines de kilomètres carrés) est particulièrement pertinente pour y répondre, car c'est à cette échelle que sont gérés les apports d'azote aux cultures par les agriculteurs. C'est aussi dans les mosaïques paysagères que les transferts par les voies atmosphérique et hydrologique redistribuent l'azote entre les composantes du paysage, que s'expriment les premiers impacts sur les écosystèmes naturels et que se produisent les transformations ultérieures de l'azote (telles que les émissions indirectes de N_2O). Les modèles intégrés constituent des outils utiles pour analyser des agroécosystèmes complexes et évaluer des scénarios agroenvironnementaux alternatifs aux agroécosystèmes actuels.

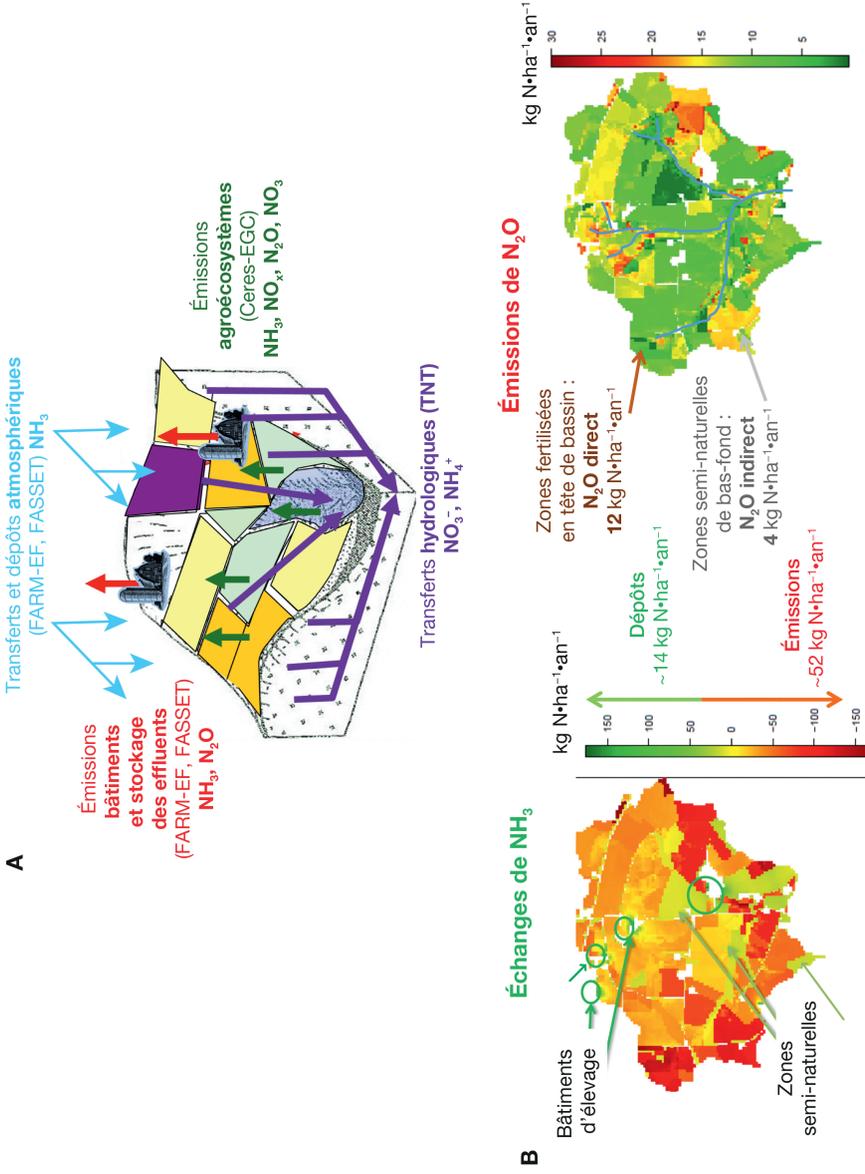


Figure 5.9. (A) Schéma conceptuel du modèle NitroScape. (B) Exemple de résultats d'échanges de NH_3 et d'émissions de N_2O du modèle NitroScape appliqué sur un bassin versant.

Le modèle NitroScape (figure 5.9A) (Duret *et al.*, 2011) couple différents modèles décrivant les processus de transferts et de transformations d'azote réactif (NH_3 , NO_x , NO_3^- , NH_4^+ , N_2O) dans quatre grands compartiments de paysages agricoles dont les structures et les hétérogénéités spatiales sont explicitement décrites : gestion de l'azote au sein des exploitations agricoles, notamment pour les activités d'élevage, soit par le modèle Fasset (Farm Assessment Tool, Bernsten *et al.*, 2003), soit par le modèle FARM-EF, basé sur le coefficient d'émission des animaux et des zones de stockage des effluents ; transformations et transferts d'azote par voie biophysico-chimique dans les agroécosystèmes par le modèle Ceres-EGC (Gabrielle *et al.*, 2006) ; transferts d'azote entre agroécosystèmes par voie atmosphérique soit par le modèle OPS (van Jaarsveld et de Leeuw, 1993), soit par le modèle couplé Fides-3D-SurfAtm (Loubet *et al.*, 2001 ; Personne *et al.*, 2009) ; transferts d'azote entre agroécosystèmes par voie hydrologique par le modèle TNT (Topography-Based Nitrogen Transfer and Transformation) (Beaujouan *et al.*, 2002). Le couplage des modèles dans NitroScape a été réalisé à l'aide du coupleur PALM (Buis *et al.*, 2006). Le modèle NitroScape est couplé à une base de données spatialisée (Drouet *et al.*, 2012) contenant les paramètres, les variables d'entrée et les variables de sortie nécessaires au modèle pour six sites européens (projet FP6-NitroEurope, 2006-2011) et quatre sites français (projet ANR Escapade, 2013-2017).

NitroScape permet de simuler la dynamique des flux d'azote et des interactions spatiales entre les composantes du paysage (figure 5.9B) et d'évaluer la contribution de chacune des voies de transfert aux flux, dont les pertes, et aux bilans d'azote (Drouet *et al.*, 2012). Il permet aussi d'évaluer des scénarios alternatifs aux pratiques agricoles et aux mosaïques paysagères observées. Les simulations sont effectuées sur des paysages décrits par des mailles, typiquement de $25 \times 25 \text{ m}^2$, et intégrées spatialement à l'échelle d'un paysage de quelques kilomètres carrés à quelques dizaines de kilomètres carrés, typiquement un petit bassin versant. Les flux sont simulés dynamiquement au pas de temps journalier dans les modèles d'exploitation agricole, d'agroécosystèmes et de transferts hydrologiques. Ils sont simulés au pas de temps horaire dans les modèles de transferts atmosphériques. Les flux sont intégrés temporellement à l'échelle du cycle cultural ou d'une à plusieurs années.

Paysage, le cas des produits phytopharmaceutiques

Disposer d'outils qui décrivent de façon exhaustive les voies de dispersion des PPP, du champ au paysage, apparaît comme primordial dans la compréhension de cette dispersion, mais également dans l'évaluation des contributions respectives à la dispersion de chaque voie de contamination ou dans l'identification des moyens de limiter la dispersion. Cela requiert d'agrèger les connaissances acquises processus par processus et de coupler les approches de modélisation initialement concentrées sur des voies spécifiques comme la dispersion atmosphérique, le transport des eaux de ruissellement de surface ou la percolation vers les eaux souterraines. Ainsi, un modèle intégré du devenir des PPP à l'échelle du paysage, nommé MIPP (Modélisation intégrée du devenir des pesticides dans le paysage), est développé à l'Inra pour prédire les concentrations de PPP dans le sol, l'eau et l'air et leurs échanges entre ces milieux environnementaux,

influencés par l'organisation spatiale et temporelle des activités agricoles et par l'hétérogénéité intrinsèque des paysages. Un des premiers défis relevés par MIPP est de coupler la description de la dispersion atmosphérique à l'échelle du bassin versant avec la description des processus hydrologiques, échelle qui est typique des études hydrologiques, mais moins des études atmosphériques. Ce défi se décline également au niveau du couplage des représentations de l'espace dans chaque compartiment (3D pour l'atmosphère et 2D pour les écoulements hydrologiques de surface). Ces approches utilisent une description eulérienne de l'atmosphère, c'est-à-dire *via* des mailles régulières d'une grille atmosphérique, et sont basées sur des graphes représentant divers types d'éléments du paysage (unités de surface, linéaires...) pour ce qui est des aspects hydrologiques. Un second modèle porte sur la représentation des échanges à l'interface surface-atmosphère à l'échelle du paysage (figure 5.10). Une sélection de processus à décrire dans une première étape a été faite : la répartition à l'application entre culture, sol et atmosphère, les transferts dans le sol et dans les eaux de surface, la dégradation, les équilibres physico-chimiques, la volatilisation, la dérive de pulvérisation, la dispersion atmosphérique de la fraction volatilisée, le dépôt gazeux atmosphérique. Les couplages mobilisent les trois plateformes de simulations, OpenFluid⁴⁷, Record⁴⁸ et SOL Virtuel⁴⁹, qui fournissent chacune des modules relatifs aux processus liés au sol, à la culture ou au paysage.

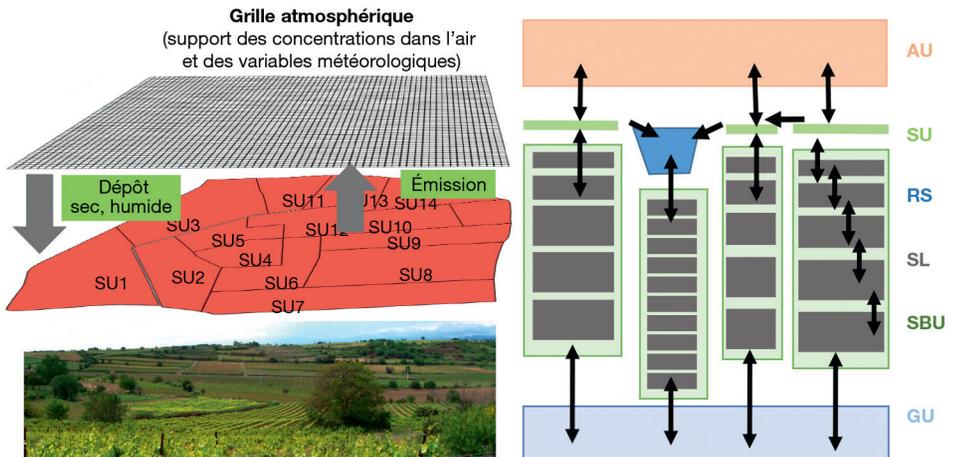


Figure 5.10. Modèle de dispersion des produits phytopharmaceutiques dans l'environnement à l'échelle d'un bassin versant (modèle MIPP).

AU : unité atmosphérique (2D) ; SU : unités de surface sol (polygones 2D) ; RS : segments de rivière (lignes 1D) ; SL : couches de sol (3D) ; SBU : unités sous-surfaces ; GU : unités eaux profondes (3D).

47. <https://www.openfluid-project.org/>

48. <https://www.inra.fr/record>

49. <https://www.paca.inra.fr/emmah/Programme-scientifique-et-Equipes/Plateforme-Sol-Virtuel>

Encadré 5.2. Les bâtiments d'élevage : des systèmes complexes, entre biologie et technologie.

Les bâtiments d'élevage sont des sources de composés gazeux polluants ou à effet de serre et de particules. Ce sont de plus des sources localisées, présentant souvent des densités de flux élevées qui peuvent présenter des risques pour les écosystèmes voisins, à tel point que certains sont soumis à la directive IED (Industrial Emissions Directive, directive 2010/75/EU). Les processus conduisant aux émissions de polluants sont pour la plupart de même nature que ceux à l'origine des émissions sur les parcelles agricoles, mais le contexte est très différent. Ces émissions peuvent être affectées par de nombreux facteurs liés au type d'élevage, à sa conduite et aux caractéristiques du bâtiment, tels que la nature de la surface sur laquelle vivent les animaux (aire bétonnée, caillebotis, litière végétale), la gestion des déjections, la ventilation forcée ou naturelle, la gestion de l'ambiance climatique, le stockage des effluents sous les animaux ou non, la manipulation interne pour le nourrissage, le déplacement des animaux. Cette multiplicité de facteurs d'influence rend difficiles la prédiction des émissions et l'évaluation de l'efficacité de pratiques visant à les réduire sans nuire au confort des animaux et de l'éleveur. La modélisation est donc ici un outil privilégié pour mieux appréhender ces questions en permettant de prendre en compte un certain nombre d'effets liés au bâtiment, aux animaux et aux itinéraires de conduite des animaux.

La modélisation des émissions en élevage se heurte à la difficulté de caractérisation des pratiques d'élevage et de gestion des effluents. En développant des modèles basés sur les bilans de masse et d'énergie, dans la continuité de la tradition, puis en y ajoutant une représentation du devenir de l'azote, des modèles robustes ont été développés. Ces derniers permettent de s'adapter à la diversité des situations rencontrées sur le terrain, d'être renseignés à partir d'informations de référence disponibles auprès des instituts techniques et des chambres d'agriculture et d'être validés à partir des informations enregistrées en élevage pour les besoins de pilotage du troupeau.

Les deux exemples ci-dessous illustrent les démarches qui peuvent être menées dans ce domaine.

La modélisation d'une salle d'élevage pour la durée d'un lot d'animaux a pour objectif de représenter les flux de masse et d'énergie, et par conséquent les émissions, sous la dépendance du climat, du métabolisme animal et des spécificités de construction du bâtiment. La représentation comprend un volet spécifique aux animaux (croissance et rétention corporelle, effectif dans le bâtiment en fonction de la mortalité, des départs vers l'abattoir et/ou des sorties vers un parcours extérieur, entrée des jeunes animaux et renouvellement des lots), un volet spécifique au bâtiment (équilibre thermique, ventilation, équipements de chauffage, refroidissement et récupération de chaleur) et un volet spécifique aux effluents (voir la figure 5.11A illustrant le modèle Moldavi). Le modèle est utilisé pour comparer des scénarios et évaluer l'effet de différentes combinaisons de processus (par exemple interaction entre un changement d'aliment et un changement de mode d'abreuvement sur l'émission d'ammoniac d'un élevage de poulets de chair).

La représentation détaillée des processus de transformation des rejets animaux dans les fumiers a été initiée à travers la modélisation des émissions au cours du stockage des fumiers (figure 5.11B illustrant le modèle Megasmoc). Les processus représentés intègrent les bilans de masse et d'énergie. Ils permettent de calculer la stabilisation de la matière organique et les émissions gazeuses pour la diversité

des fumiers observés en élevage à partir de caractéristiques disponibles en élevage (composition, volume) et pour une série climatique connue (température, humidité, pluviométrie). Ce modèle peut être utilisé pour pronostiquer les émissions gazeuses de différentes alternatives de stockage des fumiers ou pour extrapoler des mesures d'émissions à une diversité de situations voisines.

Ces deux types de modèles peuvent également être mobilisés pour optimiser le choix de protocoles expérimentaux dans le but de réduire l'usage des animaux domestiques pour les besoins de la recherche.

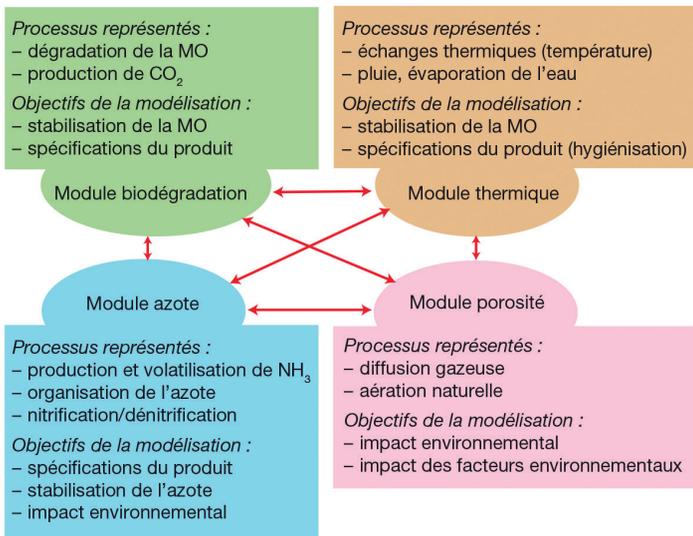
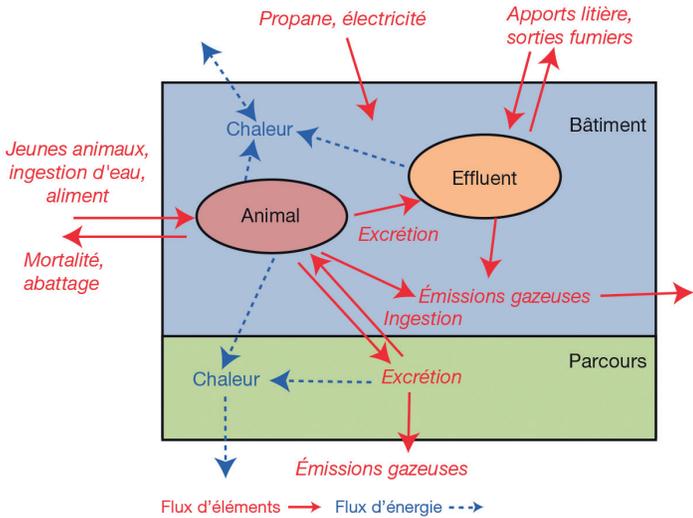


Figure 5.11. (A) Modélisation des émissions d'un bâtiment d'élevage avicole (modèle Moldavi) ; (B) modélisation des émissions gazeuses et de la stabilisation de la matière organique (MO) au cours du stockage/compostage des fumiers (modèle Megasmoc).

Échelles régionale et globale

Dans cette section, nous décrivons les grands principes de la construction des modèles de chimie-transport utilisés pour simuler l'impact des échanges entre les surfaces et l'air sur la composition de la basse atmosphère et sur le dépôt à large échelle. Nous donnerons ensuite des exemples d'utilisation de ces modèles pour la modélisation inverse des émissions d'ammoniac, dont le rôle important pour la formation d'aérosols fins a suscité récemment un nombre croissant d'études.

Les modèles de chimie-transport

Les modèles de chimie-transport (Chemical Transport Models, CTM) couvrent soit un domaine délimité, on parle alors de CTM régionaux, soit la totalité du globe (CTM globaux). Les CTM régionaux considèrent une échelle allant typiquement de plusieurs dizaines ou centaines de kilomètres (agglomération urbaine ou partie d'un pays) à plusieurs milliers de kilomètres (continent, voire hémisphère). Les modèles les plus utilisés sont aujourd'hui généralement de type eulérien, c'est-à-dire que leur domaine spatial est maillé de façon fixe dans les trois dimensions. Selon le domaine couvert, leurs résolutions horizontales varient de quelques kilomètres à plusieurs dizaines de kilomètres pour les modèles régionaux et d'un à plusieurs degrés pour les modèles globaux. Leur résolution verticale varie avec l'altitude : elle est le plus souvent de quelques dizaines de mètres au niveau du sol et atteint un, voire plusieurs kilomètres dans la troposphère et la stratosphère, lorsque cette dernière est prise en compte. Pour réaliser des simulations sur un large domaine, avec de faibles résolutions par endroits, des techniques d'imbrication d'échelles ont été développées. Elles s'appuient sur la réalisation de simulations emboîtées de résolution croissante avec un transfert d'informations depuis des domaines larges vers des domaines plus petits, et parfois dans les deux sens. Les modèles de chimie-transport résolvent pour chaque maille l'équation de conservation de la masse (équation 5.10).

Les processus pris en compte dans l'équation sont exprimés dans les CTM régionaux et globaux de façon généralement simplifiée, car les limitations en temps de calcul ne permettent pas en général de représenter des processus tels que la turbulence de façon explicite, ou d'inclure la totalité des espèces chimiques (plusieurs milliers).

Plusieurs CTM régionaux ont été développés en France, parmi lesquels le modèle Chimere (Menut *et al.*, 2013) avec son extension hémisphérique (Mailler *et al.*, 2017), le modèle Polyphemus (Mallet *et al.*, 2007) et le modèle Morage, qui opère également à l'échelle globale (Nho-Kim *et al.*, 2002), tout comme le modèle LMDZ-INCA (Hauglustaine *et al.*, 2004). Meso-NH chimie est un modèle couplé dans lequel les processus chimiques sont calculés en ligne au sein du modèle météorologique. Par rapport à un CTM où les données météorologiques sont fournies par un modèle fonctionnant en amont, cette configuration permet une interaction entre les calculs météorologiques et la composition atmosphérique, mais elle demande davantage de temps de calcul (Leriche *et al.*, 2013).

Le transport des composés dans l'atmosphère se décompose en un terme advectif unidirectionnel (d'une maille à l'autre) et un terme turbulent bidirectionnel

(échanges entre deux mailles). Du fait de la discrétisation de l'espace, le transport advectif est exprimé par un schéma numérique d'une précision d'ordre un à quatre. Il utilise comme entrées les données 3D de vitesse et de direction du vent issues des calculs du modèle météorologique. Le transport turbulent est en général paramétré *via* un coefficient d'échange calculé en fonction des flux de chaleur et de quantité de mouvement à la surface, et de la stabilité thermique dans les basses couches de l'atmosphère (Stull, 1988). Des tourbillons de plus grande échelle peuvent également être pris en compte explicitement (Large Eddy Simulation, LES ; par exemple Moeng *et al.*, 1984).

Comme l'ensemble des polluants, les composés chimiques émis par l'agriculture sont réactifs. Dans l'atmosphère, ils subissent une oxydation progressive sous l'effet de différents agents, notamment des radicaux tels que OH ou NO₃, mais aussi moléculaires comme O₃, ces réactions pouvant être initiées ou poursuivies par un processus de photolyse (hv) (chapitre 2). L'ensemble de ces transformations induit, d'une part, la formation de polluants secondaires gazeux plus solubles dans l'eau que leurs précurseurs, et, d'autre part, le passage des espèces gazeuses dans la phase particulaire, ce qui favorise leur disparition par dépôts à la fois sec et humide (chapitre 2). Les processus chimiques couvrant l'ensemble des cycles radicalaires photo-initiés subis par les polluants atmosphériques sont représentés dans les CTM. Le nombre de composés organiques volatils (COV) impliqués dans ces cycles étant extrêmement élevé, les CTM s'appuient sur une représentation groupée des COV, par famille ou par fonctionnalisation, permettant de proposer des schémas chimiques réduits limités à quelques dizaines ou à une centaine de composés pour 100 à 200 réactions chimiques. C'est le cas des mécanismes Melchior, inclus dans Chimere (Menut *et al.*, 2013) et basés sur le mécanisme du modèle EMEP (Simpson *et al.*, 2012), ou encore du mécanisme SAPRC (Carter, 2010). Il est important de noter que la chimie des composés inorganiques est limitée à un nombre raisonnable de réactions, et traitée de manière explicite dans les CTM (Menut *et al.*, 2013). Enfin, des modules thermodynamiques basés sur les coefficients de partage gaz/particules des espèces chimiques primaires et secondaires, et proposant certaines réactions en phase particulaire, permettent la représentation des processus multiphasiques atmosphériques dans les CTM, à l'instar des modules Isorropia pour la partie inorganique (Nenes *et al.*, 1998) et The Secondary Organic Aerosol Processor (SOAP) pour la partie organique (Couvidat et Sartelet, 2015).

Les émissions anthropiques des composés chimiques nécessaires aux CTM sont en général des données extérieures, fournies par des cadastres d'émissions statiques pour une activité (industrie, trafic, résidentiel...), une localisation et un composé donnés, puis distribuées selon une clé de répartition temporelle adaptée (Kuenen *et al.*, 2014). Cette approche non dynamique n'est pas adaptée à certains composés issus de la biosphère, puisque la variabilité temporelle de leurs émissions dépend de l'activité de cette biosphère, qui doit alors être modélisée de façon dynamique. Ainsi, Rolland *et al.* (2010) ont associé le modèle d'agroécosystème Ceres-EGC, qui simule la dynamique de l'azote dans le système sol-plante, avec une base de données SIG (système d'information géographique) pour prédire les émissions des terres arables de l'Île-de-France

en NO, en fonction de l'humidité et de la température du sol, des données fournies par un modèle météorologique à méso-échelle ainsi que des pratiques de fertilisation. De façon similaire, Hamaoui-Laguel *et al.* (2014) ont couplé avec le CTM Chimere le modèle mécaniste Volt'Air (Génermont et Cellier, 1997) exprimant la volatilité de l'azote ammoniacal, issu d'engrais en fonction de plusieurs paramètres physico-chimiques du sol (humidité, température, pH...) et de la surface (vent). Pour une saison de printemps, les émissions de NH₃ calculées par ces modèles dédiés montrent des différences significatives avec le cadastre statique d'EMEP (Hutchings *et al.*, 2009), atteignant plusieurs dizaines de pourcents, notamment dans le nord-est de la France (Hamaoui-Laguel *et al.*, 2014). À l'échelle globale, le modèle de végétation Orchidee (Organising Carbon and Hydrology In Dynamic Ecosystems) a été couplé aux CTM globaux tels que LMDZ-INCA (Krinner *et al.*, 2005).

Dans les CTM, la paramétrisation du dépôt sec suit généralement le schéma classique de résistances décrit dans ce chapitre, représentant le dépôt suivant un schéma de résistances en série ou en parallèle. Ce schéma ne prend toutefois pas en compte le couplage entre les émissions et les dépôts à proximité de la surface. Cette problématique a été à l'origine de l'implémentation du module d'échange bidirectionnel air-surface Depac (Deposition of Acidifying Compounds, Wichink Kruit *et al.*, 2010) dans le CTM Lotos-Euros (Manders *et al.*, 2017). La prise en compte du point de compensation, qui engendre une suppression partielle ou totale du dépôt de NH₃ en cas de présence de cette molécule dans le sol ou dans la végétation, a eu pour conséquence une baisse du dépôt simulé de NH₃, en particulier dans les régions sources (Wichink Kruit *et al.*, 2012). En implémentant un schéma bidirectionnel dans le modèle Geoschem, Zhu *et al.* (2015) trouvent à la fois des augmentations et des baisses des concentrations en NH₃ à la surface en fonction des régions et de la saison. Toutefois, une résolution spatiale verticale insuffisante peut également affecter le dépôt, comme le montre Azouz (2017) en comparant dans une expérience idéalisée les simulations de Chimere (d'une résolution spatiale de l'ordre du kilomètre) avec celles d'un modèle gaussien dont la résolution spatiale est par construction infinitésimale. Dans cette étude, les dépôts moyens simulés à proximité des sources (moins de 10 km) avec Chimere étaient inférieurs d'environ 30 % à ceux simulés par le modèle gaussien. Cette différence était notamment due à une dilution verticale initiale excessive dans la première couche du modèle Chimere (d'une hauteur de 25 m pour cette simulation, typique pour des applications CTM).

Exemple 1. Utilisation des modèles pour contraindre les émissions d'ammoniac et modélisation inverse

Quantifier l'impact des émissions de NH₃ sur le dépôt d'azote et sur les concentrations des particules à l'échelle régionale nécessite d'abord de bien quantifier ces émissions. Or les cadastres d'émissions utilisés pour la modélisation à larges échelles sont entachés d'une incertitude qui a été estimée à un facteur d'environ trois, pour des émissions locales (Fortems-Cheiney *et al.*, 2016), en raison des incertitudes sur les dates et la localisation de la fertilisation azotée et sur les facteurs d'émissions associés.

La modélisation inverse à partir d'observations atmosphériques d'ammoniac ou de son dépôt à la surface apparaît alors comme une méthode indépendante utile pour réduire l'incertitude sur ces cadastres d'émissions. De façon générale, les techniques de modélisation inverse minimisent une fonction de coût $J(x)$ par le biais de méthodes variationnelles, ou par simple ajustement. Cette fonction de coût fait apparaître les différences entre concentrations simulées x et observées y , et entre émissions *a priori* x_a et émissions corrigées x , pondérées respectivement par les matrices d'erreurs sur les observations S_ϵ et les émissions S_a . Dans cette équation, l'opérateur K projette les émissions dans l'espace des concentrations ; dans les études citées ici, cette tâche est remplie par le CTM.

$$J(x) = (x - x_a)^T S_a^{-1} (x - x_a) + (y - Kx)^T S_\epsilon^{-1} (y - Kx) \quad (5.11)$$

Nous présentons ici trois exemples montrant comment l'application de ces techniques a pu améliorer les cadastres d'émissions.

Paulot *et al.* (2014) ont utilisé les moyennes mensuelles de flux de dépôt humide de NH_3 et de NH_4^+ (données issues du réseau EMEP pour l'Europe) afin de corriger différents cadastres d'émissions, en utilisant l'adjoint du modèle global Geoschem. Sur l'Europe, les émissions annuelles de NH_3 du cadastre EMEP, initialement de 3,7 Tg $\text{NH}_3\text{-N}$, ont été réduites d'environ 20 % (Tørseth *et al.*, 2012), ce qui reste probablement dans l'incertitude du CTM utilisé. Cette correction amène également un maximum mensuel d'émissions plus prononcé au mois d'avril dans les émissions optimisées.

Zhu *et al.* (2013) ont assimilé, dans Geoschem également, les colonnes troposphériques de NH_3 observées par l'instrument TES au-dessus des États-Unis (Shephard *et al.*, 2008) pour les mois d'avril, de juillet et d'octobre 2006 à 2009. Cette optimisation les fait augmenter d'environ 60 % par rapport à l'*a priori* donné par un cadastre national. Contrairement à l'Europe, ces émissions sont maximales en juillet.

Enfin, Fortems-Cheiney *et al.* (2016) ont inversé les observations satellitaires IASI (colonnes troposphériques de NH_3 , Van Damme *et al.*, 2014) grâce à la méthode de Palmer *et al.* (2006). La fréquence de passage de IASI est bi-journalière, mais seules les données issues du passage matinal, plus précises, ont été utilisées, ce qui permet un ajustement des émissions de NH_3 chaque jour. Pour la période du pic de pollution particulaire en mars 2014, avec des conditions anticycloniques chaudes et stagnantes, ces auteurs obtiennent des émissions corrigées plus élevées au Benelux, en Allemagne et dans le nord de la France (régions de forte utilisation de fertilisants minéraux) par rapport aux moyennes mensuelles données par EMEP. En revanche, les émissions de NH_3 dues à l'élevage en Bretagne sont corrigées à la baisse pour cette période. Les émissions optimisées de NH_3 pour ces journées ont permis une meilleure reproduction des champs de particules $\text{PM}_{2,5}$ par le modèle Chimere. La figure 5.12 montre les résultats d'un autre exercice de modélisation inverse au nord de Reims (avec les données IASI-v2.1, Van Damme *et al.*, 2017) dans un environnement d'agriculture céréalière intensive. La figure montre les émissions fixes dans le cadastre pour le mois d'avril 2010 (Kuenen *et al.*, 2014) et les corrections apportées pour certains jours, qui vont jusqu'à un facteur quatre.

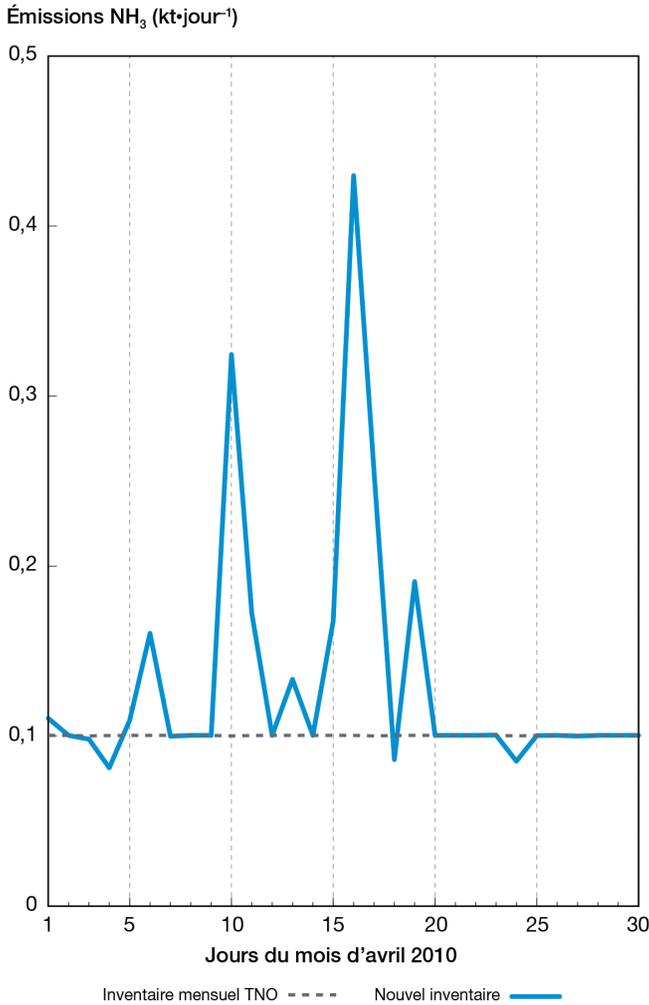


Figure 5.12. Courbe grise en pointillés : émissions mensuelles de NH_3 issues du cadastre d'émissions TNO (Kuenen *et al.*, 2011). Courbe bleue : émissions inversées à partir des colonnes troposphériques de NH_3 observées par l'instrument IASI, quand des observations journalières suffisamment précises étaient disponibles. En absence d'observations, il n'y a pas de correction apportée.

Exemple 2. Utilisation des modèles pour l'estimation des impacts sur la formation des particules

Lors de son transport loin des sources à l'échelle d'un continent, l'ammoniac contribue à la formation de particules fines. La source agricole d'émissions d'ammoniac a été estimée comme la plus importante source individuelle de particules à l'échelle globale (Lelieveld *et al.*, 2015). L'ammonium participe donc significativement à la masse des particules atmosphériques fines, et doit être pris en compte dans les travaux visant à mieux décrire la qualité de l'air.

Une question cruciale, adressée par la modélisation, est la sensibilité de la concentration en nitrate d'ammonium aux réductions des émissions de NH_3 . Cette sensibilité dépend du potentiel de limitation de la formation de ce sel par l'ammoniac NH_3 ou par l'acide nitrique HNO_3 . Le seuil de limitation de formation du sel est exprimé par le positionnement du rapport G par rapport à l'unité (ou à 4 en concentrations molaires) :

$$G = ([\text{NH}_3]_g + [\text{NH}_4^+]_{s,l} - 2 [\text{SO}_4^{2-}]_{s,l}) / ([\text{HNO}_3]_g + [\text{NO}_3^-]_{s,l}) \quad (5.12)$$

Selon les simulations de Bessagnet *et al.* (2014) avec le modèle Chimere, ce rapport se situe autour de 1 pour l'Europe, mais avec une large variabilité, ce qui laisse prévoir des sensibilités contrastées par rapport au NH_3 . Pour une baisse des émissions de NH_3 de 30 % par rapport aux émissions de tous les précurseurs (prévue dans le cadre du Protocole de Göteborg pour 2020), les baisses de PM_{10} simulées par le modèle Chimere au nord de la France sont de presque $1 \mu\text{g m}^{-3}$ ($\sim 4 \%$), par rapport à une réduction de seulement $0,3 \mu\text{g m}^{-3}$ pour la Bretagne (figure 5.13).

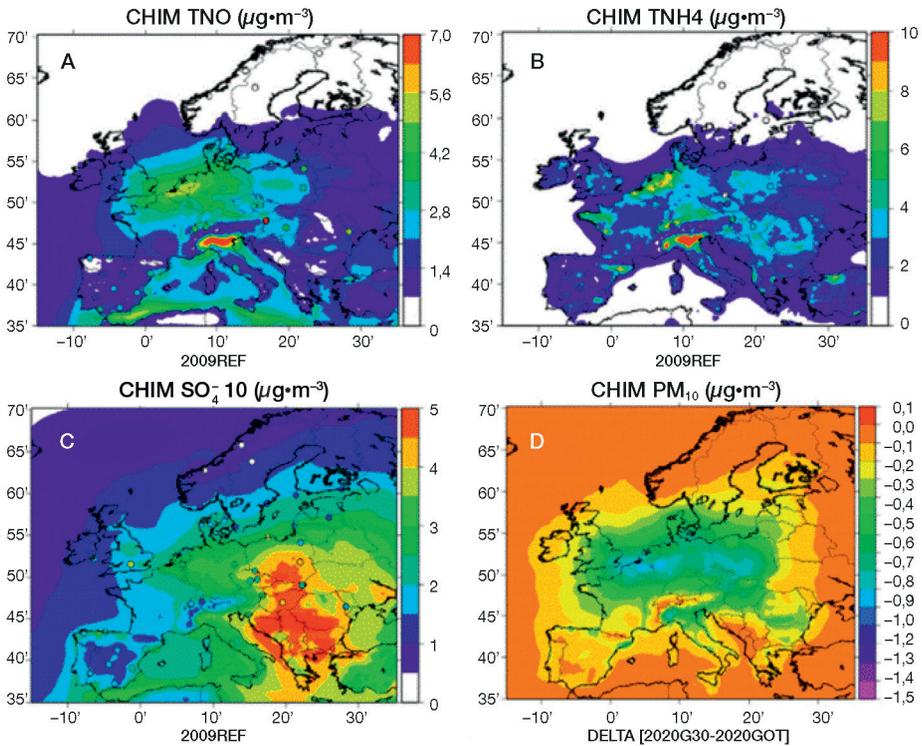


Figure 5.13. Simulation annuelle, pour l'année 2009 et avec le modèle Chimere, du scénario utilisant les émissions prévues pour 2020 par le Protocole de Göteborg (Bessagnet *et al.*, 2014). Cartes (A) des concentrations annuelles de nitrate total $[\text{HNO}_3] + [\text{NO}_3^-]$, (B) des concentrations annuelles d'ammonium total $[\text{NH}_3] + [\text{NH}_4^+]$, (C) des concentrations annuelles de particules sulfatées dénommées SO_4^{2-} , et (D) des réductions des concentrations de PM_{10} pour une réduction supplémentaire des émissions de NH_3 de 30 % en Europe. Les cercles montrent les observations correspondantes disponibles.

Pour le nord de la France, le rapport G est proche de l'unité ; pour la Bretagne, il est très positif, en raison de fortes émissions et concentrations de NH_3 . Sur l'ensemble de l'Europe, Backes *et al.* (2016) simulent une réduction des concentrations de nitrate d'ammonium de 4 à 7 % pour une réduction des émissions européennes de NH_3 de 11 %, envisagée par le Protocole de Göteborg, pour l'année 2020 par rapport à l'année 2000. L'impact simulé sur les $\text{PM}_{2,5}$ est seulement de 2 %, car les sulfates et l'aérosol carboné (%) ne sont pas affectés par le contrôle de l'ammoniac. Pour des réductions plus fortes de NH_3 , l'impact simulé est plus important, car NH_3 devient plus important, et le rapport G plus faible, et la sensibilité au NH_3 plus grande : ainsi, Pozzer *et al.* (2017) simulent une baisse des $\text{PM}_{2,5}$ de 34 % pour une baisse des émissions de NH_3 de 50 % (simulations avec le CTM global EMAC, Jöckel *et al.*, 2006). Toutefois, les travaux de Petetin *et al.* (2016) soulèvent l'existence d'une incertitude significative dans ces estimations en raison de l'incertitude sur la simulation des concentrations des précurseurs NH_3 et HNO_3 : en comparant les sensibilités de la formation de nitrate d'ammonium en Île-de-France, estimées avec le module Isorropia (intégrant les équations 2.6 à 2.8) à partir de concentrations de NH_3 et de HNO_3 simulées et observées, ils constatent que Chimere (figure 5.13) surestime localement la sensibilité à NH_3 d'environ un facteur deux. Ce résultat met en avant la nécessité d'une meilleure connaissance (et simulation) des concentrations de nitrates totaux, et d'ammonium total, pour l'estimation de telles sensibilités.

Pour conclure

Ces dernières années ont vu le développement de méthodes expérimentales et de modélisations de plus en plus pointues. Ainsi, des avancées métrologiques ont été faites dans les domaines de la quantification des concentrations atmosphériques pour presque tous les composés, de la caractérisation de la composition chimique des aérosols et de leur granulométrie, ainsi que de l'identification des composés gazeux. L'amélioration de la sensibilité des analyseurs et de leur temps de réponse a également permis d'accroître la résolution temporelle des mesures. Dans le même temps, la mesure des flux a fait des progrès importants, bien que l'évaluation des incertitudes sur ces mesures reste une question en débat. Parmi les méthodes de mesure de flux surface-atmosphère, la méthode des covariances turbulentes est devenue la référence. Elle peut s'appliquer à tous les composés d'origine agricole ou ayant un impact sur l'agriculture, pourvu que l'on dispose de capteurs à haute résolution temporelle et sensibles (spectrométrie infrarouge et spectrométrie de masse notamment), ce qui rend pour l'instant l'utilisation de cette méthode délicate pour des composés tels que les PPP. Par ailleurs, il existe plusieurs méthodes de mesure des émissions par les bâtiments d'élevage qui, couplées à de nouveaux analyseurs, permettront de mieux évaluer leurs impacts sur le climat et l'environnement. Les approches PMF sont prometteuses pour l'étude des sources liées aux activités agricoles compte tenu des évolutions analytiques et de l'accès à de nouvelles molécules-traceurs. En ce qui concerne la réactivité atmosphérique, la mesure de la réactivité OH constitue un apport important dans la caractérisation de l'impact sur la pollution photochimique des sources très peu documentées que sont les COV d'origine agricole.

Des développements sont toutefois requis, sur la base de nouvelles méthodes en cours de mise au point. Ainsi, les méthodes de télédétection qui s'appuient sur de nouveaux satellites dont la résolution atteint le décimètre, et les techniques de modélisation inverse, constituent un pan de connaissance en plein essor qui permettra de mieux caractériser les sources agricoles, notamment de NH_3 , de N_2O , de COV ou d'aérosols. De même, les perfectionnements des techniques de spectrométrie infrarouge et de masse ouvrent la voie à une généralisation des mesures de composés gazeux à l'état de trace. En parallèle, le développement de capteurs miniaturisés, à bas coût et connectés, donne accès à des cartographies des concentrations à haute résolution spatiale et temporelle en milieu rural et périurbain, ce qui permettra de mieux caractériser les sources de pollutions. Les capteurs biochimiques constitueront des indicateurs pertinents de l'impact sanitaire des polluants atmosphériques. Enfin, de nouveaux capteurs devraient voir le jour qui mesureront les particules biotiques tout en identifiant leur type. Pour l'étude du niveau de contamination de l'atmosphère par les produits phytosanitaires, l'échantillonnage passif constitue une

nouvelle méthode alternative intéressante. Enfin, la caractérisation de la réactivité de l'ensemble des composés émis dans l'atmosphère est critique dans la perspective de l'amélioration de la qualité de l'air et de la prédiction du climat, considérant l'importance des surfaces agricoles. Or peu de jeux de données sont disponibles. Les chambres de simulation atmosphérique représentent une voie encore peu explorée mais prometteuse pour appréhender l'impact des composés émis par l'activité agricole sur la qualité de l'air (pesticides, NH_3 , COV), en particulier si on peut y insérer les compartiments biologiques (sol et plante).

Pour ce qui est des outils de description et de prédiction numériques, les divers travaux de modélisation réalisés ces dernières années et décrits dans cet ouvrage ont conduit à des progrès significatifs dans la compréhension et la prédiction des relations entre l'agriculture et la qualité de l'air. Ainsi, des avancées majeures ont été réalisées en ce qui concerne les échanges de NH_3 , d' O_3 et de NO_x à l'échelle à la fois des processus et de la parcelle. Diverses études ont aussi contribué à prédire les échanges de ces composés aux échelles supérieures (bassin versant, région), prédictions qui ont été ou peuvent potentiellement être couplées à des modèles de chimie et de transport atmosphériques. Cependant, en ce qui concerne les COVb et les PPP, le grand nombre de composés impliqués et les verrous de connaissances actuels sur le déterminisme de certains processus restent un défi majeur pour la modélisation. Par ailleurs, dans les modèles d'échanges développés, quel que soit le composé considéré, la prise en compte de l'effet des pratiques agricoles sur les processus est intégrée autant que faire se peut. Toutefois, ces pratiques sont en évolution, en lien avec différentes contraintes présentées dans la partie I de l'ouvrage. Il est donc nécessaire d'associer à l'amélioration de la prise en compte de l'effet des pratiques actuelles sur le devenir des composés dans l'environnement, une vigilance quant à la capacité des outils développés à les décrire.

Il reste donc important de poursuivre l'intégration, à travers la modélisation, des connaissances acquises à l'échelle de la plante et du profil de sol dans des modèles plus globaux. C'est une démarche essentielle afin d'aboutir à une prédiction fiable de la qualité de l'air ou à des analyses de scénarios d'évolution. En effet, une meilleure interaction entre les modèles fonctionnant à l'échelle de la parcelle ou du paysage et les modèles régionaux permettrait non seulement de mieux quantifier les émissions de polluants d'origine agricole, mais aussi de mieux concevoir les pratiques agricoles, et de proposer des évolutions dans les politiques d'aménagement du territoire et les textes réglementaires.

Plusieurs verrous sont toutefois identifiés. Ainsi, il est toujours nécessaire d'acquérir des jeux de données afin de paramétrer et de tester les modèles. Il s'agit notamment :

- de données de flux détaillées couplées à des mesures de micrométéorologie et d'hydrologie de surface qui amélioreront notre compréhension et notre représentation par les modèles des effets de l'humidité du sol sur les échanges stomatiques, des échanges turbulents à l'intérieur et au-dessus du couvert, des interactions au niveau de la surface entre les espèces qui se déposent et qui sont émises et leurs liens avec des facteurs environnementaux ;

- de données multicomposés encore rares actuellement. Cela peut nécessiter la mise au point de nouveaux instruments et méthodes et le déploiement de vastes expériences en collaborations nationales et internationales, comme mentionné plus haut ;

– de données sur la variabilité spatiale et temporelle des données d'entrée, par exemple la dynamique d'utilisation et de couverture du sol, la teneur en azote et en eau de la surface du sol, l'état phénologique de l'écosystème et les pratiques de gestion.

La prédiction des échanges requiert une description unifiée des processus d'émissions, de dispersion, de transport et de dépôts. Une des solutions repose sur le couplage de modèles d'échanges de surface « multipolluants » et de modèles de chimie-transport. La réalisation de ce couplage nécessite de construire un cadre facilitant la mise à jour ou le remplacement des descriptions choisies au fil de l'acquisition de nouvelles connaissances sur les échanges : la prise en compte de plusieurs espèces chimiques et l'intégration des divers compartiments de la surface permettront de relier les processus de formation des aérosols, la chimie de surface ou au sein du couvert et à la surface des feuilles, ainsi que les rétroactions en jeu. En outre, ce cadre pourra mettre en évidence d'éventuelles divergences entre les choix réalisés pour différentes paramétrisations. Il pourra également mieux prendre en compte les rétroactions entre fonctionnement du couvert, émissions de polluants et concentrations atmosphériques.

Le développement de nouveaux outils méthodologiques tels que l'assimilation de données permettra de prédire de façon plus précise les émissions d'origine agricole ainsi que leur devenir dans l'atmosphère (et *in fine* l'exposition environnementale et humaine). La méta-modélisation, en fournissant des outils à la fois performants, peu exigeants en temps de calcul et représentatifs des processus car développés à partir de modèles mécanistes prenant en compte les facteurs impliqués, permettra de mieux prendre en compte la variabilité spatio-temporelle des émissions dans des modèles globaux par exemple.

Partie III

Du diagnostic à l'action

Chapitre 6

Diagnostiquer : inventorier, surveiller et évaluer

Sophie Générmont, Benoît Gabrielle,
Étienne Mathias, Carole Bedos, Christian Bockstaller,
Jean-François Castell, Vincent Colomb,
Aurélien Gouzy

Les chapitres précédents ont montré, d'une part, combien l'amélioration de la qualité de l'air constituait un enjeu majeur pour la santé publique et l'environnement, et, d'autre part, combien elle se heurtait à la complexité des processus mis en jeu et à la variabilité des niveaux d'émissions et de dépôts. Avant de décrire comment les politiques publiques s'emparent de cet enjeu (chapitre 7), ce chapitre présente ici les méthodologies permettant l'évaluation de la contribution de l'activité agricole aux niveaux de pollution atteints ainsi qu'aux impacts engendrés. Non seulement cette évaluation est un préalable indispensable à la préconisation de mise en œuvre de pratiques de réduction, mais l'intérêt de leur adoption sur le long terme ne peut se justifier que grâce à l'évaluation en temps réel de leur efficacité.

La France s'est engagée dans plusieurs accords internationaux visant à quantifier les émissions de polluants atmosphériques, à imposer des réductions des émissions ou à fixer des plafonds d'émission. Les inventaires d'émissions permettent de rendre compte du respect ou non de ces engagements, et d'estimer les progrès accomplis. Ils ont également un rôle d'aide à la décision, pour identifier les activités responsables de fortes émissions et permettre aux décideurs et aux politiques publiques de mettre en place des mesures adaptées pour limiter ces émissions, en ciblant les sources les plus contributrices. En parallèle, l'évaluation de l'effet des émissions et

de l'efficacité des mesures de réduction sur la qualité de l'air d'une part, et de l'impact sur les écosystèmes terrestres d'autre part, nécessite la mise en place de réseaux de suivi de la pollution de fond de l'air ainsi que des retombées sous forme de précipitations, de gaz et de particules en milieu rural et forestier. En outre, l'utilisation d'indicateurs d'émission, de niveau de contamination de l'air et d'impacts environnementaux s'est aussi largement répandue, depuis les années 1990, comme moyen d'appui aux décideurs à différents niveaux, de gestion des risques et d'évaluation de politiques publiques. Ce chapitre s'attache à présenter ces outils et leurs évolutions qui se sont faites en fort lien avec l'évolution des connaissances des processus, de leur modélisation et des capacités de mesures de flux et de concentration présentées dans les chapitres précédents.

► Inventaires

Signée en 1979, la Convention de Genève sur la pollution atmosphérique transfrontière à longue distance (CLRTAP) a déclenché l'organisation et la structuration des données relatives aux rejets de polluants sous la forme d'inventaires d'émissions. Le relais a été pris par un programme de la Commission européenne, Corinair, permettant ainsi de construire le premier inventaire d'émissions. Lorsque les émissions sont réparties géographiquement, on parle généralement de cadastre des émissions. Quatre composantes structurent les inventaires d'émissions : la substance, l'échelle d'espace et l'échelle de temps adaptées à la substance et enfin l'émetteur. Ces inventaires permettent de diagnostiquer à différentes échelles spatiales les responsabilités des différents secteurs émetteurs de polluants et d'en suivre les évolutions. Ce sont aussi les données de base pour réaliser des évaluations de qualité de l'air et pour estimer les impacts de la pollution sur la santé et les écosystèmes.

Les méthodes classiques d'inventaire

Les inventaires tendent à répondre à cinq critères de qualité : la transparence, la précision, l'exhaustivité, la cohérence et la comparabilité. Ils sont réalisés la plupart du temps grâce à des modèles de calcul simples intégrant des indicateurs d'activité robustes. Pour les polluants atmosphériques, ces calculs sont fortement orientés par les lignes directrices internationales, en particulier le guide EMEP/EEA⁵⁰. Les lignes directrices du GIEC⁵¹ établies pour les gaz à effet de serre sont également utilisées, car il existe des liens entre l'ensemble des émissions atmosphériques.

50. EMEP/EEA : European Monitoring and Evaluation Programme/European Environment Agency, 2016. *Air Pollutant Emission Inventory Guidebook*, <https://www.eea.europa.eu/themes/air/emep-eea-air-pollutant-emission-inventory-guidebook/emep>.

51. GIEC : Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat (Intergovernmental Panel on Climate Change, IPCC) ; *IPCC Guidelines for National Greenhouse Gas Inventories*, 2006, <https://www.ipcc-nggip.iges.or.jp/public/2006gl/index.html>.

L'inventaire, un modèle simple le plus souvent

Les différentes modalités d'un calcul d'inventaire peuvent être abordées à partir de l'exemple des émissions annuelles d'ammoniac (NH_3) des bovins en France. De manière simple, il est possible de les calculer, en multipliant le nombre d'animaux par un facteur d'émission par animal par an, selon l'équation type d'une méthode d'inventaire (équation 6.1) :

$$E = A \times FE \quad (6.1)$$

E ($\text{kg NH}_3 \cdot \text{an}^{-1}$) désignant les émissions de NH_3 des bovins, A (têtes) le nombre d'animaux et FE ($\text{kg NH}_3 \cdot \text{tête}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$) le facteur d'émission.

Les inventaires d'émissions reposent sur le fait que de nombreux descripteurs sont disponibles au niveau d'un territoire, comme c'est le cas du nombre de bovins grâce aux statistiques agricoles.

Les facteurs d'émission : le principal facteur d'incertitude

Pour établir un facteur d'émission par animal, on peut imaginer enfermer une vache dans un compartiment équipé d'instruments de mesure de NH_3 , mais l'entreprise n'est pas aisée. En pratique, les principaux postes d'émission sont identifiés, mesurés individuellement (chapitre 4) puis combinés pour parvenir à un facteur d'émission par animal. La précision d'un facteur d'émission dépend fortement de la variabilité du phénomène mesuré. Or les processus impliqués en agriculture observent une grande variabilité en lien avec la variabilité des conditions de la pratique agricole (chapitre 2). Appliqués avec une résolution fine comme une petite région, un système d'élevage, une période de l'année, les facteurs d'émission sont potentiellement inappropriés. Cependant, de nombreux facteurs d'émission sont désormais disponibles dans les lignes directrices d'établissement des inventaires et permettent à la plupart des pays de faire des inventaires de qualité sans réaliser la moindre mesure expérimentale d'émission. Il est aussi possible d'assortir une incertitude à l'émission, calculée par combinaison des incertitudes des deux paramètres « données d'activité » et « facteur d'émission » : l'incertitude sur l'activité, de l'ordre de 5 à 10 %, est assez faible comparativement à l'incertitude sur les facteurs d'émission. En conséquence, l'incertitude résultante sur l'émission provient essentiellement de l'incertitude sur le facteur d'émission (tableaux 6.1 à 6.5).

Au-delà des facteurs d'émission : les niveaux de méthode

Les lignes directrices proposent des facteurs d'émission par défaut pour la grande majorité des sources d'émission, mais également des méthodes pour aller plus loin. Trois niveaux de méthodes sont presque systématiquement présentés. La méthode de niveau 1 correspond à la version la plus simple disponible, l'équation 6.1 étant un exemple type d'une méthode de niveau 1.

Les méthodes de niveau 2 visent à estimer des paramètres plus fortement corrélés à l'émission que ne l'est l'activité de base. Ces paramètres ne font en général pas partie des statistiques classiques. Pour les émissions de NH_3 des élevages,

le guide EMEP/EEA propose d'utiliser l'azote ammoniacal disponible comme donnée d'activité. Pour les émissions de méthane de la fermentation entérique, c'est l'énergie brute ingérée qui est proposée par le GIEC. La plus-value de ces méthodes de niveau 2 réside dans l'utilisation de facteurs d'émission supposés plus détaillés que les facteurs d'émission par tête. Pour les émissions de NH_3 des bovins, le guide EMEP/EEA propose une méthodologie de niveau 2 basée sur un suivi de l'azote ammoniacal et des facteurs d'émission par poste d'émission :

$$E = A \times TAN \times (FE_1 + (1 - P_1 + G_1) \times FE_2 + (1 - P_1 + G_1 - P_2 + G_2) \times FE_3) \quad (6.2)$$

E ($\text{kg NH}_3 \cdot \text{an}^{-1}$) désignant les émissions de NH_3 des animaux, A (têtes) le nombre d'animaux, TAN ($\text{kg N} \cdot \text{an}^{-1}$) le facteur d'excrétion ammoniacale, i le poste d'émission (1 = bâtiment, 2 = stockage, 3 = épandage), FE_i ($\text{kg NH}_3 \cdot \text{kg}^{-1} \text{N}$) le FE au poste i , P_i (-) les pertes d'azote ammoniacal au poste i , et G_i (-) les gains en azote ammoniacal au poste i .

Les méthodes de niveau 3 sont le plus souvent des modèles plutôt empiriques, non décrits dans les lignes directrices. Ces derniers doivent *a minima* fournir des résultats avec une incertitude moindre que les méthodes de niveau 2 proposées par les lignes directrices internationales pour être applicables dans un inventaire national. L'amélioration nécessaire des descripteurs pour la caractérisation de l'activité en accord avec la mise en œuvre de modèles s'accompagne généralement d'une réduction de l'incertitude. Par exemple, parmi les tout premiers modèles empiriques mobilisés pour les inventaires nationaux, on peut citer le modèle de Menzi *et al.* (1998) pour les épandages de lisier porcin en Suisse, ou le modèle de Misselbrook *et al.* (2004) pour les engrais de synthèse au Royaume-Uni (modèle d'inventaire Narses : National Ammonia Reduction Strategy Evaluation System).

La résolution spatiale

Les inventaires requis pour la Convention-Cadre sur la pollution transfrontière concernent tout d'abord des résultats à l'échelle nationale avec une résolution annuelle. Mais il existe également une exigence de rapportage selon une résolution spatiale plus fine : l'inventaire EMEP spatialisé. Cet inventaire est réalisé tous les cinq ans et présente les résultats d'émissions selon une grille avec des mailles de $0,1^\circ$ par $0,1^\circ$ (soit environ $10 \text{ km} \times 10 \text{ km}$ en France). Il est élaboré selon différents protocoles de spatialisation d'un secteur d'activité à l'autre. En agriculture, pour NH_3 par exemple, les émissions sont calculées au niveau régional (22 anciennes régions), sur la base des mêmes méthodes que pour l'inventaire national décrit précédemment, c'est-à-dire de niveau 2. Elles sont ensuite réparties au sein des régions grâce à des clés de répartition relatives aux surfaces et aux cheptels à un niveau cantonal (recensement général agricole). Enfin, les résultats sont projetés sur la carte d'occupation des terres Corine Land Cover⁵² selon la maille de restitution demandée par l'EMEP (figure 6.1).

52. <https://land.copernicus.eu/pan-european/corine-land-cover>.

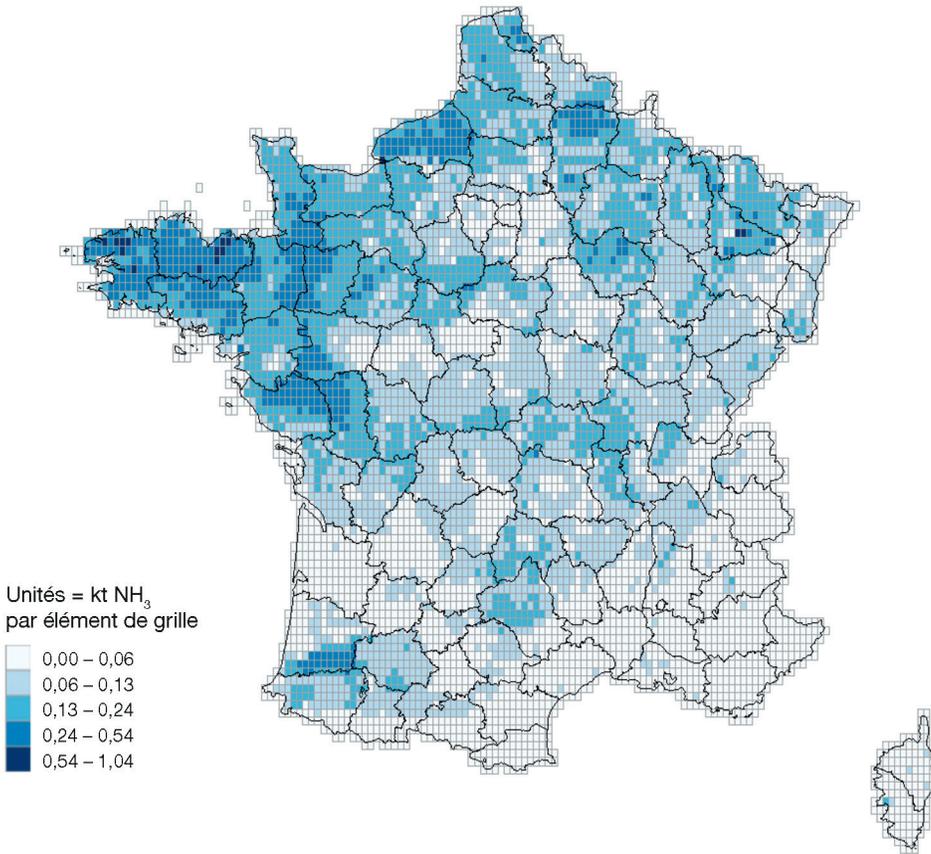


Figure 6.1. Cartographie des émissions de NH₃ dans le cadre de l’inventaire EMEP (source : Citepa, décembre 2017, inventaire EMEP ; résultats relatifs à l’année 2015).

Comptabilisation des contributions du secteur agriculture-sylviculture

Le Centre interprofessionnel technique d’études de la pollution atmosphérique (Citepa) réalise l’inventaire national annuel des émissions de gaz à effet de serre et de polluants atmosphériques en France en tant qu’opérateur d’État pour le ministère en charge de l’Environnement.

Le premier composé visé en agriculture est l’ammoniac (NH₃). Les principaux postes d’émission sont les cultures suite aux épandages d’engrais (minéraux ou organiques), les bâtiments d’élevage et les zones de stockage des déjections (tableau 6.1). L’ammoniac est estimé dans les inventaires à partir de l’azote total ou de l’azote ammoniacal disponible selon les cas. Pour les cultures, la quantité d’azote disponible susceptible de se volatiliser en NH₃ est estimée à partir des quantités d’engrais disponibles dans la plupart des statistiques nationales. La teneur en azote des engrais est connue des distributeurs. Pour l’élevage, l’azote ammoniacal disponible

n'est pas immédiatement accessible : les émissions sont donc estimées à partir des cheptels combinés à des facteurs d'excrétion. Les émissions de NH_3 sont ensuite estimées en suivant le cycle de l'azote, en intégrant le fait que l'émission de NH_3 génère une perte d'azote et donc diminue le potentiel d'émission des postes suivants de la chaîne d'émission.

Tableau 6.1. Activités, émissions et incertitudes pour les émissions de NH_3 de l'agriculture en France, en 2017 (source : Citepa, 2019a, inventaire Secten).

Catégorie	Activité	Unité	Facteur d'émission induit ($\text{kg} \cdot \text{unité}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$)	Émissions ($\text{t NH}_3 \cdot \text{an}^{-1}$)	Incertitude (en % des émissions)	
Élevage	Bovins	18 808 470	Tête	7,6	143 213	50
	Porcins	12 831 170	Tête	3,0	38 901	30
	Volailles	301 861 000	Tête	0,13	38 387	30
	Autres émissions de l'élevage	n.a.	n.a.	n.a.	13 003	30
Culture	Engrais minéraux	2 238 884	t N	74	165 720	20
	Engrais organiques	598 834	t N	200	119 519	50
	Pâturage	895 458	t N	54	48 430	30
	Brûlage de résidus agricoles	953 879	t de résidus brûlés	1,1	1 069	100
	Autres émissions des cultures	n.a.	n.a.	n.a.	0	n.e.
Engins, moteurs et chaudières	n.a.	n.a.	n.a.	20	n.e.	
Total agriculture	n.a.	n.a.	n.a.	568 263	18	

Avec n.e. : non estimé ; n.a. : non applicable ; t N : tonnes d'azote.

Pour les oxydes d'azote (généralement notés NO_x et incluant donc NO et NO_2 , mais en réalité incluant tous les autres composés azotés oxydés réactifs, et donc apparentés aux NO_y), seules les émissions *via* le brûlage des résidus agricoles et les engins agricoles sont comptabilisées pour le secteur agricole : ces dernières sont estimées sur la base des consommations de carburant en intégrant l'évolution du parc de tracteurs et la réglementation sur les moteurs. Au-delà de la combustion, l'agriculture participe aux émissions de NO_x du fait de la volatilité de l'azote sous forme de monoxyde d'azote (NO) et, dans une moindre mesure, d'acide nitreux (HONO), qui s'exprime à différents niveaux dans les exploitations agricoles (fertilisation, bâtiments d'élevage, zones de stockage des déjections animales) (tableau 6.2). En revanche, pour des raisons historiques (elles ne sont apparues dans les lignes directrices que récemment), ces émissions sont actuellement exclues des objectifs de réduction d'émission, et ne sont donc pas comptabilisées dans les inventaires officiels.

Tableau 6.2. Activités, émissions et incertitudes pour les émissions de NO_x de l'agriculture en France, en 2017 (source : Citepa, 2019a, inventaire Secten).

Catégorie	Activité	Unité	Facteur d'émission induit (kg · unité ⁻¹ · an ⁻¹)	Émissions NO _x (t · NO ₂ · an ⁻¹)	Incertitude (en % des émissions)	
Élevage	Bovins	18 808 470	Tête	0,32	6 093	n.e.
	Porcins	12 831 170	Tête	0,011	139	n.e.
	Volailles	301 861 000	Tête	0,0079	2 376	n.e.
	Autres émissions de l'élevage	n.a.	n.a.	n.a.	470	n.e.
Culture	Engrais minéraux	2 238 884	t N	19	42 893	n.e.
	Engrais organiques	598 834	t N	13	7 572	n.e.
	Pâturage	895 458	t N	13	11 769	n.e.
	Brûlage de résidus agricoles*	953 879	t de résidus brûlés	3,7	3 575	60
	Autres émissions des cultures	n.a.	n.a.	n.a.	0	n.e.
Engins, moteurs et chaudières*	131 679	TJ	351	46 261	75	
Total agriculture	n.a.	n.a.	n.a.	121 148	n.e.	
dont inclus dans total France*	n.a.	n.a.	n.a.	49 837	70	

Avec n.e. : non estimé ; n.a. : non applicable ; t N : tonnes d'azote ; TJ : térajoules ; * : relativement aux périmètres de la CEE — NU/NEC —, les émissions répertoriées hors total national, car exclues des objectifs de réduction d'émission, sont les suivantes : les émissions maritimes internationales, les émissions de la phase croisière ($\geq 1\,000$ m) des trafics aériens domestique et international, ainsi que les émissions des sources biotiques de l'agriculture et des forêts et les émissions des sources non anthropiques. Ainsi, dans le total national officiel, seuls les sous-secteurs « Brûlage de résidus agricoles » et « Engins, moteurs et chaudières » sont comptabilisés officiellement pour le secteur agriculture-sylviculture.

Les particules primaires (PM) d'origine agricole proviennent principalement des moteurs des engins agricoles (dont la contribution est rapportée dans les inventaires au sein du secteur énergie), des opérations culturales (travail du sol, moisson, fertilisation, traitements) et des bâtiments d'élevage (tableau 6.3). Les émissions de particules des engins agricoles sont estimées sur la base des consommations de carburant en intégrant l'évolution du parc de tracteurs et la réglementation sur les moteurs qui vise spécifiquement le niveau d'émission en particules. Les émissions de particules liées aux opérations culturales et aux bâtiments d'élevage sont estimées avec une forte incertitude dans les inventaires du fait de la variabilité importante des situations, et sans doute du manque de références scientifiques associées (Faburé *et al.*, 2010). Les inventaires étant supposés ne couvrir que les émissions anthropiques, seules les émissions liées aux opérations culturales sont intégrées : ainsi, ne sont pas intégrées certaines émissions au champ qui ne sont pas associées

à une opération culturale comme les émissions liées à l'érosion éolienne ou les émissions de pollen.

Tableau 6.3. Activités, émissions et incertitudes pour les émissions de PM₁₀ de l'agriculture en France, en 2017 (source : Citepa, 2019a, inventaire Secten).

Catégorie	Activité	Unité	Facteur d'émission induit (kg · unité ⁻¹ · an ⁻¹)	Émissions PM ₁₀ (t · an ⁻¹)	Incertitude (en % des émissions)	
Élevage	Bovins	18 808 470	Tête	0,2	2 878	200
	Porcins	12 831 170	Tête	0,25	3 253	100
	Volailles	301 861 000	Tête	0,044	13 256	100
	Autres émissions de l'élevage	n.a.	n.a.	n.a.	228	200
	Engrais minéraux	n.a.	n.a.	n.a.	0	n.e.
	Engrais organiques	n.a.	n.a.	n.a.	0	n.e.
	Pâture	n.a.	n.a.	n.a.	0	n.e.
Culture	Brûlage de résidus agricoles	953 879	t de résidus brûlés	5,4	5 126	50
	Autres émissions des cultures	n.a.	n.a.	n.a.	26 410	400
	Engins, moteurs et chaudières	131 679	TJ	35	4 560	100
Total agriculture	n.a.	n.a.	n.a.	55 711	192	

Avec n.e. : non estimé ; n.a. : non applicable ; TJ : térajoules.

Le méthane (CH₄), quant à lui, est essentiellement émis par les animaux d'élevage, notamment les ruminants en raison de la fermentation entérique. Les déjections animales et les surfaces de rizières complètent les émissions de méthane de l'agriculture (tableau 6.4).

Tableau 6.4. Activités, émissions et incertitudes pour les émissions de CH₄ de l'agriculture en France, en 2017 (source : Citepa, 2019b, inventaire Secten).

Catégorie	Activité	Unité	Facteur d'émission induit (kg · unité ⁻¹ · an ⁻¹)	Émissions (t CH ₄ · an ⁻¹)	Incertitude (en % des émissions)	
Élevage	Bovins	18 808 470	Tête	70	1 324 567	20
	Porcins	12 831 170	Tête	4,6	59 486	50
	Volailles	301 861 000	Tête	0,025	7 464	50
	Autres émissions de l'élevage	n.a.	n.a.	n.a.	121 130	20
Culture	Engrais minéraux	n.a.	n.a.	n.a.	0	n.e.
	Engrais organiques	n.a.	n.a.	n.a.	0	n.e.
	Pâturage	n.a.	n.a.	n.a.	13 004	30
	Brûlage de résidus agricoles	953 879	t de résidus brûlés	2,0	1 889	85
	Autres émissions des cultures	n.a.	n.a.	n.a.	2 908	100
Engins, moteurs et chaudières	131 679	TJ	5,1	669	100	
Total agriculture	n.a.	n.a.	n.a.	1 531 118	17	

Avec n.e. : non estimé ; n.a. : non applicable ; TJ : térajoules.

Les composés organiques volatils (COVb) (hors méthane) de l'élevage sont estimés dans l'inventaire grâce à des facteurs d'émission par animal ; ceux des cultures sont estimés à partir des surfaces cultivées associées à des facteurs d'émission (tableau 6.5). Dans l'inventaire français, ces émissions sont estimées à partir d'un modèle relativement complexe intégrant les essences végétales et les conditions météorologiques de l'année. En complément des émissions estimées sur les terres agricoles, les forêts contribuent à une part très importante des émissions de COVb dans l'atmosphère : 1 266 996 tonnes de COVb en 2017 (exclues du total national). Ces composés sont rapportés dans les inventaires, mais les objectifs nationaux de réduction n'incluent pas ces sources d'émission pour l'agriculture.

Tableau 6.5. Activités, émissions et incertitudes pour les émissions de composés organiques volatils non méthaniques (COVNM) de l'agriculture en France, en 2017 (source : Citepa, 2019a, inventaire Secten).

Catégorie	Activité	Unité	Facteur d'émission induit (kg unité ⁻¹ · an ⁻¹)	Émissions COVNM (t · an ⁻¹)	Incertitude (en % des émissions)	
Élevage	Bovins	18 808 470	Tête	8,2	153 860	n.e.
	Porcins	12 831 170	Tête	0,29	3 741	n.e.
	Volailles	301 861 000	Tête	0,109	33 033	n.e.
	Autres émissions de l'élevage	n.a.	n.a.	n.a.	1 890	n.e.
Culture	Engrais minéraux	n.a.	n.a.	n.a.	0	n.e.
	Engrais organiques	n.a.	n.a.	n.a.	0	n.e.
	Pâture	n.a.	n.a.	n.a.	0	n.e.
	Brûlage de résidus agricoles*	953 879	t de résidus brûlés	1,8	1 755	50
	Autres émissions des cultures	n.a.	n.a.	n.a.	151 337	n.e.
Engins, moteurs et chaudières*	131 679	TJ	76	10 023	90	
Total agriculture	n.a.	n.a.	n.a.	355 639	n.e.	
dont inclus dans total France*	n.a.	n.a.	n.a.	11 778	77	

Avec n.e. : non estimé ; n.a. : non applicable ; TJ : térajoules ; * : relativement aux périmètres de la CEE — NU/NEC —, les émissions répertoriées hors total national, car exclues des objectifs de réduction d'émission, sont les suivantes : les émissions maritimes internationales, les émissions de la phase croisière ($\geq 1\ 000$ m) des trafics aériens domestique et international, ainsi que les émissions des sources biotiques de l'agriculture et des forêts et les émissions des sources non anthropiques. Ainsi, dans le total national officiel, seuls les sous-secteurs « Brûlage de résidus agricoles » et « Engins, moteurs et chaudières » sont comptabilisés officiellement pour le secteur agriculture-sylviculture.

Améliorer les approches d'inventaire

Les enjeux dépendent de l'état des connaissances pour chacun des composés, de la disponibilité des informations et des objectifs poursuivis. Ceux-ci couvrent entre autres la quantification des sources d'émission, l'évaluation de l'efficacité de la mise en œuvre des recommandations émanant des politiques publiques, et le suivi des tendances à long terme.

Intégrer de nouveaux composés selon des méthodes de niveau 1 ou 2

En particulier, les inventaires français n'estiment pas à l'heure actuelle les émissions des matières actives des produits phytopharmaceutiques (PPP) (Guiral *et al.*, 2016),

en raison de l'absence d'obligation de rapportage dans le cadre d'un engagement international, mais également en lien avec des difficultés spécifiques à ces produits. L'EPA⁵³ et l'EMEP/EEA ont proposé dans les années 1990 des facteurs d'émission des matières actives des PPP vers l'atmosphère (EEA, 1999a ; EPA, 1994), plutôt focalisés sur les émissions par volatilisation, la dérive aérienne ne semblant pas intégrée (avec toutefois une incertitude quant à sa prise en compte dans les facteurs d'émission de l'EMEP). Outre le fait que la méthodologie d'élaboration de ces facteurs d'émission n'est pas toujours clairement exposée, ces derniers présentent un niveau de validation faible. Par ailleurs, ils ont été élaborés d'après des données portant sur un certain nombre de composés à présent interdits, amenant Guiral *et al.* (2016) à conclure à un faible potentiel d'utilisation dans le contexte des pratiques actuelles en France.

Cette étude a toutefois pu identifier un ensemble d'outils (modèles ou jeux de données) mobilisables pour calculer des facteurs d'émission qui permettraient de lever au moins en partie les verrous actuels de connaissances, malgré des sources d'incertitudes résiduelles (caractéristiques physico-chimiques, effet de la formulation sur le comportement des matières actives...). Un des enjeux est de traiter les émissions par dérive aérienne et les émissions par volatilisation de manière distincte.

En ce qui concerne les activités, la récente Banque nationale des ventes pour les distributeurs⁵⁴ est une base de données qui pourrait être mobilisée pour le calcul des inventaires.

Évoluer vers des méthodes de niveau 3

Les facteurs d'émission utilisés pour les inventaires de niveau 1 ou de niveau 2 des lignes directrices EMEP/EEA et GIEC sont généralement exprimés en masse de composé émis par tête et par place pour le bétail ou en pourcents d'un intrant appliqué (méthodes dites de niveau 1 des inventaires). Ils sont dérivés de méta-analyses intégrant une multitude de conditions agronomiques et pédoclimatiques, reflétant la variabilité rencontrée dans la pratique agricole. Leur utilisation, bien qu'elle soit efficace, est moins adaptée que dans un contexte industriel par exemple, en particulier dans le cas des émissions au champ. Néanmoins, elle reste la norme, car les méthodes alternatives plus analytiques en sont encore souvent au stade de la recherche. Cependant, les méthodes d'inventaire de niveau 3 préconisent l'utilisation de modèles empiriques (chapitre 5) prenant en compte plus de facteurs déterminants des émissions, et leur utilisation tend à se développer.

C'est le cas pour les émissions de méthane par l'élevage : l'Inra a mis récemment au point une méthode plus spécifique des conditions agricoles françaises pour l'estimation des émissions comparativement à la méthode de type 3 proposée par le GIEC (Eugène *et al.*, 2019), sur la base de relations empiriques reflétant une meilleure compréhension des processus à l'origine des émissions. Développée initialement pour les inventaires français, cette méthode s'est révélée adaptée ou adaptable pour les autres pays. Une plus grande homogénéité de calcul est proposée pour les deux postes émetteurs de CH₄ grâce à l'utilisation d'un paramètre pivot : la matière

53. EPA : United States Environmental Protection Agency.

54. BNV-d : <https://bnvd.ineris.fr>.

organique digestible ingérée pour le poste fermentation entérique, et la matière organique non digestible ingérée pour les émissions liées à la gestion des effluents d'élevage. Il est ainsi possible de faire le lien entre la ration alimentaire et les émissions de méthane des effluents. En outre, cette méthode permet de tenir compte des évolutions dans le temps du système de production (performance des animaux, pratiques d'alimentation, saisonnalité des pratiques en lien avec le pâturage, gestion du fumier) de manière compatible avec les recommandations du GIEC.

Certaines approches vont encore plus loin : pour prendre en compte explicitement l'effet de plus de facteurs comme le milieu physique et les pratiques agronomiques, elles utilisent des modèles biophysiques, décrivant explicitement le fonctionnement des systèmes sol-culture-atmosphère (Gabrielle et Gagnaire, 2008). Ces approches nécessitent la prise en compte d'un plus grand nombre d'informations pour expliciter les données d'activité, en particulier incluant la variabilité liée aux facteurs environnementaux.

Intégrer de manière réaliste la variabilité spatiale et temporelle des émissions

Outre la spatialisation des émissions déjà abordée ci-dessus, la temporalisation des émissions est aussi un enjeu majeur de la compréhension du devenir des polluants et de leurs impacts, ainsi que de la prévision de la qualité de l'air et de l'évaluation de l'impact d'un scénario. C'est aussi souvent un des prérequis pour atteindre un niveau 3 pour les inventaires nationaux. Deux méthodologies cohabitent pour restituer conjointement une représentation spatialisée et temporalisée des émissions, c'est-à-dire pour construire des cadastres d'émissions.

La première, dite « de type *top-down* », couramment utilisée, consiste à considérer la donnée statistique générale (par exemple un facteur d'émission associé à une donnée d'activité annuelle) pour calculer les émissions (nationales ici), l'estimation des émissions à des échelles plus fines faisant ensuite intervenir une désagrégation spatiale et/ou temporelle des émissions annuelles ou nationales. La désagrégation temporelle repose sur des clés de répartition des émissions temporelles, mensuelles (explicitant la proportion des émissions totales annuelles attribuée à un mois donné), journalières (proportion au regard de la semaine) ou horaires (proportion au regard de la journée entière) (chapitre 4). Ces profils prennent en compte des paramètres influençant l'émission, comme dans certains cas la température de l'air, mais ne représentent que des profils moyens, et ne peuvent représenter convenablement les émissions « instantanées » lorsque les paramètres dont dépendent les émissions s'écartent fortement de leur valeur moyenne. Ce type d'approche ne permet pas par exemple de prévoir de manière toujours efficace des épisodes de pollution dans des conditions particulières d'années atypiques (Hamaoui-Laguel *et al.*, 2014). L'avantage de cette méthode consiste en ses raccourcis méthodologiques et techniques, qui permettent de faire abstraction de la difficulté d'accès (voire l'inaccessibilité) à certains types de données. C'est elle qui a été adoptée dans l'Inventaire national spatialisé⁵⁵ en France pour les émissions de COVb, de CH₄, de NH₃, de NO et de N₂O des sources agricoles sur la base des statistiques agricoles annuelles par département.

55. INS : <http://emissions-air.developpement-durable.gouv.fr/>.

La seconde, dite « de type *bottom-up* », se base sur une collecte de données du niveau le plus fin possible vers le niveau le plus agrégé en les rassemblant/redistribuant, et en privilégiant les sources de données fines aux clés de répartition. Cette approche est plus coûteuse en temps et nécessite que les données et la méthodologie soient adaptées l'une à l'autre pour former un modèle cohérent d'estimation des émissions. Ce type de méthode a été implémenté pour les émissions de NO_x et de NH₃ dans des projets de recherche qui pourraient être valorisés à terme.

Les travaux de spatialisation des émissions de polluants d'origine agricole ont été initiés pour les composés contribuant au réchauffement climatique (en particulier N₂O) et étendus aux NO_x (Rolland *et al.*, 2010). L'approche est de combiner les données géoréférencées sur les sols, le climat et les pratiques culturales avec le modèle Ceres-EGC⁵⁶, modèle d'agroécosystème avec des sorties environnementales. La démarche a été appliquée dans un premier temps à la région Île-de-France avec une résolution au niveau kilométrique (12 000 km²). Les six espèces de cultures arables les plus fréquentes ont été prises en compte, avec des taux d'émission allant de 1,4 à 11,1 kg N-NO · ha⁻¹ · an⁻¹. Les émissions se sont montrées sensibles au type de sol, au taux d'azote contenu par les engrais ainsi qu'à la saisonnalité des fertilisations, les plus élevées étant observées au printemps. Cette étude a montré par ailleurs que dans un milieu fortement anthropisé comme l'Île-de-France, la source principale des NO_x est bien le trafic routier, mais devient les sols agricoles dès qu'on s'éloigne de quelques dizaines de kilomètres des grandes zones urbaines. Cette méthode a été implémentée après quelques ajustements dans la plateforme inter-régionale Esmeralda (Études multirégionales de l'atmosphère) pour les calculs des émissions de NO_x d'origine agricole des inventaires régionaux de certaines régions.

En ce qui concerne les émissions de NH₃ au champ, l'Inra a développé l'outil Cadastre_NH₃ pour répondre à ce besoin (Ramanantenasoa *et al.*, 2018 ; Générmont *et al.*, 2018). L'outil repose sur l'utilisation combinée de deux types de ressources : d'une part le modèle mécaniste de prédiction de la volatilisation de NH₃ au champ au pas de temps horaire, Volt'Air, et d'autre part les bases de données géoréférencées à l'échelle des petites régions agricoles (PRA). Pour la répartition des types de sol et la caractérisation de leurs propriétés, deux bases de données sont utilisées (carte des sols FAO et European Soil Data Base) ; pour les conditions météorologiques à un pas de temps horaire, les informations sont obtenues grâce au modèle Safran (Météo-France). Les informations sur la fertilisation azotée, dates, doses, formes, méthodes d'apport et d'abattement, sont issues du recensement agricole et des enquêtes du ministère français de l'Agriculture (Service de la statistique et de la prospective, Agreste), complétées par les statistiques sur les livraisons d'engrais commerciaux. L'expertise française (Inra, instituts techniques) a permis de caractériser les propriétés physico-chimiques des engrais organiques. Le modèle Volt'Air est exécuté sur toutes les combinaisons de données d'entrée représentatives de chacune des zones géographiques d'allocation des données, les PRA : plus de 150 000 combinaisons sont produites pour l'ensemble de la France. Les émissions de NH₃ sont obtenues pour chaque PRA à un pas de temps horaire, et peuvent être agrégées ou désagrégées selon les besoins : spatialement, d'une maille de quelques

56. Ceres-EGC (Crop Environment Resource Synthesis-Environnement et grandes cultures) : <https://www.versailles-grignon.inra.fr/ecosys/Productions/Logiciels-Modeles/CERES-EGC>.

kilomètres carrés à la France entière, en passant par les départements et les régions ; temporellement, de l'heure à l'année culturale.

Cet outil a servi de cadre à la production d'inventaires dynamiques spatialisés d'émissions de NH_3 pour les années culturales 2005-2006 et 2010-2011. La comparaison avec les inventaires du Citepa montre une bonne concordance tant pour les quantités d'azote apportées au champ que pour les quantités de NH_3 volatilisées ; les taux d'émission modélisés sont aussi très cohérents avec les facteurs d'émission utilisés par le Citepa, mais l'outil présente l'avantage de refléter la gamme des variations au sein et entre les différentes régions françaises. Cadastre_ NH_3 s'est par ailleurs montré capable de simuler l'abattement des émissions au champ par la mise en œuvre de pratiques dans cet objectif (chapitre 7 pour les pratiques).

Les sorties de l'outil sont compatibles avec les entrées des modèles de chimie-transport : l'utilisation de Cadastre_ NH_3 en entrée du modèle Chimere⁵⁷ valide l'hypothèse qu'une représentation plus réaliste de la variabilité à la fois spatiale et temporelle des émissions de NH_3 contribue à l'amélioration des outils opérationnels de prédiction de la qualité de l'air en France (voir ci-dessous Prev'Air).

► Les dispositifs nationaux de surveillance de la qualité de l'air

Les engagements européens de réduction des émissions de polluants devraient conduire à la mise en œuvre de pratiques visant à la réalisation des objectifs nationaux par les États signataires. Les directives filles de la directive-cadre 96/62/CE affichent des objectifs non seulement de réduction des émissions, mais aussi de surveillance de leur respect sur le long terme. Cette surveillance implique un suivi organisé selon des procédures harmonisées à l'échelle européenne, dans le cadre de CLRTAP, et à l'échelle internationale par l'Organisation météorologique mondiale, en matière de méthodes de références, de validation des données et d'emplacement des points de prélèvement. Le suivi se matérialise en France depuis plusieurs décennies par l'activité de différents réseaux de surveillance de la qualité de l'air ainsi que des retombées atmosphériques et de leurs effets.

La surveillance de la qualité de l'air

C'est le Laboratoire central de surveillance de la qualité de l'air (LCSQA), constitué de l'Institut national de l'environnement industriel et des risques (Ineris), du Laboratoire national de métrologie et d'essais (LNE) et de l'École des mines de Douai (IMT Mines Douai), qui est chargé, par le ministère de l'Environnement, de la coordination scientifique et technique de la surveillance de la qualité de l'air depuis le 1^{er} janvier 2011.

Dans chaque région, la surveillance de la qualité de l'air est confiée aux Associations agréées de surveillance de la qualité de l'air (Aasqa), réunies au sein de la

57. Chimere : <http://www.lmd.polytechnique.fr/chimere/>.

Fédération Atmo France. Associations « loi 1901 », ces organismes ont pour mission de surveiller et d'évaluer la qualité de l'air ambiant pour les polluants réglementés que sont les oxydes d'azote (NO_x), les particules fines en suspension (PM₁₀ et PM_{2,5}), le dioxyde de soufre (SO₂), l'ozone (O₃), le monoxyde de carbone (CO), les composés organiques volatils (COV), les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) et les métaux lourds (plomb, Pb, cadmium, Cd, arsenic, As, nickel, Ni). Les pesticides ne font pas partie des polluants réglementés à surveiller. Les Aasqa ont toutefois réalisé des campagnes de suivi ponctuel depuis le début des années 2000 sur la base d'initiatives régionales. À noter toutefois une volonté d'harmoniser la méthodologie suivie et le lancement d'une campagne exploratoire d'ampleur nationale courant sur 2018-2019 suite à la saisine de l'Anses (2017), campagne préalable à la mise en place d'une surveillance plus pérenne. La priorisation des pesticides à suivre en priorité dans l'atmosphère est basée sur l'outil Sph'Air présenté ci-après.

Par ailleurs, les Aasqa contribuent au programme CARA (Caractérisation chimique des particules), à l'observatoire MERA⁵⁸ (dispositif national de Mesure et d'évaluation en zone rurale de la pollution atmosphérique à longue distance) et à la surveillance d'autres polluants d'intérêt national. Le dispositif national de surveillance s'appuie sur des appareils de mesure conformes répartis sur près de 650 stations de mesures ainsi que sur des outils de modélisation. Les Aasqa ont aussi pour mission d'informer les autorités et le public sur la qualité de l'air ambiant. Enfin, ce sont elles qui produisent les inventaires régionaux spatialisés des émissions primaires des polluants atmosphériques.

Le consortium Prev'Air⁵⁹, qui implique l'Ineris, Météo-France, le CNRS et le LCSQA, est chargé du développement, de la maintenance et de l'exploitation de la plateforme nationale de prévision de la qualité de l'air mise en place en 2003. Cette dernière diffuse quotidiennement les prévisions de la qualité de l'air et la cartographie à différentes échelles spatiales des concentrations de polluants atmosphériques réglementés. Prévisions et cartographie sont le résultat de simulations numériques : elles reposent sur l'exécution des modèles de chimie-transport Chimere (Ineris) et Morage (Météo-France) (chapitre 4) sur tout un ensemble de données d'entrée (données d'émissions par secteur d'activité, données météorologiques, données aux limites) ainsi que sur des données d'observation recueillies sur le terrain par les Aasqa.

Les réseaux d'observatoires des retombées atmosphériques et de leurs effets

Deux réseaux nationaux d'observation permettent d'assurer la surveillance des retombées atmosphériques et de leurs effets et de représenter de manière fiable les tendances observées pour les polluants majeurs surveillés. Une tendance commune à tous ces types de réseaux est l'intégration progressive de nouveaux polluants pour couvrir l'ensemble des composés gazeux et particulaires connus.

58. <https://www.lcsqa.org/fr/actualite/mera-observatoire-national-mesure-evaluation-zone-rurale-pollution-atmosphérique-longue-di>.

59. Prev'Air : <http://www.prevoir.org/>.

Le réseau forestier Renecofor

Renecofor⁶⁰ est un réseau national de suivi à long terme des écosystèmes forestiers, créé en 1992 par l'Office national des forêts (ONF), qui fait suite aux engagements de la France pour contribuer au suivi international des impacts des pollutions atmosphériques sur les forêts. Sa mission est de détecter d'éventuels changements dans le fonctionnement des écosystèmes forestiers et de mieux comprendre les raisons de ces changements. Il est constitué en France de 102 sites permanents, répartis de manière plutôt homogène, où la forêt est observée dans ses différentes composantes : les arbres, le sol, l'atmosphère et la diversité végétale.

Le réseau de biosurveillance Bramm

Le dispositif de Biosurveillance des retombées atmosphériques métalliques par les mousses (Bramm)⁶¹ permet de cartographier et de modéliser les concentrations en contaminants métalliques et azotés dans des mousses forestières sur les 500 sites de collecte répartis sur l'ensemble du territoire métropolitain. Ces sites sont localisés en milieu rural, loin des sources locales de pollution, et en milieu forestier, sous couvert arboré. Les spécificités physiologiques des mousses en font des bioaccumulateurs efficaces du dépôt atmosphérique particulaire et soluble : la concentration d'un élément dans une mousse permet ainsi d'estimer le niveau d'exposition vis-à-vis des contaminants atmosphériques, et de classer les sites les uns par rapport aux autres. Des campagnes quinquennales réalisées depuis une vingtaine d'années permettent de dresser des tendances d'évolution en pollution de fond. Ce réseau contribue à guider les politiques publiques en matière de mise en œuvre de réduction des émissions et d'en évaluer les effets, et de détermination des zones où la qualité de l'air est dégradée.

L'observatoire de surveillance en milieu rural MERA

L'observatoire national MERA est un observatoire français de la pollution de fond atmosphérique et de ses flux transfrontaliers. Il est dédié au suivi de l'évolution des concentrations et des retombées de polluants atmosphériques sur des sites ruraux non influencés localement et donc avec une très bonne représentativité spatiale régionale. Ses premières mesures datent de 1978 et il a subi une profonde rénovation en 1989. Les mesures concernent à la fois les retombées humides (composés inorganiques, métaux lourds et HAP présents dans les pluies) et les composés gazeux (O₃, NO₂, COV...) et particulaires (tels que nitrates, ammonium, sulfates, métaux lourds, HAP, PM₁₀, PM_{2,5}). Des paramètres météorologiques sont également suivis sur la majorité des sites. En 2015, l'observatoire comprenait 13 sites instrumentés pour la détermination des différents paramètres atmosphériques.

60. Renecofor : <http://www.onf.fr/renecofor/sommaire/renecofor/reseau/20090119-130815-828957/@@index.html>.

61. Bramm : <http://www.patrinat.fr/fr/biosurveillance-des-retombees-atmospheriques-metalliques-par-les-mousses-bramm-6071>.

► Indicateurs d'émission, de niveau de contamination de l'air et d'impacts environnementaux

L'utilisation d'indicateurs pour évaluer les impacts des pratiques agricoles sur l'environnement s'est largement répandue, depuis les années 1990, comme moyen d'appui aux décideurs à différents niveaux, de gestion des risques et d'évaluation de politiques publiques (Girardin *et al.*, 1999 ; Capillon *et al.*, 2005). La prise en compte du compartiment atmosphérique et des enjeux associés sur la santé humaine et les écosystèmes est apparue assez rapidement, en lien avec l'usage des PPP et des engrais azotés (van der Werf et Zimmer, 1998), même si la complexité des phénomènes sous-jacents rend leur modélisation incertaine. Parmi les multiples méthodes d'évaluation proposées dans la littérature, le schéma prévalent est l'hypothèse d'une chaîne causale entre émissions et impacts sur les cibles finales (êtres humains, organismes vivants ; Capillon *et al.*, 2005). Les indicateurs se situent à différents niveaux le long de cette chaîne, et présentent une modélisation plus ou moins complexe de ses différents maillons, exprimant les relations entre : pratiques agricoles et émissions de substances, émissions et concentrations induites dans le milieu, voies d'exposition à ces substances et effets sur les cibles biologiques.

Cette partie détaille des indicateurs et donne des exemples de leur utilisation pratique pour gérer des risques de pollution, évaluer des pratiques agricoles ou comparer des produits issus de l'agriculture sur l'ensemble de leur cycle de vie. De manière générale, le choix d'un ensemble d'indicateurs reste souvent un compromis entre de nombreuses contraintes d'objectifs, de moyens, voire de visions sur ce qui fait problème. Il est donc essentiel d'explicitier les choix méthodologiques et d'examiner l'incertitude qui pèse sur les résultats d'évaluation, en particulier si ces résultats débouchent sur une labellisation ou une qualification environnementale (comme le bilan carbone ou l'analyse du cycle de vie, abordée en fin de chapitre).

Le tableau 6.6 donne une vision synoptique des méthodes décrites dans cette partie et spécifie leurs objectifs en vue de guider le choix des indicateurs. Même s'il n'est pas précisé explicitement pour toutes les méthodes présentées, l'objectif d'une hiérarchisation des enjeux amenant à prioriser les actions à mener constitue une des questions transversales et sous-jacentes à l'évaluation des impacts. Cette question est illustrée ici par rapport au choix des substances à suivre dans le cadre de la surveillance de la qualité de l'air, en ce qui concerne les pesticides. Un autre enjeu commun à ces méthodes d'évaluation est de mettre en lumière les risques de transferts de pollution d'une catégorie d'impacts à une autre lors de l'application de mesures de prévention, ou d'une étape à l'autre du cycle de vie d'un produit. Un exemple, non agricole, mais souvent cité s'agissant du premier point, concerne le changement climatique et la pollution atmosphérique. L'utilisation de chaudières à bois est neutre en carbone et permet de substituer une ressource renouvelable, le bois, à des combustibles fossiles, mais ces chaudières ou poêles à bois sont des sources importantes de particules fines qui nuisent à la qualité de l'air — phénomène bien connu dans la vallée de l'Arve notamment. Une approche multicritère est donc indispensable pour définir des plans d'action pertinents et holistiques. Elle est illustrée ici dans le cadre de l'outil Sph'Air.

Tableau 6.6. Récapitulatif des méthodes utilisées pour évaluer l'impact de la pollution atmosphérique sur différents enjeux environnementaux et sanitaires, indiquant leurs objectifs spécifiques.

Indicateur	Impacts considérés	Objectifs
Indice d'exposition (AOT)	Santé humaine, production agricole	Quantifier une exposition aux polluants atmosphériques
Fonctions d'impact (POD)	Santé humaine, production agricole et forestière	Quantifier l'impact d'une exposition aux polluants atmosphériques sur la santé ou la production des plantes
Sph'Air (multicritère)	Santé humaine et des écosystèmes	Hiérarchiser des polluants pour le suivi de la qualité de l'air
Indicateurs agroenvironnementaux	Santé humaine et des écosystèmes, eutrophisation, changement climatique	Comparer des pratiques agricoles (notamment fertilisation et protection phytosanitaire)
Analyse du cycle de vie	Santé humaine et des écosystèmes, changement climatique, eutrophisation, acidification, potentiel de formation d'ozone	Comparer des itinéraires techniques ou des produits par rapport à un grand nombre de critères environnementaux, entrer dans une démarche d'écoconception

Les indicateurs d'exposition et les fonctions d'impact : l'exemple de l'ozone

Les impacts de l'ozone sur les végétaux dépendent de la quantité de polluant qui pénètre dans les feuilles à travers les stomates pendant le temps d'exposition.

Des relations dose-impact ont été établies au niveau européen pour évaluer les conséquences de la pollution par l'ozone sur les cultures, les végétations naturelles et les forêts. Ces travaux sont menés dans le cadre de la Convention de Genève (CLRTAP), complétée par le Protocole de Göteborg (1999), qui a pour but de réduire la pollution atmosphérique transfrontière (acidification, eutrophisation et ozone) par la mise en œuvre de mesures politiques. Les cartes réalisées à partir des relations dose-impact permettent d'informer les décideurs sur les effets actuels de l'ozone ainsi que sur les conséquences à venir en fonction de différents scénarios.

Indicateurs d'exposition

Les indicateurs d'exposition les plus simples ne considèrent que la concentration en ozone de l'air estimée au niveau du sommet du couvert végétal — sans prendre en compte la diffusion réelle de l'ozone vers l'intérieur des feuilles, ni la capacité des plantes à éliminer l'ozone par des mécanismes biochimiques. Ces aspects importants sont présentés dans la partie qui suit. Les indicateurs d'exposition reposent sur deux faits expérimentaux : le premier est que l'impact est d'autant plus important que la dose d'ozone (concentration \times durée d'exposition) reçue par les plantes est élevée. Le second est que de faibles teneurs en ozone n'ont pas d'effet, et que les impacts

ne se manifestent qu'au-delà d'un certain seuil de concentration. Le calcul de ces indices consiste donc à faire la somme des concentrations horaires supérieures au seuil de toxicité pendant toute la durée de la période d'exposition à l'ozone.

Aux États-Unis, les données expérimentales ont permis de définir un seuil de 60 ppbv, en prenant en compte toutes les heures de la journée, y compris pendant la nuit. L'indicateur correspondant est le $\Sigma 06$ (en ppbv · h, équation 6.3 ; Heagle, 1989). En Europe, les données expérimentales obtenues (principalement sur blé et épicéa) suggèrent un seuil plus bas, d'une valeur de 40 ppbv, uniquement pendant les heures de jour, quand les stomates sont ouverts (AOT40, en ppbv · h, équation 6.4, Fuhrer, 1994).

$$\Sigma 06(\text{ppbv}\cdot\text{h}) = \sum_{i=1}^n \left(\left[\text{O}_3 \right]_i - 60 \right) \text{ quand } \left[\text{O}_3 \right] > 60 \text{ ppbv} \quad (6.3)$$

$$\text{AOT40}(\text{ppbv}\cdot\text{h}) = \sum_{i=1}^n \left(\left[\text{O}_3 \right]_i - 40 \right) \text{ quand } \begin{cases} \left[\text{O}_3 \right] > 40 \text{ ppbv} \\ R_g > 50 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2} \end{cases} \quad (6.4)$$

où n représente le nombre d'heures d'exposition et R_g ($\text{W} \cdot \text{m}^{-2}$) le rayonnement solaire global.

Indicateurs basés sur les flux de polluant absorbés par les plantes

Depuis une quinzaine d'années, les travaux de l'ICP Vegetation (réseau international de coopération sur l'effet de la pollution de l'air sur les plantes) se sont concentrés sur le développement d'indicateurs intégrant davantage le fonctionnement biologique des plantes *via* leurs capacités de détoxification, ainsi que le fait que le polluant n'a d'impact que s'il entre dans la feuille en diffusant à travers les stomates. Ils reposent sur la modélisation de la conductance stomatique par l'approche dite « de Jarvis » (Jarvis, 1976), qui offre un moyen simple de calculer l'ouverture des stomates en fonction des facteurs météorologiques et de l'état hydrique du sol. À partir de ces valeurs de conductance, il devient possible de calculer le flux d'ozone entrant dans les feuilles (voir par exemple Emberson *et al.*, 2000 ; Grünhage *et al.*, 2012). L'indice utilisé (équation 6.5) n'est donc plus un indicateur d'exposition, mais un indicateur du cumul de la quantité de polluant qui entre dans les feuilles par les stomates et que les végétaux ne sont pas capables de détoxifier instantanément.

$$POD_Y = \sum_{i=1}^n \left[(FO_3)_i - Y \right] \text{ quand } FO_3 > Y \quad (6.5)$$

POD_Y désignant l'indice « Phytotoxic Ozone Dose » (cumul des flux horaires, exprimé le plus souvent en $\text{mmol} \cdot \text{m}^{-2}$), Y le flux maximum que les végétaux sont capables de détoxifier (entre 0 et $10 \text{ nmol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$), FO_3 le flux instantané d'ozone entrant dans les feuilles par les stomates ($\text{nmol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) et n le nombre d'heures d'exposition à l'ozone.

Les fonctions d'impact

Les fonctions d'impact utilisées par l'ICP Vegetation sont établies par ajustement statistique entre les indicateurs calculés (AOT40, équation 6.4, ou POD_y , équation 6.5) et des valeurs de rendement observées expérimentalement. Compte tenu de la relativement faible précision de ces méthodes, il a été jugé préférable d'utiliser de simples relations linéaires. Les relations permettant de calculer des pertes de rendement à partir de calculs d'AOT40 sont aujourd'hui disponibles pour la plupart des plantes cultivées (Mills *et al.*, 2007) et des essences forestières (Karlsson *et al.*, 2004).

Pour estimer les effets de la pollution de l'air sur la production de biomasse des cultures agricoles ou des forêts, les relations flux-impact obtenues à partir des indicateurs de flux sont plus performantes que les relations dose-impact, fondées sur les indicateurs de concentrations (Mills et Harmens, 2011). Cependant, elles requièrent des données climatiques et d'état hydrique des sols, qui ne sont pas toujours disponibles. De plus, on ne sait pas encore bien estimer comment le flux d'ozone qui passe de l'atmosphère vers la végétation se partage entre la fraction qui entre effectivement dans les feuilles et celle qui se dépose sur les épidermes ou le sol (Lamaux *et al.*, 1994). Par ailleurs, les indices existants ne prennent en compte que de façon très imparfaite la capacité des plantes à détoxifier une partie du flux d'ozone absorbé par voie stomatique — la valeur du flux maximum que les végétaux sont capables de détoxifier (Y dans l'équation 6.5) est pour le moment considérée comme un simple paramètre, de valeur constante et calculé empiriquement.

Pour finir, les fonctions d'impact basées sur les POD_y , n'ont pour le moment été établies que pour quelques espèces, principalement sous les climats européens : blé, pomme de terre, tomate, et plusieurs essences ligneuses (épicéa, hêtre, chêne, peuplier, bouleau, pin sylvestre et pin d'Alep). Les participants à l'ICP Vegetation travaillent actuellement à établir ces relations pour un plus grand nombre d'espèces cultivées.

Évaluation multicritère de l'exposition à des polluants atmosphériques : l'outil Sph'Air pour les pesticides

La partie précédente était focalisée à titre d'exemple sur l'ozone, un des polluants atmosphériques majeurs impactant les agroécosystèmes. Concernant les PPP, au vu du nombre de matières actives concernées, il est nécessaire de hiérarchiser les substances à surveiller dans l'atmosphère. Pour établir cette hiérarchie, plusieurs critères doivent être considérés simultanément, ce qui est le propre d'une approche multicritère. L'outil informatisé Sph'Air développé depuis 2002 (Gouzy *et al.*, 2005) a été conçu pour apporter une aide opérationnelle quant à l'identification et à la classification des pesticides, dont les PPP, à surveiller de façon prioritaire dans l'air en France. La technique de hiérarchisation proposée présente les principaux avantages suivants : elle s'inspire d'un schéma conceptuel simplifié validé par un panel d'experts décrivant les processus engendrant la contamination de l'atmosphère suite à un traitement phytopharmaceutique de cultures, ainsi que les critères

sélectionnés (figure 6.2) ; elle est basée sur une méthode mathématique d'analyse multicritère reconnue, la méthode Electre III (Roy, 1985 ; Roger et Bruen, 1998), qui consiste à discriminer les substances en les comparant critère par critère, un critère devant traduire au plus juste (mais potentiellement de façon simplifiée) les enjeux attachés à la hiérarchisation à réaliser ; enfin, elle s'appuie sur une base de données compilant des paramètres physico-chimiques et toxicologiques descriptifs des substances actives présentes dans la plupart des PPP utilisés ou ayant été utilisés en France.

Les critères de hiérarchisation « temps de résidence » et « sources » incluent chacun des processus différents, respectivement la dégradation dans l'atmosphère et la partition gaz/particule, et la répartition de la matière active à l'application entre le sol, la végétation (cible) et l'atmosphère, la volatilisation à partir du sol incluant la dégradation dans le sol ainsi que la volatilisation à partir de la plante. Ces critères sont estimés par modélisation ou à dire d'experts. Le critère « quantité » englobe les quantités utilisées par matière active sur le territoire d'étude. Enfin, le critère de « toxicité », mis à jour lors de la saisine de l'Anses (2017), est un critère optionnel décrivant les effets des PPP sur la santé humaine (chapitre 1). Dans le cas où ce critère est utilisé, ce n'est plus à proprement parler un indicateur d'exposition, mais plutôt un indicateur de risque. Ainsi, chacun des critères est caractérisé substance active par substance active et intégré à la méthode d'analyse multicritère afin de comparer les substances de façon rigoureuse et systématique, conduisant *in fine* aux listes hiérarchisées des PPP en fonction des territoires.

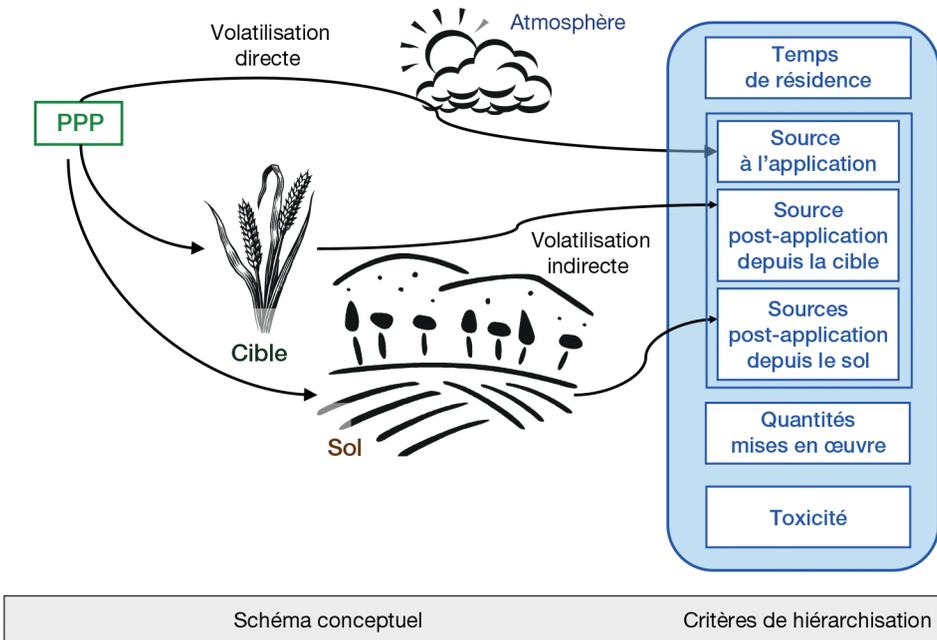


Figure 6.2. Schéma conceptuel simplifié à la base de l'outil Sph'Air.

Outre sa capacité à hiérarchiser les matières actives, les principaux atouts de l'outil Sph'Air sont liés :

- à la possibilité de prendre en compte de façon simultanée un grand nombre de molécules sur la base de données facilement mobilisables ;
- à l'adaptabilité de l'outil à une utilisation générique à l'échelle d'un pays ou à une utilisation spécifique à l'échelle d'une région ;
- à l'adaptabilité de l'outil à l'étude envisagée, obtenue par ajout ou retrait d'un critère, ou en ciblant un type de culture particulier (grandes cultures, arboricultures, vignes).

Les indicateurs agroenvironnementaux

Une typologie pour se repérer dans une offre foisonnante

L'impossibilité d'observer ou de mesurer directement une bonne partie des nombreux impacts de l'agriculture sur l'environnement, et notamment ceux liés aux émissions vers l'atmosphère des systèmes de productions agricoles (Bockstaller *et al.*, 2015), explique le foisonnement d'initiatives proposant des méthodes d'évaluation reposant sur des indicateurs pour évaluer ces systèmes (Lairez *et al.*, 2015). Différentes typologies ont été établies durant ces dernières décades pour clarifier cette offre. Bockstaller *et al.* (2015) distinguent par exemple :

- des indicateurs de cause basés sur une variable causale ou une simple combinaison (somme, produit, ratio) de variables de même nature. Ces indicateurs portent le plus souvent sur des données de pratiques agricoles, mais peuvent aussi utiliser des variables de milieu (sol, climat) ;
- des indicateurs d'effets prédictifs reposant sur des sorties de modèles qui peuvent être soit opérationnels — avec un nombre réduit de variables d'entrées accessibles —, soit complexes, issus de la recherche, plus gourmands en données et en références nécessaires ;
- des indicateurs d'effets mesurés basés sur des mesures ou des observations de terrain.

Indicateurs de cause basés sur les pratiques

Pour les pertes d'azote sous forme gazeuse, les indicateurs basés sur le calcul d'un bilan sont les plus couramment utilisés pour évaluer la gestion des nutriments minéraux (Bockstaller *et al.*, 2012). Ils reposent sur le calcul d'un solde : entrée d'azote – sortie d'azote = variation de stock d'azote (ou solde), soit à l'entrée de l'exploitation (par exemple bilan apparent ou des minéraux), de la surface des parcelles de l'exploitation (par exemple bilan Corpen ou balance globale azotée) ou du système sol-plante. Cependant, le solde ne renseigne pas directement sur la nature et la forme des transferts (lixiviation du nitrate, volatilisation de NH_3 ou autre). La synthèse du Corpen a décrit plusieurs indicateurs de ce type en y ajoutant des recommandations pour l'interprétation (Corpen, 2006), mais s'est focalisée principalement sur le risque de lixiviation de nitrate. Pour NH_3 , d'autres indicateurs, comme la surface épandue avec incorporation ou la quantité d'azote à

haut risque de volatilisation (solution azotée liquide, urée, lisier, etc.), pourraient être proposés.

Le transfert de PPP vers l'atmosphère est fonction de différents processus, impliquant principalement la volatilisation ou la dérive au moment de l'application (chapitre 2). En raison de la complexité des processus, les méthodes d'évaluation multicritère reposent sur l'indicateur « quantité de substance active » (QSA) ou sur l'indicateur « indice de fréquence de traitement » (IFT), qui est le rapport dose appliquée sur dose de référence. D'autres notent simplement la surface traitée ou la proportion non traitée (ou surface en agriculture biologique). L'ensemble de ces indicateurs ne traite pas du tout des voies de transfert vers les différents compartiments, dont celui de l'atmosphère. Comme pour le NH_3 , d'autres indicateurs, comme le matériel utilisé (pulvérisateur à faible risque de dérive), le type de matériel utilisé, le recours à des buses anti-dérives, les surfaces épandues avec incorporation ou la quantité de PPP à haut risque de volatilisation, pourraient être proposés. Cependant pour ce dernier, il faudrait pouvoir d'abord qualifier le risque de volatilisation avec des indicateurs décrits au paragraphe suivant.

Indicateurs prédictifs d'effet : des indicateurs d'émission

Ces indicateurs ne fournissent pas d'information sur le devenir dans l'atmosphère des polluants, mais se concentrent sur une estimation de leurs émissions. Ils sont obtenus à partir de calculs ou de modèles plus ou moins complexes (indicateurs prédictifs d'effet), mais peuvent aussi être déduits de mesures de terrain (indicateurs d'effets mesurés). L'échelle peut être une parcelle agricole, un bâtiment d'élevage ou tout autre écosystème.

Sous leur forme la plus simple, les indicateurs prédictifs pour l'azote prennent en compte des facteurs d'émission exprimés en pourcentage de la quantité d'azote qui offrent à l'utilisateur une évaluation rapide des flux vers l'environnement (tableau 6.1). D'autres approches basées sur des modélisations opérationnelles prennent en compte d'autres facteurs que la quantité d'intrants. Les sous-indicateurs I- NH_3 et I- N_2O de l'indicateur I-N d'Indigo intègrent les modalités d'apport (période d'application, nature de l'engrais, incorporation ou non de l'engrais) (Bockstaller *et al.*, 2008). Des modèles plus élaborés basés sur les processus intègrent plus de processus et donc davantage de facteurs, notamment le climat. Les modèles NOE (Hénault *et al.*, 2005) pour les émissions de N_2O ou Volt'Air (Le Cadre, 2004 ; Garcia *et al.*, 2012) pour la volatilisation sous forme de NH_3 ont été développés à l'Inra. Le cœur du calcul du modèle NOE ainsi que des fonctions générées par Volt'Air combinées à des fonctions trouvées dans la littérature ont été repris par l'outil Syst'N de manière plus opérationnelle (Parnaudeau *et al.*, 2012).

Pour les PPP, il ressort de la revue de Devillers *et al.* (2005) décrivant 43 indicateurs de risque recensés dans la bibliographie internationale que seuls 8 indicateurs traitaient du compartiment atmosphérique. La majorité d'entre eux croisent une composante « exposition » avec une composante « toxicité » pour évaluer le risque. Il faut ajouter à cette revue la nouvelle approche proposée dans I-PHY avec l'indicateur I-PHY2air pondérant une valeur des flux de volatilisation sur le sol et les plantes venant des équations de Woodrow *et al.* (1997) et un facteur d'application

prenant en compte la pratique d'application et la dose. Cet indicateur évalue aussi le risque de transfert vers l'air par dérive sur la base de deux facteurs, le type de pulvérisateur et l'utilisation de buses antidérive.

Enfin, comme pour le NH_3 , des modèles intégrant davantage de processus ont été développés, en particulier pour la simulation des émissions depuis le sol avec le modèle Volt'Air, adaptés aux PPP, et un autre modèle développé à l'Inra, SurfAtm-Pesticides (chapitre 5), pour prendre en compte la volatilisation depuis les feuilles.

Quels indicateurs choisir ?

D'une manière générale, les indicateurs de cause basés sur les pratiques sont certainement les plus faciles à renseigner à grande échelle et sont indispensables dans l'évaluation des changements de pratiques. Mais ils présentent l'inconvénient majeur, pris individuellement, d'être de très faibles prédicteurs des émissions. Pour pallier ce défaut, il est généralement conseillé d'en utiliser plusieurs, mais cela pose la question de la synthèse et de l'agrégation de l'information qui en résulte. À l'opposé, des indicateurs reposant sur des mesures présentent l'avantage de donner une information plus « proche » des états et des impacts par rapport aux indicateurs de pratiques. Cependant, leur nature même montre qu'ils ne donnent pas une information directe sur les causes, et notamment sur la gestion de la fertilisation azotée (Bockstaller *et al.*, 2015). Enfin, les indicateurs d'effet prédictifs sont un compromis intéressant entre ces deux groupes et présentent l'avantage de pouvoir tracer les relations entre causes et effets. Ainsi, pour les pesticides, ils peuvent permettre d'identifier les molécules à risque à rechercher prioritairement (voir section « Évaluation multicritère de l'exposition à des polluants atmosphériques : l'outil Sph'Air pour les pesticides »). Ils présentent l'avantage de calculer en simulation (évaluation *ex ante*) les impacts environnementaux d'itinéraires nouveaux de conduites de cultures, différenciés notamment par les pratiques de fertilisation et/ou de protection des cultures. Ils peuvent contribuer à la sélection de scénarios innovants plus économes en intrants fertilisants et moins émetteurs de substances dommageables pour l'environnement, la santé humaine et la biodiversité. Cependant, ceux reposant sur des coefficients d'émissions ou juste sur les propriétés de molécules restent probablement de faible qualité prédictive, si l'on se réfère aux conclusions du projet Equipe sur les indicateurs de la qualité de l'eau (Pierlot *et al.*, 2016).

Compte tenu du foisonnement, l'utilisateur doit clarifier ses besoins avant de sélectionner le ou les indicateurs les plus adéquats pour y répondre en fonction des moyens dont il dispose. Un certain nombre de choix préalables sont nécessaires : les polluants étudiés (pesticides, NH_3 , N_2O ...), les finalités, les destinataires de l'information, les échelles de travail (de collecte et de recueil de données), pour orienter le choix vers tel ou tel indicateur (voir synthèse dans le tableau 6.6).

Les approches par l'analyse du cycle de vie

Les questions de qualité de l'air sont également abordées sous l'angle de la consommation alimentaire. Afin d'évaluer les produits dans leur ensemble (matière première

agricole, transformation, logistique, emballage, etc.), des méthodes englobantes sont nécessaires. L'analyse du cycle de vie (ACV) est une méthode qui s'impose progressivement à l'échelle internationale pour évaluer la performance environnementale des produits ou services, dans l'ensemble des secteurs, dont l'agriculture et l'alimentaire (Hellweg et Milà i Canals, 2014). Cette méthode s'applique donc au système agricole, couvrant les différents compartiments environnementaux (air, eau, sol). L'ACV a pour ambition de couvrir l'ensemble des impacts environnementaux de manière exhaustive et non redondante. Développée originalement pour l'industrie, elle s'est fortement diffusée dans les secteurs agricole et alimentaire depuis les années 2000, en s'adaptant aux enjeux de ces secteurs. La communauté scientifique agrège des connaissances agronomiques et de sciences environnementales, et contribue à faire évoluer la méthodologie ACV.

L'ACV repose sur un inventaire des émissions et impacts causés par l'ensemble des étapes de la vie d'un produit, depuis l'extraction des matières premières ayant servi à sa fabrication jusqu'à son élimination ou son recyclage. Si l'on s'intéresse par exemple à la production de céréales, le système étudié comprendra la parcelle agricole, site de la production finale, mais également les activités nécessaires à la production des intrants mobilisés pour faire pousser les cultures, comme la synthèse de PPP ou d'engrais azoté.

L'intérêt premier de cette méthode est de mettre en lumière les risques de transferts de pollution d'une étape du cycle à une autre, ou d'un compartiment ou d'un type d'impact environnemental à l'autre, à travers une vision plus globale du système étudié. Elle prend par ailleurs en compte un ensemble très complet d'enjeux environnementaux, ce qui est l'un de ses points forts. Cette approche orientée vers des produits finaux (et non des pratiques agricoles ou des choix d'intrants) est tournée vers l'écoconception et est en cela complémentaire des approches plus territoriales évoquées dans les sections précédentes.

Plusieurs émissions et indicateurs ACV ont trait spécifiquement au compartiment atmosphérique. La construction de ces indicateurs suit toujours le même principe : des modèles agroenvironnementaux permettent d'estimer les émissions de polluants dans l'air des différentes opérations agricoles. Ces émissions sont ensuite agrégées avec le reste du cycle de vie des produits étudiés et converties en indicateurs d'impacts. Les indicateurs concernés sont les émissions de gaz à effet de serre (non couvertes par cet ouvrage), la pollution à l'ozone, l'acidification, l'eutrophisation, la toxicité et l'écotoxicité, dont les processus sont détaillés dans les chapitres précédents. Sur le cycle de vie d'un produit agricole, les émissions de molécules acidifiantes ont lieu principalement lors de la combustion des carburants utilisés et de la fertilisation azotée. L'eutrophisation correspond à l'enrichissement en éléments nutritifs des milieux, résultant du lessivage, mais aussi du dépôt atmosphérique d'azote. Enfin, l'écotoxicité correspond à l'effet des émissions de polluants sur le milieu naturel et la toxicité sur la santé humaine.

Pour le compartiment air, les enjeux de toxicité portent principalement sur les émissions de PPP lors de l'application et dans une moindre mesure de produits de combustion des machines agricoles. L'évaluation des émissions et de l'effet des PPP fait partie des enjeux scientifiques forts et complexes dans le champ de l'évaluation environnementale (chapitre 5).

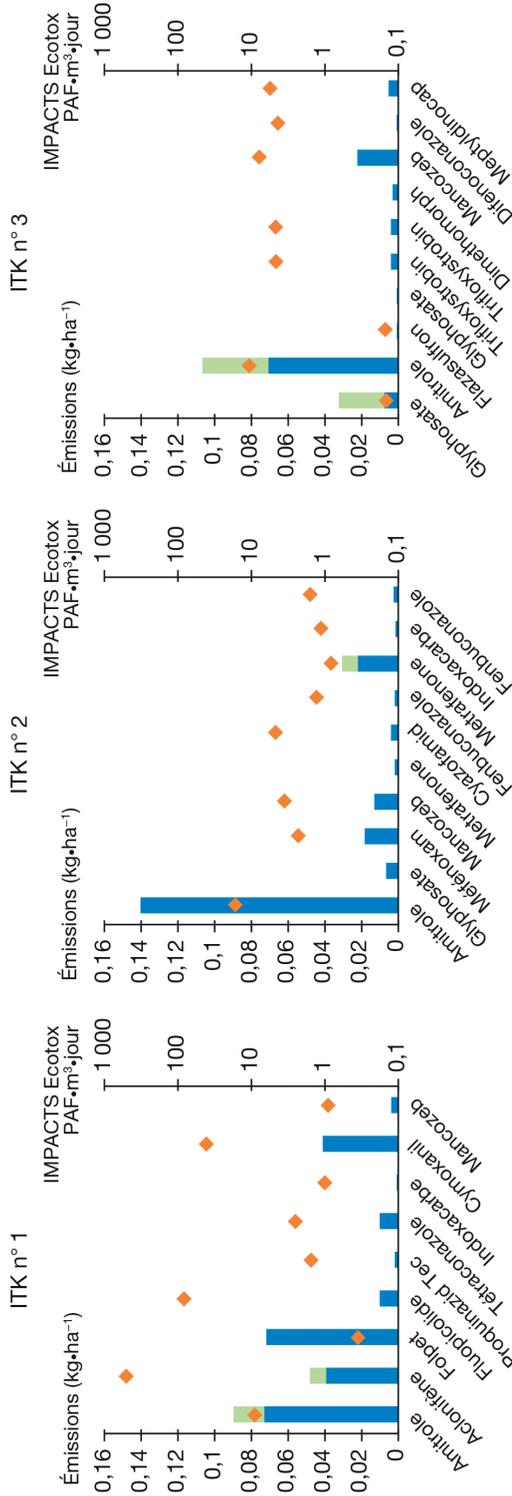


Figure 6.3. Émissions des différentes matières actives intervenant dans trois itinéraires de protection (notés ITK 1, 2 et 3), représentatifs de l'AOC chenin blanc dans la vallée de la Loire (bleu : émission vers l'air ; vert : émission vers les eaux profondes). Les impacts associés en termes d'écotoxicité aquatique sont exprimés en proportion d'espèces potentiellement affectées (PAF) par volume d'eau et par jour avec le modèle Use Tox (Renaud-Gentié *et al.*, 2015). Les impacts sont présentés en suivant l'ordre chronologique des apports de matière active.

Les différents indicateurs ACV seront de plus en plus utilisés pour évaluer les techniques agricoles et prouver la performance environnementale des produits alimentaires, des chartes de qualité et des cahiers des charges. L'enjeu est que ces indicateurs reflètent bien la réalité agronomique et environnementale, qu'ils soient discriminants et contribuent à soutenir la diffusion des meilleures pratiques dans des logiques d'écoconception.

À titre d'illustration, la figure 6.3 compare les impacts du cycle de vie de trois itinéraires de protection phytosanitaire d'une vigne en Pays de Loire (Renaud-Gentié *et al.*, 2015). L'impact concerne l'écotoxicité pour le compartiment eau douce, estimé à l'aide du modèle UseTox (Rosenbaum *et al.*, 2008). Les émissions lors de l'application des différents PPP concernent majoritairement le compartiment atmosphérique, ces PPP étant par la suite en grande partie déposés sur des écosystèmes aquatiques, avec un impact direct sur les êtres vivants les peuplant. La figure 6.3 met également en relief des différences significatives entre les itinéraires utilisés (basés sur des enquêtes), et la contribution des différentes matières actives utilisées.

La qualité des indicateurs dépend largement de la qualité des modèles d'émissions, qui doivent être fiables tout en restant opérationnels. En effet, les utilisateurs des ACV n'ont pas toujours accès à des données précises sur les pratiques agricoles et les conditions pédoclimatiques. Pour combler cela, des bases de données génériques comme AgriBalyse (Colomb *et al.*, 2015) sont développées par les professionnels et les pouvoirs publics.

Ces approches se diffuseront probablement sous l'impulsion des filières et des acteurs aval de la chaîne (transformateurs, distributeurs) soucieux d'améliorer la durabilité de leurs produits finis. Elles contribueront aussi à différentes politiques autour de la consommation durable, *via* des dynamiques comme l'affichage environnemental qui sont en phase de test aux niveaux français et européen.

Chapitre 7

Réduire l'impact de l'agriculture sur la qualité de l'air

Pierre Cellier, Sophie Générumont, Antoine Pierart,
Sophie Agasse, Jean-Louis Drouet, Nadège Edouard, Thomas
Eglin, Laurence Galsomiès, Nadine Guingand, Benjamin Loubet,
Isabelle Roussel

- Les chapitres précédents ont évoqué combien, dans le domaine agricole, les
- niveaux et la nature des émissions de gaz⁶² et de particules pouvaient être variables
- selon les pratiques, les espèces animales et végétales, les conditions d'élevage et le
- poste concerné (bâtiment, stockage, pâturage et épandage), ainsi que les conditions
- pédoclimatiques dans le cadre de la gestion des cultures. Ils ont aussi explicité les
- processus à l'origine de ces émissions et mis en avant les principaux facteurs d'in-
- fluence de ces processus. Il s'agit dans ce chapitre de montrer comment, sur la base
- de ces connaissances, il est possible d'identifier des mesures de réduction de ces
- émissions pour chacun des postes concernés, à différentes échelles d'organisation.

La maîtrise des émissions doit s'insérer dans la conduite des cultures et des élevages et plus généralement dans le fonctionnement de l'exploitation agricole, d'un point de vue à la fois technique et économique. Les émissions de polluants atmosphériques en agriculture concernent bien sûr le système agricole lui-même, puisqu'elles représentent souvent une perte d'efficacité (par exemple, perte de nutriments pour

62. N'étant pas considérée comme un secteur fortement contributeur aux émissions de composés organiques volatils non méthaniques (COVNM) en France, l'activité agricole n'est pas ciblée pour en réduire les émissions. Le niveau de connaissance concernant ces composés n'étant pas non plus le même que celui d'autres composés, les pratiques spécifiques de mitigation de ces émissions ne sont pas encore identifiées. Il ne sera donc pas question des COVNM dans ce chapitre.

la volatilisation d'ammoniac). Mais elles touchent également aux relations entre l'agriculture et la société, puisqu'elles contribuent à la dégradation de la qualité de l'air et aux impacts multiples, sanitaires et environnementaux, qui en résultent. Ces relations concernent toute une gamme d'échelles allant des relations de voisinage à des aspects touchant à la réglementation sur la pollution de l'air aux échelles régionales, nationales et européennes.

Les moyens d'action pour limiter les émissions doivent donc considérer de multiples facteurs, tant naturels qu'humains et réglementaires. C'est toute cette complexité du passage de l'analyse des processus à l'action que ce chapitre vise à présenter en allant des actions les plus locales vers les plus larges, sans toutefois chercher l'exhaustivité.

► Pratiques élémentaires à l'échelle de l'exploitation

En raison de la pluralité des sources et du caractère hétérogène et souvent diffus des émissions d'origine agricole, les leviers d'action de ce secteur sont multiples et relativement spécifiques à chacun des postes et des composés. Le choix a été fait de ne pas présenter dans le détail l'ensemble des techniques mobilisables et reconnues comme efficaces. Celles-ci sont détaillées dans différents rapports, en particulier : le *Guide des bonnes pratiques environnementales d'élevage*, édité par le RMT Élevages et environnement (Guinand *et al.*, 2010) ; l'analyse réalisée pour le compte de l'Ademe sur le potentiel de dix actions de réduction des émissions d'ammoniac des élevages français (Martin et Mathias, 2013) ; le Document d'orientation pour la prévention et la réduction des émissions d'ammoniac provenant des sources agricoles, édité par l'organe exécutif de la CLRTAP⁶³ (CEE-NU, 2014) ; le BREF (Best Available Techniques Reference Document for the Intensive Rearing of Poultry or Pigs ; Santonja *et al.*, 2017) ; *Le guide des bonnes pratiques agricoles pour l'amélioration de la qualité de l'air* (Citepa, 2019c), récemment édité suite au Prepa⁶⁴ en vue de l'adoption de pratiques de réduction par les agriculteurs. La plupart des principes sous-jacents aux techniques de réduction mises en œuvre reposant sur des bases physiques, chimiques et biologiques communes, le choix a été fait de présenter les pratiques de réduction par type d'effet mobilisé. Le tout premier niveau de classification reflète le fait qu'il est possible d'agir à la fois sur le niveau de l'activité lui-même, et sur le taux/facteur d'émission de l'activité en question (voir chapitre 6, « Inventaires »).

Moduler l'activité agricole

Les émissions sont très généralement liées aux surfaces concernées par les activités agricoles pour les cultures et les prairies, mais également aux quantités d'intrants mobilisées par unité de surface. Pour les productions animales, elles dépendent en

63. CLRTAP : Convention on Long Range Transport of Air Pollution (ou Convention sur la pollution atmosphérique transfrontière à longue distance).

64. Prepa : Plan national de réduction des émissions de polluants atmosphériques.

premier lieu du nombre d'animaux et des caractéristiques des déjections. Trois types d'actions sont envisageables pour moduler le niveau de l'activité agricole.

Réduire le périmètre d'activité

Le type d'action le plus direct revient à diminuer le nombre de têtes en élevage, mais il induit une baisse de production à mettre en regard de la demande des consommateurs. Une adéquation ne peut être trouvée que par des importations de produits animaux ou par des changements de comportements alimentaires, qui ne s'opèrent souvent que sur des échelles de temps longues. Pour ce qui est des cultures, il revient à réduire les surfaces cultivées utilisant des intrants, au profit d'autres types d'usages de sols. Au-delà des questions sur le devenir de ces surfaces libérées et des pertes de revenus pour l'exploitant agricole que ce type de modifications est susceptible d'induire, se présente aussi le risque de n'être plus en adéquation avec les besoins alimentaires (population et bétail) et les autres besoins de biomasse pour l'énergie et la chimie.

Augmenter l'efficacité de l'activité

Le deuxième type d'action consiste à augmenter l'efficacité de l'activité au regard des intrants utilisés : il suppose de trouver des moyens de conserver un même niveau de production avec une moindre utilisation d'intrants.

Dans le cas des surfaces cultivées, cela revient par exemple à raisonner la protection des cultures de la manière la plus optimisée possible ou à piloter au plus juste la fertilisation : l'agriculteur peut optimiser les doses d'azote apportées ainsi que les dates d'apport pour être au plus près des besoins des cultures, voire accepter de légères carences. La méthode du bilan d'azote prévisionnel (Comifer, 2013) est souvent utilisée, *via* une mesure du reliquat d'azote en sortie d'hiver ou grâce à des outils de pilotage sur cultures en cours de végétation (MAAF, 2016). Les plantes prélèvent rapidement l'azote car elles en ont besoin, ce qui évite des excédents d'azote dans le sol et limite en conséquence les pertes d'azote sous toutes ses formes. De la même manière, l'utilisation de cultures intermédiaires en interculture peut également contribuer à fixer les reliquats azotés après la récolte et à en réduire les pertes.

Dans le cas de l'élevage, cela passe par une augmentation de l'efficacité de l'alimentation, conduisant à une réduction des quantités d'azote excrété par rapport à l'azote ingéré. Cette augmentation de l'efficacité de l'azote des aliments peut concerner tous les types d'élevage : des stratégies spécifiques de réduction des teneurs en protéines des aliments conduisent à une réduction de l'azote excrété dans les effluents, notamment sous forme uréique, sans altération des performances de production des animaux. Pour les élevages bovins, la stratégie revient à réduire la ration protéique des aliments de manière globale : ainsi, sans aller jusqu'à des rations déficitaires encore plus efficaces, réduire la proportion d'azote total (MAT : matière azotée totale) dans la ration de 20 à 15 % entraîne une diminution de l'azote excrété dans les urines d'environ 66 % (Castillo *et al.*, 2000). L'ajustement de la ration au stade physiologique et au niveau de croissance de l'animal permettrait de gagner en efficacité, mais cette ration est délicate à piloter, surtout pour les élevages bovins où des animaux de stades et donc de besoins

différents sont mélangés. Cette stratégie n'est pas sans risque sur les résultats d'exploitation et donc peu utilisée. Le pilotage est encore plus délicat au pâturage, où il est difficile de contrôler les quantités ingérées d'herbe, souvent riche en azote. Pour les élevages porcins, la stratégie est d'ajuster les rations aux besoins, différents selon les stades de croissance des animaux, en vue de limiter le gaspillage : une stratégie biphasé incluant un aliment « croissance » à 16 % de MAT, puis un aliment « finition » à 15 % de MAT par rapport à une alimentation standard avec un seul aliment à 17,5 % de MAT, permet de réduire de 18 % aussi bien l'excrétion d'azote que la volatilisation d'ammoniac (NH_3) dans le bâtiment (Dourmad *et al.*, 2016). Cette stratégie étant bien implantée en France, l'alimentation multiphase permet d'aller plus loin, grâce à l'utilisation successive d'aliments à teneurs en protéines de plus en plus faibles, adaptés aux besoins décroissants des animaux : Lagadec *et al.* (2016) rapportent une réduction supplémentaire de 40 % des émissions d'ammoniac. Pour les élevages de volaille, l'alimentation multiphase est la référence, mais peut être encore intensifiée *via* une augmentation supplémentaire du nombre de phases.

Une autre marge de manœuvre pour augmenter l'efficacité de l'azote ingéré consiste à jouer sur la disponibilité des protéines et sur un équilibre entre les acides aminés, soit en utilisant des matières premières spécifiques, soit en complétant avec des acides aminés de synthèse. L'excrétion d'azote peut ainsi être diminuée de 10 % par pourcent de diminution des protéines dans l'aliment chez les poules.

Ce levier portant sur l'alimentation est donc particulièrement intéressant : il a prouvé son efficacité et concerne tous les composés azotés, quels que soient leurs effets sur l'environnement (NH_3 en premier lieu, mais aussi NO_x , N_2O , et NO_3^-), ainsi que tous les postes de gestion des effluents d'élevage pour ces composés azotés (bâtiments, stockage, épandage), hormis le pâturage évidemment, mais celui-ci représente le poste le moins émissif. Cette stratégie de réduction « à la source » ne nécessite en outre pas d'investissement majeur de type aménagement de bâtiment et peut même générer des économies en raison de la réduction du recours aux intrants azotés par exemple.

Faire évoluer l'activité

Quant au troisième type d'action, il consiste à passer à une pratique alternative moins émettrice. La pratique alternative étant plus extensive, son adoption s'insère dans le cadre assez large d'une évolution technico-économique et sociale délibérée de l'exploitation.

Une réduction notable de la quantité d'azote excrétée par les animaux au bâtiment (l'un des postes les plus émetteurs) peut être obtenue en augmentant le temps de présence des animaux au pâturage quand le contexte climatique le permet. L'azote émis au pâturage est moins sujet aux émissions (infiltration des urines dans le sol, récupération de l'ammoniac par la végétation...) que sur toute la chaîne « bâtiment-stockage-épandage » (Pellerin *et al.*, 2013). Une augmentation de la proportion des surfaces en prairies ainsi qu'une réorganisation du travail au sein de l'exploitation doivent souvent être mises en place pour y arriver. Cette augmentation du temps au pâturage peut conduire cependant, selon les conditions agropédoclimatiques de

l'exploitation, à une augmentation du risque de lessivage du nitrate, et donc être à l'origine d'un transfert de pollution du compartiment « atmosphère » vers le compartiment « eau », qu'il convient d'analyser, parallèlement aux autres enjeux, avant d'opérer une mutation.

Une des alternatives au recours aux intrants azotés de synthèse est l'introduction de légumineuses soit dans la rotation (ce qui nécessite un allongement des rotations), soit en association avec les cultures traditionnelles ou au sein des prairies (Ademe, 2015). Les bactéries vivant en symbiose avec les plantes légumineuses fixent en effet naturellement l'azote atmosphérique (chapitre 2), limitant le recours aux engrais à l'origine des excédents ponctuels d'azote favorables aux émissions. Il faut toutefois prêter attention à la gestion des résidus, souvent riches en azote lors du retournement des couverts pluriannuels.

La volatilisation d'ammoniac peut être aussi réduite en substituant aux engrais azotés de synthèse à fort potentiel de volatilisation (comme c'est le cas de la solution azotée, mais plus encore de l'urée sous forme de granules) un engrais à plus faible potentiel de volatilisation (par exemple le nitrate d'ammonium). Cette différence entre engrais tient à deux aspects : la proportion d'azote sous forme uréique ou ammoniacale (100 % pour l'urée, 75 % pour la solution azotée, 50 % pour l'ammonitrate) et la propension de cet azote à se volatiliser. L'hydrolyse de l'urée s'accompagne de l'alcalinisation du milieu et conduit à des émissions plus élevées qu'en milieu plus acide (chapitres 2 et 6). Cette substitution peut toutefois nécessiter une adaptation du matériel d'épandage ainsi qu'une évolution des approvisionnements en engrais de synthèse.

Des alternatives à l'usage des produits phytopharmaceutiques (PPP) sont également à l'étude, ainsi que synthétisé dans l'ouvrage de Charbonnier *et al.* (2015) présentant les résultats des projets de recherche menés dans le cadre du programme Pesticides du ministère en charge de l'Écologie depuis 1999. Ces alternatives portent sur différents types de solutions, dont la lutte biologique anti-vectorielle, la lutte physique (par exemple, filets pour les vergers...) ou des systèmes agricoles innovants.

Réduire le facteur d'émission

Réduire la surface et le temps de contact avec l'atmosphère

Les émissions varient proportionnellement à la surface et au temps de contact entre l'intrant et l'atmosphère. Ainsi, toute pratique permettant de réduire soit l'un, soit l'autre, soit les deux a des chances d'être une pratique d'abattement efficace, et ce pour l'ensemble des composés, y compris les COVb. L'intérêt de la mise en œuvre de telles pratiques, outre la réduction des émissions de polluants vers l'atmosphère et donc de leurs impacts, se double de la réduction des nuisances olfactives dans les cas spécifiques de la gestion des effluents d'élevage et de la valorisation agronomique des produits résiduels organiques (PRO).

Au bâtiment, les surfaces sur lesquelles les déjections s'accumulent (bâtiment lui-même, en particulier pour les bovins et les volailles, préfosse pour les lisiers de

porcins, bovins et canards) représentent des surfaces plus grandes que celles du stockage extérieur. L'idée est donc d'évacuer plus fréquemment et plus efficacement les déjections présentes dans les bâtiments d'élevage vers les zones de stockage, quel que soit le mode d'évacuation (évacuation gravitaire, raclage plusieurs fois par jour, évacuation par flushing avec de l'eau). Par exemple, Guingand (2000) a montré que l'évacuation des effluents d'un élevage de porcs charcutiers tous les 15 jours permettait de réduire de près de 20 % les émissions d'ammoniac par rapport à une évacuation uniquement en fin de bande. Pour ce qui est du raclage des sols des bâtiments, pour que l'augmentation de la fréquence soit efficace, il faut passer d'un ou deux à six ou huit raclages quotidiens. Pour les élevages en cages concernant typiquement les poules pondeuses, une réduction très forte des émissions d'ammoniac au bâtiment (allant de 50 à 80 %) a été obtenue en instaurant une évacuation rapide des fèces au moyen de tapis de collecte et d'évacuation. Cependant, si le raclage n'est pas réalisé de manière très efficace (si le sol n'est pas assez lisse, ou en raison par exemple de la présence de paille), une fréquence élevée de raclage peut conduire à l'effet inverse. Ce constat peut être une des raisons pour lesquelles le raclage n'apparaît pas toujours comme efficace en élevage bovin.

Ces évacuations plus fréquentes réduisent la durée de stockage des déjections dans les bâtiments d'élevage, et donc de contact avec l'air sur des surfaces relativement grandes, mais conduisent à une augmentation des durées et des volumes de stockage en extérieur du bâtiment, qu'il convient d'autant plus de maîtriser au mieux.

Pour le stockage en extérieur, la voie de réduction des émissions la plus efficace est la couverture, plus spécifiquement mise en œuvre pour les filières lisiers et particulièrement efficace pour l'ammoniac, mais aussi pour les autres composés azotés et le méthane. Les couvertures peuvent être naturelles, le lisier formant une croûte en surface lorsque les fosses ne sont pas brassées, en particulier si les animaux ont été élevés en présence de litière : cette barrière physique aux émissions conduit bien à une réduction des émissions de méthane et d'ammoniac (réduction d'environ 40 %), alors qu'elle aurait une action plutôt négative pour les émissions de N_2O , en comparaison à un lisier stocké sans croûte. L'utilisation de couvertures artificielles (type couvertures en chapiteau par exemple, mais aussi couvertures flottantes en matériaux divers) permet d'abattre les émissions d'ammoniac de 60 à 80 % selon les sources. Elle permet également de limiter la dilution des effluents par les eaux de pluie ainsi que la diffusion des odeurs. En outre, une pratique se développe aujourd'hui de transformer toute fosse de stockage de lisiers ou de digestats dans des digesteurs de production de biogaz, et de récupérer le biogaz pour produire de l'énergie.

C'est au champ que les techniques mises en œuvre pour réduire le temps et la durée de contact entre le composé et l'atmosphère sont les plus pratiquées et parmi les plus efficaces. Elles sont valables pour les PRO comme pour les engrais de synthèse. Pour les PRO, sont considérés sur le même plan tous les produits, quelle que soit leur origine : élevage (lisiers, purin, fumiers, composts animaux), mais aussi zones résidentielles (boues de station d'épuration, composts de déchets municipaux, composts de déchets verts) et agro-industrielles (vinasses d'usines de déshydratation de la luzerne, boues, eaux usées d'usines sucrières).

Une première technique consiste à incorporer directement dans le sol les substrats contenant les composés d'intérêt. Dans le cas des produits liquides, on parle

d'injection, qui peut être plus ou moins profonde. Cette pratique se développe aussi pour les engrais minéraux, en particulier avant l'implantation des cultures de printemps : on parle d'apport localisé pour les granules. Dans les deux cas, cette technique est très efficace pour l'ammoniac, pouvant réduire les émissions à seulement quelques pourcents de ce qu'elles auraient été pour un apport classique en surface. Dans la pratique courante, les réductions rapportées sont plutôt de l'ordre de 70-90% pour les lisiers (Langevin *et al.*, 2015), l'efficacité de la technique dépendant de la qualité de la fermeture du sillon. Les émissions de N_2O , quant à elles, peuvent ne pas être impactées, mais si l'injection est pratiquée sur des sols très humides, elles peuvent en revanche être significativement amplifiées (chapitre 2).

Une autre solution consiste à réduire la surface de contact au moment de l'apport, en pratiquant un apport en bande avec des pendillards pour les PRO liquides : environ un tiers de la surface est couvert par le produit, et la réduction des émissions de NH_3 est en moyenne de 30 % à 60 % (Langevin *et al.*, 2015) par rapport à des apports en plein pratiqués avec le système traditionnel à buse-palette. Si l'apport est opéré sous un couvert végétal, la réduction peut atteindre 80 %, car s'ajoutent alors les effets microclimatiques et l'absorption stomatique.

Enfin, quand l'injection en profondeur n'est pas envisageable, comme dans le cas de beaucoup de PPP, des PRO solides ou pour tous les intrants sur les sols qui ne s'y prêtent pas (trop caillouteux ou trop en pente), une incorporation avec des outils de travail du sol après l'épandage réduit efficacement les émissions. Cette pratique est particulièrement pertinente pour les composés dont les émissions sont liées à des processus purement physico-chimiques comme l'ammoniac et les PPP. Son efficacité est maximisée (baisse des niveaux de volatilisation jusqu'à deux ordres de grandeur) par un délai court entre l'application et l'incorporation (Bedos *et al.*, 2006), ainsi que par la profondeur et l'efficacité de l'incorporation, qui dépendent de l'outil utilisé (par exemple labour à 25 cm, incorporation entre 5 et 15 cm avec les outils à disque ou à dents pour les engrais organiques, binage à 2-3 cm pour les engrais minéraux) (Smith *et al.*, 2009).

Une autre pratique consiste à fertiliser peu avant un épisode pluvieux ou à irriguer en post-application : dans ce cas, non seulement le composé est entraîné plus en profondeur dans le sol, mais il est aussi dilué dans la solution de sol, ce qui conduit à de plus faibles concentrations et de plus faibles émissions. La réduction des émissions est d'autant plus efficace que la hauteur de la lame d'eau ou l'intensité et le cumul de l'événement pluvieux sont élevés, et que le délai entre l'application et l'irrigation ou l'événement pluvieux est court (Smith *et al.*, 2009). Cependant, cela augmente les risques de lixiviation et de contamination des eaux de surface.

Pendant le traitement phytosanitaire en lui-même, un certain nombre de solutions sont proposées pour réduire le temps de transfert entre la rampe et la cible des gouttelettes de pulvérisation. Par exemple, l'utilisation de buses antidérive ou la diminution de la hauteur des rampes de pulvérisation permettent de réduire à la fois la dérive et l'éventuelle volatilisation de la matière active (encadré 7.1). Notons dans le même ordre d'idée que, afin de limiter les transferts vers l'atmosphère des poussières de l'enrobage de traitement des semences générées par abrasion, des déflecteurs ont été ajoutés sur les semoirs.

Encadré 7.1. Efficacité de méthodes de limitation des émissions de PPP par dérive.

Jean-Paul Douzals, Irstea

La mesure de la dérive au champ fait immédiatement apparaître l'imprécision de sa définition dans l'espace et le temps en matière de durée d'échantillonnage et de stratégie spatiale d'échantillonnage. Ainsi les protocoles de mesure ont été orientés en fonction des besoins pratiques de gestion du risque selon deux grands principes. Historiquement, la contamination potentielle des eaux de surface est évaluée par l'estimation des dépôts sédimentaires selon un plan horizontal d'interception considérant une certaine distance sous le vent. Les récentes préoccupations autour de la contamination de l'air amènent à considérer un protocole plus adapté sous la forme d'un plan vertical d'interception en bordure du champ traité. Si la norme ISO 22866 prévoit ce protocole pour l'interception de particules liquides avec des capteurs passifs (type file PTFE, polytétrafluoroéthylène, diamètre 2 mm), des études ont montré une augmentation des quantités captées par des capteurs actifs (préleveurs actifs) en condition isocinétique.

Au niveau européen, les mesures agroenvironnementales utilisées pour limiter le risque lié à la dérive sont instaurées dans le processus d'autorisation de mise sur le marché du produit et combinent en général des mesures structurelles d'éloignement des applications, l'usage de matériels réputés pour la réduction de la dérive, et des pratiques spécifiques d'application. Le premier niveau correspond aux zones tampons (appelées zones non traitées, ZNT). Celles-ci ont été adoptées en 2006 en France ; elles sont de 5 m de large le long des cours d'eau permanents et correspondent à une mesure structurelle d'aménagement du parcellaire agricole. Ces zones sont en général des bandes enherbées ou des ripisylves qui permettent une réduction du risque de contamination des eaux de surface estimée à 66 % par les modèles de gestion. Par analogie, des zones non traitées sont définies pour la protection de plantes et de cultures non cibles adjacentes et les arthropodes. Enfin, l'utilisation de filets brise-vent, paragrêle ou *insect-proof* en culture fruitière est réputée conférer un niveau équivalent de limitation du risque dans certains pays européens. Les distances de non-traitement pour la protection d'établissements hébergeant des personnes sensibles sont régies quant à elles en France à l'échelle locale par des arrêtés préfectoraux. Le deuxième niveau de mesures de gestion correspond à l'utilisation obligatoire de moyens matériels comme des buses à dérive limitée, des appareils à pulvérisation confinée, etc., qui confèrent également une réduction de 66 % du risque par rapport à une situation de référence. L'usage de ces matériels est rendu obligatoire lors de l'application de tout produit disposant d'une ZNT supérieure à 5 m et qui est appliqué jusqu'à 5 m le long des cours d'eau. Une liste positive de matériels est publiée périodiquement par le *Bulletin officiel* du ministère de l'Agriculture au titre de l'arrêté du 4 mai 2017, annexe 3. Dans d'autres pays européens, le niveau de limitation du risque pour le facteur matériel peut varier de 50 à 95 %. Enfin, le troisième niveau de mesures de gestion correspond à l'application systématique des pratiques d'application vertueuses, notamment en matière de gestion réduite de l'assistance d'air dans les rangs de bordure, de réduction de la vitesse d'avancement ou de réduction de la hauteur des rampes.

Réduire la concentration

Le niveau de concentration du composé en phase gazeuse à l'interface entre la source et l'atmosphère est aussi évidemment un déterminant fort de l'intensité des

émissions. Pour les limiter, plusieurs solutions sont efficaces : par dilution comme évoqué ci-dessus, par piégeage du composé cible, par déplacement des équilibres physiques ou physico-chimiques vers d'autres formes moins volatiles, en ralentissant des réactions biologiques le produisant ou en favorisant d'autres réactions consommant le composé en question ou son précurseur.

En élevage bovin, une pratique vise à modifier les réactions biologiques des enchaînements réactionnels conduisant à la production de méthane entérique pour produire d'autres espèces chimiques moins polluantes : la stratégie alimentaire consiste à remplacer pour partie les glucides de la ration par des lipides. Les glucides sont en effet producteurs d'hydrogène, et donc de méthane, ce qui n'est pas le cas des lipides. La réduction est efficace et durable, et renforcée par l'action négative des lipides sur les protozoaires du rumen (Doreau et Ferlay, 1995) : elle est de 4 % par point de lipides ajouté en substitution à des glucides (Doreau *et al.*, 2011). Le même effet est obtenu par ajout d'additifs, type nitrate de calcium, en association ou non avec les lipides (Lee et Beauchemin, 2014) : le nitrate de la ration se transforme en nitrite puis en ammoniac dans le rumen, et utilise ainsi l'hydrogène.

En élevage porcin, des brumisations peuvent être pratiquées grâce à l'installation de rampes avec des buses adaptées pour entraîner la sédimentation des poussières, émises en particulier pendant les phases productrices de particules comme le paillage, le curage ou le ramassage. Les concentrations de poussières et d'ammoniac dans l'air du bâtiment sont réduites, ainsi que les émissions vers l'extérieur. Une efficacité de réduction de 14 % à 46 % pour les particules et de 22 % à 30 % pour les émissions de NH_3 est obtenue pour les bâtiments porcins. De la même manière, pour limiter la dispersion de l'ammoniac et des particules produits dans les bâtiments d'élevage, des systèmes de laveurs d'air peuvent être disposés au niveau des sorties d'air pour les bâtiments qui s'y prêtent : ça peut être le cas en élevage porcin et avicole, mais rarement en élevage bovin, où les bâtiments sont généralement ventilés naturellement. Le lavage d'air permet de réduire de 40 % à 90 % les émissions de NH_3 dans les bâtiments d'élevage porcins. Le lavage est encore plus efficace quand l'eau est remplacée par une solution acidifiée qui piège plus efficacement les composés alcalins comme l'ammoniac : la réduction obtenue est de 70 % à 90 % pour les émissions d'ammoniac dans les deux types d'élevage, et, pour les particules, de 60 % à 80 % dans les bâtiments d'élevage porcins et d'environ 35 % dans les bâtiments de volailles.

Une autre stratégie très déterminante dans la maîtrise, ou plutôt la modulation d'une partie des émissions vers l'atmosphère relève de choix structurels en amont, ou consiste à contrôler plus ou moins finement les conditions ambiantes de l'élevage et les modes de stockage. En effet, selon les modes de conduite des élevages (en particulier choix du type de sol et utilisation ou non de litière) et les conditions d'ambiance (température, humidité en particulier), certaines réactions ou équilibres sont favorisés au détriment d'autres. Par exemple, en élevage porcin, sur litières bien conduites, les émissions d'ammoniac peuvent être plus faibles que pour des élevages sur caillebotis, et celles de N_2O (et de N_2) plus élevées (Corpen, 2003), alors que le contraire est observé dans le cas des litières humides (Dourmad *et al.*, 2016). Dans le même ordre d'idée, l'augmentation de l'apport en paille en élevage de porcins logés sur de la paille favorise l'immobilisation de l'azote ammoniacal

par les micro-organismes, réduisant la disponibilité en NH_3 . Notons qu'en outre, la paille peut jouer le rôle de barrière entre l'urine et l'air, ce qui limite aussi la volatilisation. Dans le cas des volailles, les émissions d'ammoniac sont réduites en maintenant le taux d'humidité de la litière à un faible niveau soit en ajoutant des substrats carbonés de manière raisonnée, soit en installant des systèmes d'abreuvement anti-fuite anti-gaspillage (réduction de 20 à 30 %), soit en mettant en place un système d'accélération du séchage de la litière (réduction de 40 à 60 %). Les émissions de méthane sont réduites conjointement. Pour les élevages en cages où une évacuation rapide des fèces est pratiquée, comme c'est le cas général en France, l'ajout d'un système de pré-séchage en bâtiment des fientes récoltées permet une nouvelle réduction de 30 à 40 %. L'action est prolongée au stockage, où un séchage rapide peut être obtenu en séchoir extérieur si les fientes sont disposées en fines couches et ventilées.

La séparation de phase des effluents, d'autant plus efficace pour réduire les émissions d'ammoniac et des autres composés azotés qu'elle est précoce, relève un peu du même type d'action : la séparation de l'urine et des fèces permet de limiter l'hydrolyse de l'urée de l'urine et ainsi la production d'azote minéral, en particulier d'ammoniac. En effet, l'uréase, l'enzyme responsable de cette dégradation, est produite dans les fèces. Ainsi, si les évacuations présentées précédemment sont assorties d'une séparation de phase, l'efficacité est augmentée : c'est le cas avec certains types de racleurs, comme les tapis dentelés avec sangles de raclage, ou certains types de sols, comme les sols avec une légère pente transversale et une gouttière centrale de récupération des liquides. Dans ce dernier cas, en élevage porcin, des réductions des émissions d'ammoniac de 40 % ont été mesurées.

Au stockage, une pratique en élevage porcin consiste à traiter les lisiers par le processus biologique de nitrification-dénitrification : une partie de l'azote ammoniacal est ainsi convertie en azote atmosphérique N_2 (chapitre 2), permettant une réduction des émissions aussi bien au stockage (jusqu'à 70 %) qu'à l'épandage.

Le déplacement des équilibres vers les formes non volatiles est spécifique de l'ammoniac : en conditions acides, l'équilibre de dissociation entre l'ion ammonium et l'ammoniac en solution aqueuse est déplacé vers la forme ammonium, non volatile. En élevage de poules pondeuses, la baisse du pH est obtenue par ajout de sulfate de calcium dans l'aliment : à un taux de 6,9 %, il entraîne une réduction de 39 % des émissions d'ammoniac et de 17 % des émissions de méthane (Wu-Haan *et al.*, 2007). En élevage de porcs charcutiers, l'acidification des urines est pratiquée en phase de croissance ou de finition par incorporation d'acide benzoïque ($\text{C}_7\text{H}_6\text{O}_2$) dans l'alimentation : à un taux de 1 %, une réduction de 20 % des émissions de NH_3 est obtenue au bâtiment, mais cette dernière ne croît pas au-delà. Une autre pratique, utilisée uniquement dans le nord de l'Europe (Danemark, Allemagne...), consiste à acidifier le lisier de manière très conséquente (pH de 4-5) par ajout d'acide sulfurique aux différents stades, bâtiment, stockage et épandage. Si le pH est maintenu en dessous de 6, il engendre par exemple une baisse des émissions de NH_3 de 60 % au stockage. Cependant, si l'acidification est pratiquée en bâtiment, en raison de son fort pouvoir tampon, le lisier évacué et stocké en fosse extérieure a un pH aux environs de 7, et la réduction n'atteint pas les niveaux escomptés par la suite.

Conduire une approche intégrée multipostes et multicomposés

Un certain nombre d'actions sont donc d'ores et déjà engagées par les filières de l'élevage et des cultures pour mettre en œuvre sur le terrain les solutions techniques disponibles. Mais toutes ne présentent pas le même potentiel de réduction et, comme elles sont développées pour atténuer les émissions d'un composé à un poste spécifique, leur efficacité est généralement évaluée à l'échelle du composé et du poste concerné.

Cependant, il y a de fortes interdépendances entre les différents postes au sein d'une même exploitation, et la mise en œuvre d'une pratique pour réduire les émissions sur un poste peut engendrer une augmentation des émissions sur un autre. La maîtrise des émissions est particulièrement complexe pour les systèmes de production animale, car elle concerne toutes les étapes de gestion des effluents (bâtiments, stockage, épandage, pâturage). L'efficacité d'une pratique vertueuse à l'échelle de l'élevage peut être réduite par l'absence de bonnes pratiques sur les postes en aval. C'est particulièrement le cas pour l'ammoniac : une couverture de fosses à lisier conserve l'azote, mais produit un lisier plus riche en azote ammoniacal ayant un potentiel de volatilisation à l'épandage plus élevé. Cela souligne l'importance de cette dernière étape. La combinaison de stratégies, techniques et/ou conduites visant à réduire les émissions gazeuses doit ainsi être envisagée à l'échelle de l'ensemble de la gestion des effluents.

Il y a aussi de fortes interdépendances des processus à l'origine des émissions de ces composés avec les processus impliquant d'autres composés. Les leviers d'action mis en place pour réduire certaines émissions peuvent modifier les processus biologiques et physico-chimiques à l'origine d'émissions d'autres formes chimiques vers d'autres compartiments de l'environnement (eau, sol) de manière positive ou négative. On parle de transfert de pollution avec transfert d'impact. Ces transferts de pollution peuvent s'observer au sein du cycle d'un même élément. Par exemple, pour l'azote, certaines techniques de réduction des émissions d'ammoniac au champ induisent des augmentations des émissions de protoxyde d'azote, et donc de l'impact sur le réchauffement climatique ; la lixiviation du nitrate peut aussi être favorisée, avec ses conséquences négatives sur la qualité de l'eau. Ces transferts de pollution peuvent être encore plus complexes : en particulier, la réduction du travail du sol comprend un ensemble de pratiques qui permettent de réduire les émissions de particules au champ ; mais comme ces pratiques peuvent poser des problèmes de contrôle des adventices, les agriculteurs peuvent avoir recours à plus de PPP.

Heureusement, dans certains cas, des leviers mobilisés pour un poste et un composé sont efficaces pour un autre poste et/ou un autre composé ; on a vu par exemple que les stratégies mises en œuvre pour réduire les émissions d'ammoniac au bâtiment et au stockage étaient souvent aussi efficaces pour le méthane. D'autres permettent de réduire les émissions de l'ensemble des composés azotés, sur plusieurs postes, voire sur l'ensemble des postes.

C'est ainsi l'ensemble de la chaîne qu'il faut maîtriser pour éviter les transferts de pollution entre postes et entre milieux (eau, air, sol) et limiter efficacement les pertes. C'est pourquoi l'évaluation des performances environnementales des pratiques de réduction doit être réalisée de manière intégrée (en termes d'échelle et de critères

d'évaluation) (Espagnol *et al.*, 2015). Pour que cette évaluation soit complète, les observations doivent être réalisées sur le terrain et être récurrentes de manière à suivre l'évolution des performances dans le temps.

En outre, il est important de noter que les stratégies de réduction des émissions s'insèrent dans une gestion globale de l'exploitation agricole, qui intègre des critères organisationnels, économiques, mais aussi sociaux. Source de pollution de l'air, la volatilisation de l'ammoniac est également pour l'agriculteur une perte d'efficacité de la fertilisation ; mieux gérer l'azote lui permet de mieux produire. D'une manière générale, optimiser les intrants (fertilisants, PPP, énergie, alimentation animale) permet de réduire l'ensemble des pertes vers l'environnement, tout en limitant la vulnérabilité des exploitations à l'évolution des prix. Des leviers sont mobilisés depuis longtemps pour réduire les émissions d'ammoniac et de particules en bâtiment d'élevage, non pas dans un souci de qualité de l'air extérieur, mais bien pour des raisons de salubrité de l'air à l'intérieur du bâtiment et de bien-être animal.

►► Leviers d'action à des niveaux d'intégration supérieurs

On vient de voir que les mesures aux échelles de la parcelle et de l'exploitation agricoles visent essentiellement à réduire les émissions de polluants. Le chapitre 3 nous a montré qu'il était utile, voire indispensable de replacer les processus et les actions élémentaires vis-à-vis du cycle des polluants dans un contexte plus large. En effet, selon les caractéristiques du territoire, les émissions peuvent être captées par les écosystèmes naturels, forestiers ou agricoles voisins, et donc diminuer les quantités nettes contaminant l'atmosphère. Cela dépend notamment de l'organisation du paysage et de l'organisation des opérations agricoles à l'échelle des exploitations. Le dépôt des polluants sur les écosystèmes voisins risque de provoquer des impacts d'autant plus importants que ces écosystèmes sont sensibles à ces apports non souhaités. De plus, les espaces ruraux présentent une grande diversité d'écosystèmes et de parcelles agricoles qui n'émettent pas toutes des polluants en même temps. Alors que des excédents de concentrations peuvent être observés ponctuellement sur une parcelle, suite par exemple à une application de fertilisants, leur dilution dans un paysage où coexistent des zones moins émettrices diminue leur impact potentiel.

Aménager les activités agricoles dans les espaces ruraux

En raison de leur surface aérienne développée et de l'affinité de la végétation pour certains polluants, les couverts végétaux proches d'une source peuvent récupérer des quantités significatives de polluants, les soustrayant ainsi à l'atmosphère (Loubet *et al.*, 2009). Cette recapture est d'autant plus efficace que le couvert a un développement vertical important (forêts, haies) et une surface aérienne développée, donc un indice foliaire élevé. Cet effet est augmenté par la position des sources agricoles à proximité de la surface : surface du sol et de la végétation pour les applications d'engrais minéraux ou organiques, de un à quelques mètres du sol pour les applications de PPP ou les évacuations d'air des bâtiments d'élevage.

Récupérer les polluants en aménageant les alentours d'une source agricole

Loubet *et al.* (2001 ; 2009) ont montré qu'une ceinture d'arbres autour d'un bâtiment d'élevage pouvait capter jusqu'à 10 % de l'ammoniac émis par celui-ci. Plus récemment, Bealey *et al.* (2014) ont évalué que cette quantité pouvait atteindre 20 % pour un bâtiment d'élevage et 45 % pour un élevage en sous-bois. Les valeurs varient principalement selon les conditions micrométéorologiques, notamment la vitesse du vent et la stabilité de l'atmosphère, et selon le développement vertical de la ceinture, sa largeur et le niveau de nutrition azotée des arbres (un point de compensation élevé, correspondant à des concentrations internes en ammonium fortes, limite la capture). La figure 7.1 issue de Fowler *et al.* (1998) montre que les dépôts et les concentrations sont élevés à proximité (15 m) du bâtiment, mais décroissent rapidement avec la distance (ils sont divisés par 10 à 270 m du bâtiment). Cette étude a aussi permis d'illustrer l'importance des dépôts, qui atteignent plusieurs dizaines de $\text{kg NH}_3 \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$ sur la ceinture d'arbres. Un travail de modélisation a évalué que la ceinture d'arbres a récupéré un peu plus de 3 % de l'ammoniac émis par le bâtiment. Cette récupération est significative, mais elle peut être limitée par des effets de saturation : les arbres les plus proches du bâtiment recevant des dépôts importants, leur point de compensation peut devenir élevé et leur cuticule saturée en ammoniac, avec un pH élevé, défavorable au dépôt. Bealey *et al.* (2016) ont évalué l'effet d'aménagements locaux sur les bilans nationaux d'azote réactif en Grande-Bretagne. Planter des arbres autour d'environ 20 % des exploitations intensives permettrait de réduire d'environ 2 % les émissions nationales et les dépôts humides consécutifs, et réduirait de la même quantité les émissions sortant du territoire.

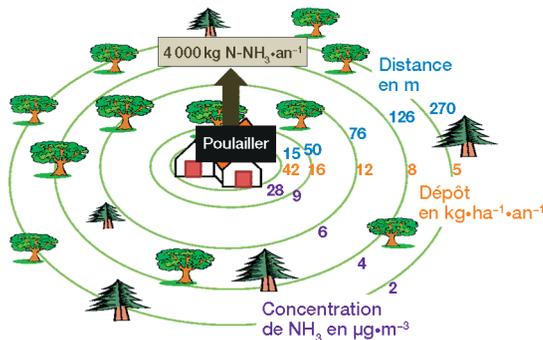


Figure 7.1. Variations spatiales de concentrations en ammoniac et dépôts d'ammoniac dans un rayon de 270 m autour d'un poulailler industriel (d'après Fowler *et al.*, 1998).

Ce type d'aménagement présente donc une certaine efficacité pour récupérer et notamment protéger des écosystèmes sensibles (Hicks *et al.*, 2011) proches de zones agricoles ou de bâtiments d'élevage. Cependant, ces dépôts provoquent des impacts sur la ceinture arborée elle-même. Pitcairn *et al.* (1998) ont ainsi pu montrer un effet sur la biodiversité au sein de la ceinture arborée, les espèces nitrophiles voyant leur densité augmenter à proximité du bâtiment au détriment des autres espèces. De plus, ce genre d'aménagement occupe un espace non négligeable, puisque ces

ceintures doivent s'étendre sur plusieurs dizaines de mètres pour être efficaces. Mais elles peuvent fournir d'autres services environnementaux : agrément paysager, atténuation du bruit et des odeurs, habitats pour la faune.

De nombreuses analyses en micrométéorologie montrent que des haies ou des brise-vent ont également une efficacité certaine pour intercepter des particules déplacées par le vent (Bouvet *et al.*, 2007 ; Raupach *et al.*, 2001). Cet effet peut être utilisé pour limiter la dérive des gouttelettes de pulvérisation de PPP au-delà de la parcelle sur laquelle ils ont été appliqués. La plantation de haies brise-vent dans les vergers peut donc contribuer à une baisse significative de la dérive des PPP (tableau 7.1) : un brise-vent en pleine feuillaison maximise l'interception des composés (60-85 %) comparativement à une haie sans feuillage ou en développement (10-50 %).

Tableau 7.1. Études portant sur l'efficacité des haies brise-vent pour diminuer la dérive (d'après Vézina et Talbot, 2011).

Étude	Type de culture	Type de brise-vent	Diminution de la dérive	Pays
Lazzaro <i>et al.</i> , 2008	Non spécifié	Platane et autres feuillus Hauteur : 7-8 m	Réduction sur les 12 premiers mètres en aval de la haie : > 80 %	Italie
Wenneker <i>et al.</i> , 2005	Pommiers	Aulne cordé, conifère et saule Hauteur : 4-5 m	Réduction sur les 8 premiers mètres : – 10-20 % (feuillage absent) – 60-85 % (pleine feuillaison)	Pays-Bas
Richardson <i>et al.</i> , 2004	Pommiers	Aulne cordé et aulne blanc Hauteur : 5-6 m	Réduction sur les 3 premiers mètres : – 50 % (feuillage en développement) – 80 % (pleine feuillaison)	Grande-Bretagne

De tels dispositifs devraient également être efficaces pour limiter le transfert consécutif à la volatilisation des PPP depuis le sol ou la plante selon les mêmes modalités que pour le cas de l'ammoniac. Les premières évaluations ont été réalisées, essentiellement par modélisation, et devraient être complétées d'une part par la prise en compte de processus supplémentaires dans les modèles tels que le dépôt des composés sur la haie, par exemple, et d'autre part par l'acquisition de jeux de données (Bedos *et al.*, 2016).

Modifier la mosaïque paysagère pour maximiser la recapture locale de polluants

La capture de polluants par les écosystèmes voisins étant maximale aux transitions entre écosystèmes, on s'attend à ce que la recapture soit plus grande dans les paysages morcelés dans lesquels les lignes d'interfaces entre parcelles sont plus présentes et les zones de sources et de puits étroitement imbriquées. Ceci peut être montré par modélisation, mais il n'est pas envisageable d'en faire la preuve

expérimentale au-delà d'un motif élémentaire de paysage (par exemple de l'amont à l'aval d'une haie). Un remodelage des paysages agricoles pour cette seule motivation peut paraître hors de propos, mais on peut souligner que cette solution rejoint par bien des aspects les perspectives d'évolution de l'agriculture vers la diversification des cultures ou la réassociation entre élevage et culture, qui toutes mènent à un plus fort mélange entre sources et puits. Elle représente donc un argument de plus pour aller vers des paysages multifonctionnels.

Jouer sur la localisation des sources pour protéger des écosystèmes sensibles

Comme cela a été vu au chapitre 2, les dépôts secs de polluants sont en grande partie déterminés par la concentration du polluant dans l'air au niveau de l'écosystème sensible (Bobbink et Hettelingh, 2011 ; Hicks *et al.*, 2011). Comme vu précédemment, des aménagements tels que des ceintures arborées peuvent diminuer les concentrations au-dessus d'une zone sensible, d'une part en capturant une partie des polluants émis, d'autre part en augmentant la turbulence atmosphérique, ce qui fait baisser les concentrations près de la surface en aval de la zone arborée. Mais le premier facteur permettant de diminuer les concentrations est de jouer sur la distance de la source à la zone sensible. L'idée est donc ici de positionner les sources potentiellement importantes telles que des bâtiments d'élevage contenant un grand nombre d'animaux de façon à respecter les niveaux critiques pour les écosystèmes concernés. Par exemple, Dragosits *et al.* (2006) ont modélisé l'effet que pourrait engendrer l'éloignement d'un poulailler « industriel » d'une zone naturelle protégée. La figure 7.2 montre l'efficacité d'une telle option, qui permet de diminuer jusqu'à $100 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ les dépôts dans la zone protégée.

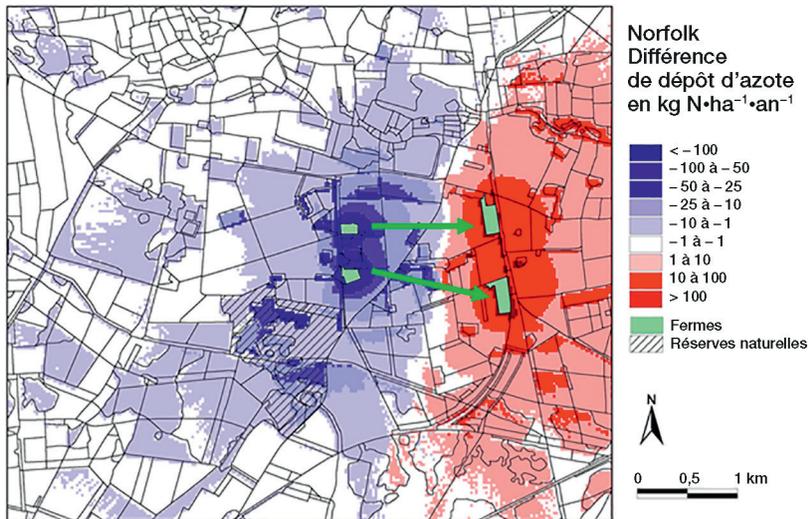


Figure 7.2. Changement dans les dépôts secs d'ammoniac calculés en déplaçant un poulailler situé à proximité d'une zone naturelle protégée (zone hachurée) à une plus grande distance de celle-ci (environ 1,5 km vers l'est) (source : Centre of Ecology and Hydrology, Edinburgh, UK ; d'après Dragosits *et al.*, 2006).

Diminuer les pics d'émissions à l'échelle de territoires

Les risques sanitaires et écotoxicologiques en termes de pollution de l'air sont liés aux concentrations des polluants dans l'atmosphère. En effet, à basse concentration en polluants, les organismes ont généralement la capacité de métaboliser les polluants ou d'activer des mécanismes de détoxification. Une manière efficace de limiter les impacts est donc de répartir au mieux les émissions dans le temps et dans l'espace pour éviter des pics de concentration.

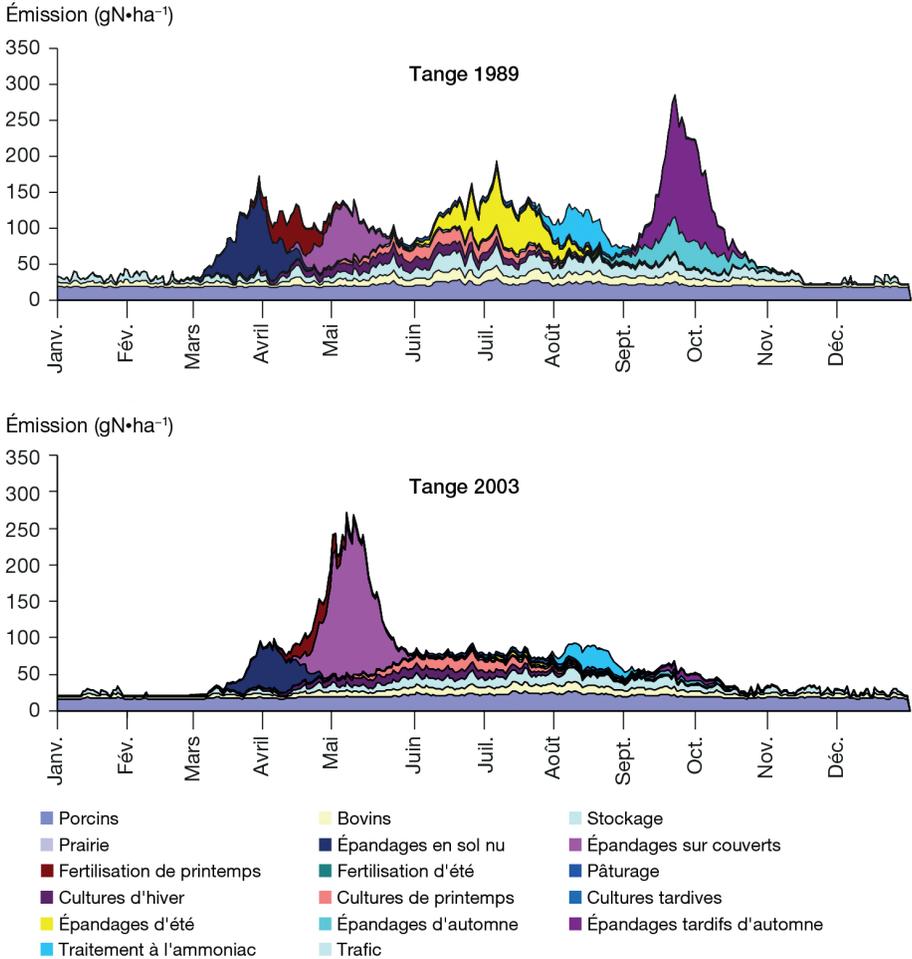


Figure 7.3. Variations saisonnières des émissions d'ammoniac modélisées à Tange (près d'Aarhus) au Danemark en 1989 et en 2003. La différence entre les deux années résulte d'une évolution de la législation sur l'épandage des effluents d'élevage (d'après Hertel *et al.*, 2006).

À ce titre, le regroupement de productions similaires dans certaines régions peut être très préjudiciable. Deux exemples sont particulièrement significatifs : la concentration des activités d'élevage dans l'ouest de la France depuis la seconde moitié du

xx^e siècle et les zones de vignoble, regroupées dans différentes zones d'appellation. Dans le premier cas, les agroécosystèmes proches des installations d'élevage n'ont pas la capacité d'absorber les fortes émissions d'ammoniac, alors que cette absorption serait plus efficace pour des émissions plus modérées. Toutefois, l'origine de ces concentrations d'activités répond à des critères indépendants de la qualité de l'air : logiques de développement régional et d'efficacité économique de filières pour les régions d'élevage, logique d'appellation pour les vignobles. Dans les deux cas se superpose une logique liée aux potentialités climatiques favorables à ces productions. Même si c'est sans doute une perspective assez lointaine aujourd'hui, on peut souligner que les critères liés à la pollution de l'air rejoignent les questions qui sont en débat sur la déconcentration des activités agricoles, l'association agriculture-élevage et la diversification des productions à l'échelle régionale.

De la même manière, une meilleure répartition des apports d'intrants au cours du cycle annuel permettrait bien souvent de diminuer l'ampleur des pics d'émission. Une telle évaluation a été faite au Danemark (Hertel *et al.*, 2006). La figure 7.3, issue de ces travaux, montre qu'une interdiction des épandages des effluents d'élevage à l'automne pour limiter la lixiviation de nitrate pendant l'hiver a entraîné un report des épandages au printemps, la quantité d'effluents produite annuellement restant approximativement la même pour les deux années.

Des solutions au cas par cas dans un contexte plus large

Pour l'ensemble de ces méthodes jouant sur l'aménagement spatial, les acteurs sont confrontés à la complexité des paysages qui amène à considérer non seulement le système étudié (haies, ceintures arborées), mais également tout le paysage alentour. Cela demande de prendre en compte les interactions entre le système de production et son environnement naturel et anthropique, dans une perspective d'action à long terme. Les solutions doivent donc se raisonner au cas par cas, avec des outils d'analyse pertinents. Les questions posées par la qualité de l'air prises isolément ne justifient pas leur mise en œuvre en tant que telle, mais on a pu voir qu'elles rejoignent par bien des aspects les évolutions envisagées vers une agriculture plus respectueuse de l'environnement.

» Vision croisée des acteurs agricoles et de la société civile sur l'agriculture et la qualité de l'air

Dans la phase de mutation forte de l'agriculture au milieu du xx^e siècle, le monde agricole a bénéficié de l'image positive associée au progrès technique et à un contrat moral avec la société pour assurer la production alimentaire. Dans l'article « 50 ans qui ont changé l'agriculture française », les auteurs rappellent qu'« alors que le nombre des actifs agricoles a été divisé par cinq en cinquante ans, la production agricole a plus que doublé en volume. C'est donc que la productivité par homme a été multipliée par plus de dix. La progression de la production agricole a été deux fois plus rapide pour les végétaux que pour les animaux » (Bourgeois et Demotes-Mainard, 2000). Mais,

dès la fin du xx^e siècle, le regard du citadin s'éloigne de l'agriculture, dont les formes dominantes sont perçues par une partie de la société comme peu respectueuses de la nature : distanciation du lien au sol pour certains types d'élevage, moindre attention à la qualité des sols, usage de produits de synthèse (engrais, PPP, produits vétérinaires). Certaines pratiques sont considérées, à l'image des activités industrielles, comme une menace pour la santé et la qualité de l'alimentation. On observe un engouement pour des systèmes de production considérés comme plus vertueux car utilisant moins d'intrants, ou simplement plus proches des consommateurs, avec des acteurs plus visibles ou encore une modification des régimes alimentaires (par exemple cas des AMAP, Associations pour le maintien d'une agriculture paysanne, image du « bio », diminution de la consommation de viande, circuits de proximité). Ces systèmes émettent souvent moins de PPP vers l'atmosphère, car ils n'en utilisent pas ou peu, mais le bilan est moins évident pour les composés azotés, notamment en raison de l'utilisation importante de matières organiques d'origine animale ou urbaine (composts, lisier, fumiers, engrais organiques élaborés) pour la fertilisation des cultures.

Paradoxalement, si le citadin tend à prendre ses distances avec un monde agricole dont les générations antérieures étaient issues, la ville a tendance à se rapprocher de la campagne. Les zones d'influence des villes s'étendent et les limites de la ville deviennent de plus en plus floues, créant ainsi des franges urbaines dans lesquelles l'imbrication entre la ville et la campagne est étroite. Si les espaces ruraux restent le lieu des activités agricoles, la population qui y réside et les activités économiques qui s'y tiennent dépassent largement le cadre de celles-ci : « Il s'agit d'espaces dont la faible densité relative de peuplement laisse une large place aux champs et à la forêt dans l'utilisation des sols, mais pas nécessairement à l'agriculture dans l'économie comme dans la société. » (Lévy et Lussault, 2003).

Dans cet ensemble de questionnements, de rapprochements ou de remises en cause de certaines pratiques agricoles, la pollution de l'air n'est qu'un volet, qui n'est souvent pas très visible, ni très bien identifié, mais qui contribue à renforcer l'image d'une agriculture intensive, industrielle, voire artificielle. Comme on l'a vu précédemment, en matière de qualité de l'air, l'agriculture est particulièrement interrogée par la question des PPP et des composés azotés, devenus l'objet de préoccupations majeures depuis le début du xxi^e siècle. Ces questions s'ajoutent (et parfois se mélangent, induisant une certaine confusion) à une série d'inquiétudes de la société vis-à-vis de l'alimentation et donc de la production agricole : contamination bactérienne, crise de la « vache folle », bien-être animal, avec pour conséquences des craintes plus ou moins fondées et un rejet de certains modes de production. Paradoxalement, cette distance par rapport au monde agricole s'accompagne d'un engouement pour la campagne et d'un réel besoin de proximité vis-à-vis de la « nature ».

Un contexte d'espaces ruraux en forte évolution démographique et économique

Les surfaces utilisées par l'agriculture et l'élevage ont connu leur apogée au début du xix^e siècle, occupant plus de 60 % du territoire. Elles ont ensuite régressé au profit de la forêt qui a réoccupé les déprises agricoles, puis les espaces ruraux ont

été victimes de l'artificialisation massive des sols liée à l'extension des villes et des infrastructures de transport ou de diverses activités économiques. Les surfaces agricoles restent toutefois un élément très structurant du paysage dans les espaces ruraux, mais aussi en zones périurbaines, où se produisent des interactions fortes entre activités variées (secteurs agricole, résidentiel et industriel, zones d'activités économiques et commerciales, voies de transport).

Si, en France en 2012, 80 % de la population habite en ville, la surface urbanisée ne représente que 9 % du territoire, tandis que les sols agricoles occupent plus de 50 % du territoire métropolitain et les espaces naturels et forestiers 40 %. En 2009, l'espace rural rassemblait 14,2 millions d'habitants, soit 22,8 % de la population sur 78,2 % de la superficie du territoire français (hors départements d'outre-mer), avec donc une densité moyenne de population faible (33 habitants au km²). La figure 7.4 illustre la dynamique démographique dans les communes rurales et périurbaines qui sont devenues des zones d'accueil, conséquence d'un mouvement des populations urbaines vers les zones rurales pour diverses raisons (par exemple tertiarisation des emplois, désindustrialisation en périphérie urbaine, coût du logement, qualité de vie, développement des franges urbaines, transports devenus plus faciles).

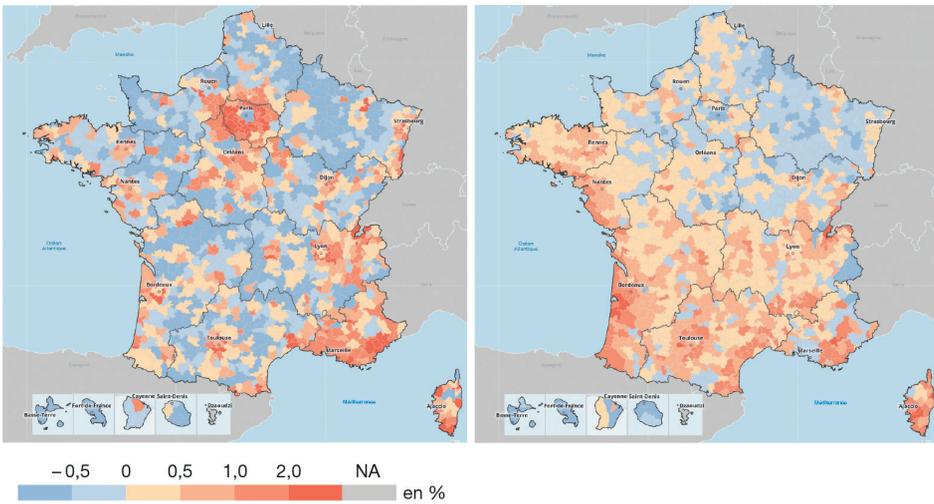


Figure 7.4. Taux d'évolution annuel de la population due au solde migratoire apparent entre 1968 et 1975 (à gauche) et 2010-2015 (à droite) (source Insee, <https://statistiques-locales.insee.fr/#view=map1&c=indicator>).

Ce processus provoque une recomposition sociale de territoires allant de la ville-centre aux espaces périurbains et ruraux. Pierre Pistre, dans sa thèse (2012), conclut de la manière suivante : « Par le poids des migrations de proximité en provenance de pôles urbains et le profil des nouveaux arrivants — des actifs de moins de 50 ans, des couples avec enfants, des cadres et professions intellectuelles supérieures, des professions intermédiaires, des employés, des ouvriers — certaines reprises parmi les campagnes françaises se sont inscrites dans des processus affirmés de périurbanisation ou de rurbanisation plus diffus. D'autres formes de renouveau démographique rural ont été caractérisées par des arrivées plus lointaines et des populations

plus âgées, des retraités, ainsi que des actifs en milieu ou en fin de carrière professionnelle. » Ce dernier peuplement lointain est surtout réservé à des régions touristiques et masque des interrogations sur le devenir de territoires plus isolés. D'où le contraste entre l'arrivée de populations jeunes, attirées par l'espace et la jouissance d'un jardin, et les anciens résidents plus âgés ou les retraités nouvellement installés dans des campagnes attractives.

Quelles conséquences pour l'exposition des populations rurales ?

Dans ce contexte d'accroissement des interfaces entre l'agriculture et les autres secteurs d'activités, une part grandissante de la population est donc confrontée aux externalités positives et négatives des activités agricoles proches, sans en être partie prenante. Au-delà de l'agrément des paysages ruraux et des liens de proximité pour l'alimentation, les habitants des zones rurales ou périurbaines peuvent en effet subir des désagréments locaux liés à des odeurs et à des polluants atmosphériques émis directement par les activités agricoles : applications de PPP, épandages d'effluents d'élevage, de composts, des boues de station d'épuration et de fertilisants minéraux, proximité de bâtiments d'élevage ou d'animaux au champ.

L'augmentation, toutefois encore timide, des mesures de polluants au sein des campagnes permet d'affirmer que, de manière contre-intuitive, l'air pur de la campagne n'est pas toujours au rendez-vous, même si les pollutions mesurées dans l'espace rural présentent généralement un risque moindre pour la santé publique étant donné les concentrations dans l'air relativement basses et la faible densité des populations. Depuis plusieurs décennies, on a découvert et mesuré, *via* le réseau EMEP⁶⁵ à l'échelle de l'Europe ainsi que certaines Aasqa, que la campagne n'était pas épargnée par des polluants venus d'ailleurs. Les campagnes, même les plus reculées, sont affectées par le bruit de fond général de la pollution qui peut persister longtemps dans l'atmosphère. C'est à partir de ces données moyennes que l'Institut de santé publique⁶⁶ a estimé à 8 000 le nombre de décès par an attribuables à la pollution atmosphérique dans l'espace rural français, pour une population estimée, en 2009, à 14,2 millions d'habitants. Les jeunes enfants sont nombreux parmi les habitants des zones périurbaines qui ont fui les miasmes de la ville pour trouver de l'espace et un jardin. Les ruraux sont souvent des personnes âgées qui vieillissent chez elles ou des retraités attirés par les charmes de la campagne. Ces deux catégories de population sont particulièrement vulnérables quand elles sont exposées à des polluants.

Les pollutions auxquelles elles sont exposées sont d'origines et de natures diverses et l'imbrication entre activités agricoles, résidentielles et autres peut avoir une grande importance.

65. EMEP : European Monitoring and Evaluation Program ; voir <https://www.eea.europa.eu/themes/air/links/institutions/emep-european-monitoring-and-evaluation-programme>.

66. <http://invs.santepubliquefrance.fr/Publications-et-outils/Rapports-et-syntheses/Environnement-et-sante/2016>.

Des pollutions d'origine agricole spécifiques

La forte augmentation de l'utilisation d'intrants exogènes en agriculture a fortement accru les émissions de polluants vers l'atmosphère, au premier rang desquels l'ammoniac, en lien avec les pratiques de fertilisation et les activités d'élevage, et les PPP, utilisés principalement pour la protection des cultures. Ce sont les professionnels qui sont, au premier chef, exposés à ces polluants lors de la manipulation des intrants ou dans les bâtiments agricoles. L'air ambiant dans les espaces ruraux est toutefois directement marqué par ces sources.

La contribution des activités agricoles aux émissions de polluants est significative, voire en augmentation relative du fait du contrôle des autres sources pour ce qui concerne les composés acidifiants (NH_3 , NO_x , SO_2). Comme cela a été souligné dans les chapitres 2 et 4, la source agricole se caractérise pour une bonne part par des émissions diffuses de faible valeur unitaire (par exemple émission d'ammoniac ou de produits phytosanitaires après application au champ) et fortement soumises à l'influence des facteurs du milieu (sols, climat), ce qui rend leur évaluation souvent difficile et empreinte de fortes incertitudes. Ce même caractère diffus rend leur perception par les populations voisines souvent faible, sauf lors des épandages ou lorsqu'elles se traduisent par des odeurs (épandage de PRO, par exemple), qui n'ont généralement pas, en tant que telles, d'impacts sanitaires.

Des effets de proximité

Dans le domaine de la qualité de l'air, la proximité aux sources est un déterminant essentiel des concentrations en polluants dans la basse atmosphère et, en conséquence, des expositions et des impacts qui s'ensuivent sur les écosystèmes ou la santé. L'imbrication soulignée précédemment entre zones d'habitation et activités agricoles augmente les risques et peut donc être à l'origine de divers impacts, voire de conflits liés à des applications de PPP ou à des odeurs. Un exemple typique concernant la qualité de l'air est celui des effets possibles d'application de PPP sur la santé des populations riveraines, ou indirectement par le biais de la consommation de produits agricoles exposés à ces applications. On peut penser que ces relations sont exacerbées par l'augmentation des populations d'origine urbaine, confrontées à des contextes et des nuisances auxquelles elles ne sont pas habituées, et sensibilisées à des problématiques telles que les PPP. L'existence de sources plus intenses que celles qu'on pouvait observer précédemment (augmentation de la taille des installations d'élevage, utilisation généralisée des systèmes sur lisier, augmentation du nombre de traitements phytopharmaceutiques) peut également affecter ces relations. Une enquête réalisée au Canada a montré qu'environ 60 % des plaintes à l'encontre des activités agricoles dites « normales » provenaient de populations d'origine urbaine ; elles concernaient en premier lieu les odeurs, puis le bruit et l'usage de « produits chimiques ». Cependant, le code de la construction et de l'habitation indique notamment que le voisin qui se plaint de nuisances dues à des activités agricoles ne peut obtenir réparation dès lors qu'il s'est installé alors que l'exploitation agricole existait déjà et que les activités agricoles s'exercent en conformité avec la législation. L'exploitant agricole qui exerce son activité avant l'arrivée du plaignant est donc en principe protégé par cette législation, mais il

est tenu de respecter les réglementations spécifiques à son activité (par exemple, les règles relatives à l'application de lisiers ou de PPP). De plus, le « voisin » peut demander que des prescriptions techniques plus contraignantes soient appliquées, et le respect de la législation et des recours peuvent empêcher certaines évolutions au sein de l'exploitation.

Des régions particulièrement concernées

Comme pour les questions relatives à la qualité des eaux, les effets sur l'environnement et la santé liés à la qualité de l'air sont renforcés par la concentration géographique de certaines productions agricoles résultant en un effet *hot-spot* : le milieu naturel (incluant les terres agricoles) n'ayant la capacité d'absorber qu'une partie des émissions, cela conduit à des teneurs élevées dans l'atmosphère et des impacts souvent plus marqués dans ces régions ou à leur périphérie. Certaines concentrations des émissions résultent d'activités traditionnelles, comme c'est le cas pour les zones de vignoble dans lesquelles des teneurs en PPP particulièrement élevées ont pu être observées du fait des traitements répétés et simultanés sur les parcelles de vigne. D'autres sont plus récentes, en réponse à l'évolution du secteur agricole et agroalimentaire et aux actions de développement régional. C'est le cas des activités d'élevage, qui se sont largement concentrées dans l'ouest de la France dans la seconde moitié du xx^e siècle, en réponse à des logiques d'organisation de filières, d'économie d'échelle et de développement régional (Peyraud *et al.*, 2014).

Ces concentrations d'activité, avec des utilisations d'intrants souvent fortes, se traduisent par des *hot-spots* régionaux d'émissions vers l'air qui s'ajoutent aux problèmes liés à la qualité des eaux, suscitant ou pouvant amplifier les réactions des acteurs sociaux et des politiques publiques.

Un monde rural et périurbain exposé aux pollutions émises par la ville voisine et par les activités non agricoles

L'espace périurbain, plus densément peuplé, concentre, en plus de ses émissions propres, des émissions variées d'origine rurale et urbaine. La périphérie est souvent le réceptacle de nombreuses installations polluantes que la réglementation ou des commodités d'accès amènent à déplacer à distance des zones de forte densité de population. En plus des activités industrielles localisées en zone rurale et périurbaine, les habitants eux-mêmes contribuent, par leurs choix de vie (habitat, déplacements, chauffage), souvent contraints, à augmenter les niveaux de pollution auxquels ils sont exposés. L'habitat pavillonnaire, dominant dans les espaces périurbains, induit des comportements qui ne sont pas sans conséquence sur les émissions polluantes : le chauffage au bois est très utilisé comme mode de chauffage principal ou comme appoint ; le jardinage est une activité très répandue et induit la manipulation de différents produits de traitement ou fertilisants. Mais surtout, en raison de l'intensité des échanges, ces espaces sont dominés par la voiture, qui règne en maîtresse par opposition à la tendance à la baisse de la mobilité motorisée en ville. Le trafic routier est omniprésent dans cet espace périurbain, avec ses conséquences sur la qualité de l'air liées notamment aux émissions d'oxydes d'azote et de particules carbonées.

Des pollutions liées aux interactions entre les émissions urbaines et rurales

Enfin, l'imbrication plus forte entre les activités agricoles et les autres secteurs d'activité en zone périurbaine et sous des conditions météorologiques anticycloniques, a pour conséquence la concomitance de l'accumulation des précurseurs issus à la fois des sources agricoles (NH_3) et du trafic routier (oxydes d'azote : NO_x), voire de l'industrie (dioxyde de soufre : SO_2). Cela a généré, en France, des épisodes d'ampleur nationale de pollution en particules qui ont sévi aux mois de mars 2014 et 2015. Les fertilisations azotées sont particulièrement concentrées en fin d'hiver début de printemps, en relation avec la reprise de végétation et la croissance des cultures. Le nitrate d'ammonium constitue alors l'élément majeur des niveaux de $\text{PM}_{2,5}$ et PM_{10} mesurés (Walker *et al.*, 2004), confirmant l'acuité des émissions d'ammoniac d'origine agricole à cette période de l'année pour la qualité de l'air.

Le mélange de panaches formés par la pollution urbaine et par les émissions issues du monde agricole favorise aussi des réactions entre NO_x (origine surtout urbaine) et COVb (origine rurale) pour former de l'ozone. Les pointes d'ozone s'étendent sur de vastes surfaces et affectent en particulier les zones périurbaines et rurales (Stella *et al.*, 2016), justifiant la qualification de polluant des zones périurbaines qu'on lui attribue parfois.

Enfin, l'ozone pourrait amplifier le potentiel allergisant des pollens (abondants dans ce milieu périurbain) en augmentant le contenu en allergènes des grains de pollen et l'aptitude de ces allergènes à être libérés dans l'air. En outre, en irritant les voies aériennes et la peau, les polluants facilitent la pénétration des allergènes polliniques dans le corps humain. Il semblerait également qu'au contact de certains polluants gazeux, les grains de pollen puissent éclater et, ainsi fractionnés, contribuer à la formation de particules (Monnier *et al.*, 2015).

Les interrogations de la société sur l'agriculture questionnent aussi la qualité de l'air

Des crises à l'échelle régionale

D'abord concentrées depuis les années 1970-1980 sur les questions relatives à la qualité des eaux, en particulier dans les zones d'élevage (ouest de la France) et de grandes cultures (Bassin parisien), ces inquiétudes se sont étendues, mais de manière plus diffuse car plus difficile à cerner, au cas des émissions de gaz à effet de serre (N_2O par les cultures, CH_4 par l'élevage) puis de la pollution de l'air (NH_3 , PPP). On peut s'attendre à ce que le volet « air », dont l'impact sur les humains est reconnue comme moindre que les autres voies (contact, boisson, alimentation), en particulier pour les PPP et les composés azotés, prenne de l'importance dans les contentieux entre acteurs sociaux (particuliers, associations) et acteurs agricoles, notamment parce qu'il est moins maîtrisable et évitable.

Une autre problématique faisant le lien entre qualité des eaux et de l'air a émergé plus récemment, celle des émissions de H_2S par les algues vertes en Bretagne ou les sargasses aux Antilles (chapitre 3).

Une réglementation précoce, mais un faible impact sur la société

Diverses réglementations s'appliquent à la question de la pollution de l'air, de l'échelle continentale (Europe et périphérie, par exemple) jusqu'à des échelles très locales (impact des installations industrielles sur leur environnement proche) (voir ci-dessous). D'un point de vue historique, en France les activités agricoles, en particulier d'élevage, ont été impliquées dès le début du XIX^e siècle dans des réglementations touchant de plus ou moins près à la qualité de l'air (nuisances olfactives), à une période où les activités d'élevage pouvaient être menées en proximité immédiate des villes, voire en leur sein même. Le décret impérial du 15 octobre 1810 « relatif aux manufactures et ateliers qui répandent une odeur insalubre ou incommode » est à l'origine du cadre juridique qui régit les relations entre les activités économiques et leur environnement. Ce décret fait figurer les porcheries dans la classe des établissements « pour la création desquels il sera nécessaire de se pourvoir de l'autorisation du ministre de l'Intérieur ». Il indique que la cohabitation des intérêts passe par des prescriptions d'éloignement selon trois classes de nuisances (les porcheries étant dans la première, les « vacheries » dans la deuxième, la troisième classe n'impliquant pas de nuisance aux habitations, mais devant « rester soumise à la surveillance de la police »). Ces questions sont aujourd'hui moins aiguës puisque les activités agricoles ne sont plus présentes dans les villes, tout comme la plupart des activités industrielles.

Quelques réglementations pour des effets de proximité

Les sources ponctuelles telles que les bâtiments d'élevage, les épandages d'effluents d'élevage ou les applications de PPP ont pu avoir un retentissement plus grand et un niveau d'acceptabilité moindre pour les riverains, l'une des raisons étant qu'il est ici plus facile de faire un lien entre une pratique ou une activité visible et des nuisances, voire, le cas échéant, des symptômes. Des réglementations ont d'ailleurs été établies pour limiter certaines de ces activités à proximité des zones d'habitation (arrêtés pour les épandages d'effluents d'élevage). La question est également pertinente par rapport à la protection d'écosystèmes sensibles (Hicks *et al.*, 2011). Si la question des épandages d'effluents d'élevage ne semble plus aujourd'hui poser de problèmes sanitaires majeurs autres que des désagréments liés aux odeurs, la question des applications de PPP à proximité des zones d'habitation a fortement émergé dans le débat public dans les années 2010, notamment suite à des applications de PPP utilisés en conventionnel et en agriculture biologique près d'écoles dans le vignoble bordelais en 2016.

Des réglementations à des échelles larges

Les réglementations sur la qualité de l'air à des échelles larges (pays, continent), en particulier dans le contexte de la CLRTAP (voir section « Réglementations et politiques publiques » ci-après), ont explicitement pris en compte dès le départ la contribution de l'agriculture à la pollution de l'air, puisqu'il s'agissait de répertorier les activités anthropiques dans leur intégralité. En termes réglementaires, l'agriculture est donc interrogée par les pouvoirs publics au même titre que les autres activités anthropiques pour évaluer ses sources et contribuer aux objectifs de réduction. Cette démarche présente de nombreux points communs avec celle qui concerne les émissions de gaz à effet de serre.

Aux échelles européennes et nationales, les émissions d'ammoniac sont réglementées (voir section suivante) et sont discutées depuis la fin du xx^e siècle dans le cadre de groupes de travail nationaux et internationaux, qui élaborent des recommandations et des guides de bonnes pratiques pour limiter ces émissions en vue de respecter les plafonds d'émission négociés. Les PPP ne donnent pas pour le moment lieu à réglementation pour la qualité de l'air, mais la préoccupation grandissante de la société et des pouvoirs publics français sur ces composés de natures très variées a entraîné ces dernières années une multiplication des suivis de concentrations dans l'atmosphère, qui tendent à s'harmoniser sur tout le territoire. Une campagne nationale de mesure des résidus de PPP dans l'air, impliquant l'Anses, l'Ineris et Atmo France, a été lancée en 2018.

Une diversité d'acteurs pour mettre en œuvre les réglementations

Les acteurs pour la réglementation et l'action diffèrent selon l'échelle concernée. À l'échelle nationale, ce sont surtout les acteurs des politiques publiques, à savoir les ministères et des acteurs publics nationaux auxquels ces ministères délèguent des missions, tels que l'Ademe, l'Ineris ou plusieurs instituts de recherche (Inra, CNRS, universités...) (voir figure 7.6, plus loin dans ce chapitre). Les acteurs en lien avec l'agriculture sont surtout impliqués par le biais d'experts nationaux (instituts techniques, chambres d'agriculture, recherche publique). Certaines associations de défense de l'environnement ou de défense des usagers, telles que France Nature Environnement, l'association *Respire* ou l'Association pour la prévention de la pollution atmosphérique (APPA), ont inscrit la pollution de l'air à leur agenda et mènent des réflexions et des actions à cette échelle, notamment dans le domaine de l'agriculture. Leurs interventions auprès du public jouent aussi un rôle important de diffusion et de pédagogie, car on est confronté ici à des problématiques complexes et multicritères.

Le panel s'élargit à des acteurs locaux dès qu'on passe à la mise en pratique des méthodes de réduction des émissions. À ce jour, cette problématique est encore peu connue des agriculteurs voire des conseillers agricoles, aussi bien au niveau des émissions depuis les exploitations que de l'impact des polluants atmosphériques sur la production. Des actions de sensibilisation restent nécessaires par le biais de réunions d'information nationales ou régionales, ou de projets de démonstration, pour mieux faire appréhender les enjeux et les actions possibles à mettre en place en cohérence avec les autres enjeux environnementaux et l'organisation du travail sur l'exploitation. Divers projets spécifiques à la qualité de l'air en agriculture commencent à se monter à l'échelle de territoires-pilotes.

Au niveau régional, les acteurs institutionnels et ceux du secteur économique sont en interaction plus directe, par exemple dans des groupes de travail pour l'établissement de plans régionaux concernant la qualité de l'air ou pour la mise en place d'actions locales (notamment des projets de recherche-action). À un niveau plus local, les élus issus du monde agricole sont proportionnellement de moins en moins nombreux, et les maires ont davantage tendance à exprimer les souhaits des citoyens qui cherchent à maintenir la tranquillité des villages. Dans de petites régions agricoles, voire une commune, peuvent apparaître des groupes de citoyens, souvent soutenus, voire relayés par des associations de défense de l'environnement et des

médias, qui resituent les questions posées dans un contexte plus large. Ces actions peuvent avoir des répercussions à l'échelle nationale.

On retrouve cette dichotomie dans d'autres problématiques environnementales sur les sols, les écosystèmes ou les eaux, mais l'atmosphère a sans doute cette spécificité que les problèmes sont moins marqués par des particularités locales (types de sols, réseau hydrologique, occupation du sol...) et donc plus facilement transposables et comparables d'une situation à une autre.

Un secteur d'activité impacté par la pollution de l'air... sans trop le savoir

Une des spécificités des activités agricoles, par rapport aux autres secteurs d'activités anthropiques, est que les productions végétales sont impactées par la pollution de l'air, en particulier par l'ozone troposphérique, mais aussi par des dépôts d'éléments-traces métalliques (ETM) ou de micropolluants organiques (MPO), souvent sous forme de particules, provenant des voies de transport ou des activités industrielles. Ce problème est encore peu présent dans l'esprit de la société civile et des acteurs agricoles, même si des alertes récentes, relayées par la presse, ont fait prendre conscience de l'ampleur de ces phénomènes dans le cas de l'ozone. Il s'agit ici d'un problème de pollution régionale à continentale pour lequel tous les secteurs sont concernés en raison de leurs émissions de précurseurs d'ozone (NO_x, COV...).

À un niveau très local, la proximité de certaines sources de pollution par voie aérienne telles que des industries ou des axes routiers à forte circulation peut rendre une fraction non négligeable des terres agricoles impropre à certaines productions, soit du fait d'un risque de dépassement de certaines normes de contamination, soit du fait de cahiers des charges restrictifs par rapport à ce critère de proximité (par exemple pour l'alimentation pour bébés), soit pour l'image que renvoie cette proximité pour le consommateur (Petit *et al.*, 2009). Des distances de sécurité de 250 m autour d'axes de circulation apparaissent dans certains cahiers des charges, mais leur fondement scientifique n'est pas clairement établi. Diverses études au cours desquelles ont été mesurés les dépôts de polluants issus de ces axes de transport indiquent des distances d'impact qui seraient plutôt de quelques dizaines de mètres (Loubet *et al.*, 2011 ; Petit *et al.*, 2013). Si ce genre d'appréhension des risques se généralisait, cela imposerait des contraintes fortes pour les activités agricoles en périphérie des grandes agglomérations.

Synthèse

La prise de conscience sur la pollution de l'air d'origine agricole s'est fortement renforcée ces dernières décennies, avec la question des PPP dans l'atmosphère, la contribution des émissions d'ammoniac à la formation de particules secondaires et des phénomènes indirects très locaux tels que les émanations de H₂S liées à la décomposition des algues vertes ou des sargasses. Les pollutions d'origine agricole sont de nature assez différente des pollutions rencontrées en ville, à savoir les pollutions azotées liées principalement aux activités d'élevage, rendues d'autant plus visibles qu'elles s'accompagnent de nuisances olfactives, et les PPP, qui deviennent de plus en plus visibles

dans la presse et par les actions d'associations environnementalistes. Ces problèmes sont renforcés, d'une part, par une image dégradée de l'agriculture dans la population qui assimile les nuisances de diverses natures de l'agriculture à une évolution vers une activité de type industriel et, d'autre part, par l'imbrication grandissante entre activités agricoles et non agricoles dans les espaces ruraux, du fait de la forte décroissance des actifs agricoles et d'une migration relativement récente de la ville vers la campagne, dans les grands bassins d'influence des villes.

Si l'agriculture présente une certaine vulnérabilité par rapport à la pollution de l'air, il est indispensable de coupler cette question avec celle du changement climatique, dont les conséquences sur l'agriculture nécessiteront une adaptation de celle-ci, notamment en raison d'un possible maintien de niveaux élevés d'ozone. C'est pourquoi la réflexion et les actions pour limiter les émissions de polluants atmosphériques doivent être étroitement liées à celles des gaz à effet de serre dans le cadre des politiques et actions mises en place. D'ailleurs, certains polluants comme l'ozone et les particules (appelés *short lived climate forcers*) ont des effets sur le climat, en dépit de leur durée de vie plus courte que celle des gaz à effet de serre. Leur maîtrise est urgente et apporterait un double bénéfice.

► Réglementation et politiques publiques

Genèse d'une prise en compte de la qualité de l'air en contexte agricole

La prise en compte de l'agriculture dans la réglementation liée à la qualité de l'air a été tardive, mais elle s'intensifie progressivement depuis le début du XXI^e siècle pour les polluants agricoles majeurs (ammoniac et particules fines PM_{2,5} en particulier) (figure 7.5).

Une première volonté de réduire à la source les polluants d'origine agricole

Le premier lien observable dans la réglementation reliant air et agriculture apparaît en 1935 avec le vote du Soil Conservation Act aux États-Unis, dont l'objectif était de mettre en place des mesures de limitation de l'érosion éolienne, source importante de poussières⁶⁷. Historiquement, la période d'après-guerre a été propice au développement d'une agriculture intensive et de l'industrie. Ces nouveaux systèmes à haute productivité ont rapidement été réglementés en France, en particulier à travers la loi sur les Installations classées pour la protection de l'environnement (ICPE) dès 1976. Celle-ci visait notamment les installations d'élevage émettrices d'ammoniac.

67. Suite au Soil Conservation Act, plusieurs réglementations ont été développées après la guerre pour lutter contre les émissions polluantes : Clean Air Act en Grande-Bretagne en 1956 ; Clean Air Acts aux États-Unis en 1963, et surtout en 1970 ; loi contre les émissions de SO₂ en Suède en 1968, entre autres. Ces législations visaient essentiellement les pollutions d'origine industrielle soufrées et particulaires, ou également automobiles (États-Unis, 1970). Elles ne prenaient pas en compte l'agriculture et ne sont donc pas présentées ici.

Vingt ans plus tard, la directive européenne 96/1/CE, dite IPPC⁶⁸, est adoptée et concerne, entre autres, les bâtiments d'élevage intensif de porc et de volaille, avec un objectif de réduction à la source des émissions polluantes. Cette directive propose une liste des meilleures techniques disponibles (MTD) à mettre en place et aboutit à la publication des premiers BREF (Best References Document) dans différents secteurs industriels, dont l'élevage (BREF IRPP, Intensive Rearing of Poultry and Pigs). En 2010, la directive IPPC a été refondue dans la directive IED⁶⁹ 2010/75/UE. Une nouvelle révision du BREF IRPP a été finalisée et des conclusions sur les MTD ont été adoptées *via* le décret 2017/302/UE. Pour la première fois, des valeurs limites d'émissions (VLE) d'ammoniac y sont données pour les bâtiments d'élevage, en lien avec les MTD pour les exploitations agricoles.

Par ailleurs, au niveau français, le Corpen, Comité d'orientation pour des pratiques agricoles respectueuses de l'environnement⁷⁰, émet depuis 2001 des recommandations sur les pratiques agricoles en intégrant l'air (et les sols) à son champ d'action. Le thème des pollutions liées aux PPP est aussi intégré au domaine d'action du Corpen dès 1992, mais celles-ci n'entrent réellement sur la scène réglementaire qu'à partir de 2009 *via* la directive 2009/28/CE, déclinée en France dans le plan Écophyto 2018. Cet ambitieux programme national fixait comme objectif de diminuer de 50 % l'utilisation des PPP à l'horizon 2018 et a permis la mise en place d'un réseau de fermes expérimentales (Dephy). À mi-chemin (2014), ce plan a été mis à jour sous l'appellation Écophyto II et l'objectif « - 50 % » a été décalé à 2025.

Intégration de l'agriculture dans les plafonds d'émissions

À l'échelle internationale, la prise de conscience des risques liés aux pollutions aériennes a été entérinée avec la Convention de Genève (1979), aussi appelée CLRTAP. Celle-ci a donné le cadre des premières coopérations et mesures internationales visant à limiter et réduire les pollutions atmosphériques transfrontalières *via* la mise en place de plafonds nationaux d'émission. Dans les années 1990, deux faits marquants encadrent de façon plus concrète les systèmes de surveillance de la qualité de l'air, mais n'intègrent pas spécifiquement l'agriculture. D'une part, l'Agence européenne pour l'environnement est créée afin de doter l'Europe d'une structure indépendante qui fournit des informations ciblées, pertinentes et fiables aux décideurs politiques et au public grâce à la mise en place d'un réseau européen d'information et d'observation pour l'environnement (Eionet). D'autre part, la loi Laure (loi sur l'air et l'utilisation rationnelle de l'énergie) de 1996 institue en France des Plans régionaux de qualité de l'air (PRQA), et établit les champs géographiques et techniques des Associations agréées de surveillance de la qualité de l'air (Aasqa).

La clé de voûte de la prise en compte de l'agriculture dans la qualité de l'air a été mise en place en 1999 avec le Protocole de Göteborg, qui fixait les premiers plafonds d'émission à atteindre à l'horizon 2010, notamment pour l'ammoniac, pour les pays

68. Integrated Pollution Prevention and Control.

69. Industrial Emission Directive.

70. Le Corpen est créé dès 1984, mais n'intégrait pas l'air à l'époque (uniquement la pollution de l'eau d'origine agricole). Cette instance d'analyse, d'expertise et de proposition a pour vocation d'être neutre et objective.

membres de la CEE-NU⁷¹. En Europe, celui-ci a abouti à la directive 2001/81/CE, déclinant les plafonds nationaux de ces polluants. Deux ans plus tard, la France adopte son premier plan national de réduction des émissions (Prepa, arrêté du 8 juillet 2003). Celui-ci avait en particulier pour objectif la réduction des émissions de SO₂, NO_x, COV et NH₃ et le développement de plans locaux (Plans de protection de l'atmosphère, PPA) créés par la Laure. En 2008, sur le plan européen, plusieurs directives sur la qualité de l'air (dont la directive 2002/3/CE) sont mises à jour et unifiées dans la directive 2008/50/CE. Celle-ci a ensuite été déclinée en France au travers du plan Particules, qui visait à réduire la pollution de fond par les particules (réduction de 30 % des PM_{2,5} à l'horizon 2015) de manière quasi uniforme pour tous les secteurs émetteurs primaires, dont l'agriculture.

Parallèlement à ces directives, deux faits renforcent la réglementation des plafonds d'émission du secteur agricole :

- en 2012, le Protocole de Göteborg est amendé et les particules fines (PM_{2,5}) sont ajoutées à la liste des polluants suivis et réglementés. Les engagements nationaux de réduction des émissions sont revus (horizon fixé à 2020) ;
- en 2016 est publiée la directive National Emission Ceilings (NEC, 2016/2284/UE), qui renforce les objectifs de réduction du plafond d'émission d'ammoniac en fixant un nouvel objectif à l'horizon 2030 en relatif par rapport à 2005, avec en sus la mise en place de systèmes de surveillance des impacts sur les écosystèmes. Un plafond sur les émissions de méthane, d'origine agricole à plus de 50 % en France, avait également été considéré, mais sans être retenu.

Le Prepa de 2003 a alors été actualisé afin de respecter les nouveaux plafonds. Cependant, il a été choisi d'inscrire directement dans la loi de transition énergétique (2015) l'existence des objectifs nationaux et du programme national afin de leur donner plus de visibilité. Ce « nouveau Prepa » fait le lien entre définition de plafonds d'émissions et objectifs de réductions à la source des polluants : il fixe les orientations et actions pour la période 2017-2021 dans tous les secteurs d'activités, dont l'agriculture, ainsi que des plafonds d'émissions à atteindre aux horizons 2020-2030. Concernant les PPP, le plan Écophyto II a aussi intégré un volet de surveillance environnementale de présence des PPP dans les différents milieux, dont l'air *via* la mise en place de la campagne nationale exploratoire en 2018. L'agriculture intensive commence à se repenser, et des systèmes alternatifs économes en intrants et moins polluants, jusqu'alors émergents, gagnent en visibilité dans les politiques publiques (agroforesterie, agriculture biologique...). Les principales réglementations en vigueur en 2019 sont détaillées dans la section suivante.

Le cadre réglementaire en 2019

Les émissions vers l'air de polluants d'origine agricole sont encadrées par un corpus réglementaire principalement défini au niveau international et européen, qui se décline au niveau national et local.

Au niveau international, le Protocole de Göteborg de la CLRTAP définit des plafonds nationaux d'émission de SO₂, NO_x, COV, NH₃ et PM_{2,5} sur la base d'objectifs de

71. Commission économique pour l'Europe des Nations unies.

qualité environnementale pour les écosystèmes (charges critiques d'acidité, charge critique d'azote nutritif, niveaux critiques d'ozone). Le Protocole a été amendé le 4 mai 2012 avec de nouveaux engagements de réduction à horizon 2020 par rapport à l'année de référence 2005 (par exemple réduction de 4 % pour l'ammoniac). En 2019, cet amendement est toujours en cours de ratification.

Au niveau européen, deux directives abordent explicitement la problématique de la qualité de l'air. La directive « qualité de l'air » 2008/50/CE fixe des seuils de concentrations en particules PM₁₀ et PM_{2,5} et d'oxydes d'azote, ainsi qu'un objectif de réduction de 20 % de l'exposition aux PM_{2,5} entre 2010 et 2020. De son côté, la directive 2016/2284/UE définit les plafonds d'émission nationaux de chaque État membre pour le SO₂, le NO_x, le NH₃, les COVNM et les PM_{2,5} aux horizons 2020 et 2030. Lors de la révision de la directive (antérieurement directive NEC, National Emission Ceilings), un plafond sur les émissions de CH₄, précurseur d'ozone et à environ 70 % d'origine agricole (surtout l'élevage), avait aussi été envisagé. Les émissions de NH₃ et de poussières des élevages sont également réglementées à travers la directive IED, Industrial Emission Directive 2010/75/UE. Cette directive impose notamment aux élevages avicoles (rassemblant plus de 40 000 volailles) et porcins (avec des effectifs supérieurs à 2 000 porcs de production ou à 750 truies) de déclarer leurs émissions, de respecter des valeurs limites d'émissions d'ammoniac au niveau du bâtiment et d'appliquer les meilleures techniques disponibles (MTD), y compris pour le stockage et l'épandage des déjections animales. L'inclusion des élevages bovins dans le périmètre de la directive a également été envisagée, mais n'a pas abouti car les avantages environnementaux ont été estimés limités au regard des coûts administratifs et de mise en conformité des bâtiments, potentiellement importants pour un grand nombre d'exploitations agricoles (COM/2013/0286 final).

Ces réglementations européennes ont été intégrées dans le droit français à travers différentes lois, décrets et arrêtés. En particulier, l'arrêté du 10 mai 2017 précise les mesures du Prepa imposé par la directive 2016/2284/UE. Ces mesures concernent notamment les émissions agricoles comme la restriction des conditions d'usage de l'urée entre février et avril, la mise en place d'un plan d'action visant à supprimer l'utilisation des matériels d'épandage les plus émissifs à horizon 2025 ou le développement de filières et techniques alternatives au brûlage à l'air libre des résidus agricoles. Bien que la présence dans l'air des PPP ne soit pas réglementée au niveau européen, la France envisage leur surveillance dans l'air ambiant dès 2018 dans le cadre du plan Écophyto II et du Prepa. Il est également attendu que les mesures mises en œuvre dans le cadre du plan Écophyto II pour réduire de 50 % l'usage des PPP permettent également de maîtriser leur présence dans l'atmosphère. À titre d'exemple, le dispositif des certificats d'économie de PPP (CEPP), mis en place sur le modèle des certificats d'économie d'énergie, inclut une fiche-action « 2017-003 Réduire la dose de PPP au moyen de panneaux récupérateurs de bouillie en viticulture » ayant un effet à la fois sur l'usage et les pertes vers l'atmosphère (arrêté du 9 mai 2017 définissant les actions standardisées d'économie de PPP). Enfin, les évaluations de la dangerosité des nouvelles substances actives avant leur mise sur le marché, réalisées par l'Anses, incluent une estimation du niveau de contamination de l'air par les substances et leurs métabolites.

Au niveau régional et local, les collectivités sont mobilisées à travers les Schémas régionaux climat, air, énergie (SRCAE), les Plans climat-air-énergie territoriaux

(PCAET) et les Plans de protection de l'atmosphère (PPA). Les SRCAE visent à établir une approche intégrée tenant compte des priorités régionales au titre du climat, de l'air et de l'énergie. Les PCAET imposent aux établissements publics de coopération intercommunale (EPCI) à fiscalité propre de plus de 20 000 habitants de transcrire ces orientations en actions à l'échelle locale. Ils doivent être révisés tous les six ans. Les PPA établissent sur un périmètre cohérent donné (agglomération, zone en dépassement...) les mesures à prendre pour réduire les émissions, en application de la directive sur la qualité de l'air. Les Plans régionaux d'agriculture durable (PRAD) visent à garantir la cohérence de ces actions pour le secteur agricole. Le Plan de compétitivité et d'adaptation des exploitations agricoles (PCEA) est le principal dispositif d'aide aux exploitants agricoles qui permet d'accompagner les investissements dans la réduction des émissions (par exemple matériel d'épandage, pulvérisateur). Il s'articule au niveau régional avec le Programme de développement rural régional (PDRR), notifié par la région auprès de la Commission européenne.

Politiques publiques et qualité de l'air : de multiples interactions

Les interactions entre les principaux acteurs sont détaillées au travers du schéma général (figure 7.6), succinctement illustré *via* deux exemples marquants de prise en compte de l'agriculture dans la réglementation relative à la qualité de l'air : la pollution ammoniacale et la pollution due aux PPP.

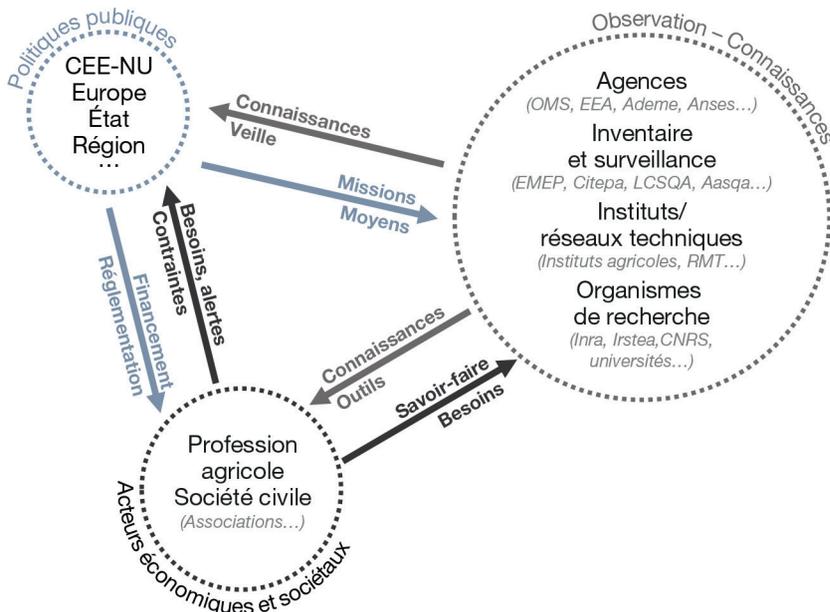


Figure 7.6. Interactions entre les différents acteurs liés à la prise en compte de l'agriculture dans les réglementations relatives à la qualité de l'air. Les tailles des cercles ne sont pas proportionnelles au poids des acteurs.

La pollution à l'ammoniac permet de représenter le jeu d'acteurs ayant abouti à l'état réglementaire actuel. Dès la fin des années 1970, l'acidification croissante des milieux naturels (pluies acides, dont l'ammoniac est l'une des causes, avec le dioxyde de soufre et les oxydes d'azote) inquiète les pouvoirs publics sur la scène internationale. Plusieurs États se réunissent et ratifient d'abord la Convention de Genève (1979), visant à limiter les pollutions transfrontalières ; puis, sur le plan européen, la directive dite IPPC (96/61/CE) fixe des objectifs de réduction à la source et propose les « meilleures techniques disponibles », enfin, le Protocole de Göteborg établit des plafonds d'émissions à respecter dans le futur. Les objectifs internationaux sont repris à l'échelle européenne ainsi qu'à l'échelle nationale dans différentes lois et arrêtés (avec, par exemple, l'approbation du Plan de réduction des émissions de polluants atmosphériques en 2003). Des schémas régionaux sont ensuite déclinés en fonction des spécificités locales. En parallèle, les organismes et instituts de recherche sont financés afin de mieux comprendre les phénomènes en jeu (émission, transformation, risques) et d'apporter des solutions innovantes permettant d'atteindre les objectifs des plafonds. Cette recherche est en partie réalisée sur le terrain, en aller-retour avec la profession agricole, afin de s'intégrer au mieux aux contraintes liées aux systèmes d'exploitations dans différentes filières émettrices (porcine, avicole, bovine). Les réseaux d'inventaire et de surveillance ainsi que les associations de surveillance de la qualité de l'air participent au processus en fournissant des données et en alertant les pouvoirs publics en cas de risque (tels les pics de pollution).

Dans le cas de l'ammoniac, le consommateur a peu conscience de cette mise en œuvre, du fait d'une faible reprise par les médias d'un thème n'affectant que marginalement le quotidien des populations⁷². Au contraire, dans le cas de l'utilisation des PPP, la demande et les alertes ont en partie émergé des organismes internationaux comme l'OMS et plus localement des associations citoyennes relayées par les médias⁷³. Certains États et l'Europe ont alors orienté des enveloppes afin de financer les organismes de recherche. Cette prise de conscience environnementale et sanitaire ainsi que l'évolution de la demande des consommateurs ont renforcé la visibilité du label « Agriculture biologique », aujourd'hui décliné internationalement. Au niveau national, le plan Écophyto (puis Écophyto II) a été lancé pour traiter spécifiquement cette thématique sur le long terme à tous les niveaux (recherche, action, sensibilisation, surveillance de la qualité de l'air, objectifs de réduction), tandis que la profession agricole s'adapte à la fois pour protéger les utilisateurs (exploitants, applicateurs) et l'environnement, et pour fournir des produits correspondant aux attentes des consommateurs. Ces plans s'appuient sur les résultats de la recherche et font remonter les connaissances et les expériences de terrain non seulement pour améliorer les itinéraires culturaux, mais aussi pour alerter sur les difficultés techniques liées aux nouvelles réglementations (interdiction de substances actives, réduction des doses par exemple).

72. On peut cependant relever la couverture médiatique des pics de pollution printaniers, qui a mis en avant depuis plusieurs années les émissions agricoles aux côtés de celles du transport, de l'industrie ou du chauffage au bois (voir à titre d'exemple l'article paru dans *Paris Match* le 31 mai 2016 : <http://www.parismatch.com/Actu/Environnement/L-agriculture-principale-cause-de-pollution-de-l-air-en-Europe-983014>).

73. À titre d'exemple, cet article publié sur francetvinfo.fr relayant des travaux de l'association Génération futures, https://www.francetvinfo.fr/sante/environnement-et-sante/les-riverains-des-champs-exposes-aux-pesticides-selon-generations-futures_1340247.html.

Cohérence avec les autres politiques publiques

Aujourd'hui, l'agriculture n'est plus considérée sous le seul prisme de la production alimentaire. Elle est de plus en plus concernée par les nombreuses politiques publiques liées à la santé, à la qualité des milieux (eau, air, biodiversité), à la lutte contre le changement climatique, au développement des énergies renouvelables, au bien-être animal (figure 7.7). Ces politiques publiques fixent des orientations et émettent généralement des recommandations, voire des obligations. Si certaines sont bien ancrées dans la profession agricole, comme celles relatives à la qualité de l'eau, d'autres sont émergentes, comme celles relatives à la lutte contre le changement climatique ou à la qualité de l'air. L'empilement de politiques et de mesures peut conduire à l'inefficacité et à des réactions négatives de la part des professionnels, surtout si elles ne sont pas suffisamment coordonnées et présentent de fortes incohérences (Cellier et Générmont, 2016). Existente également des risques d'antagonismes entre les différentes politiques conduisant à des transferts de pollution et d'impacts. Oenema *et al.* (2009) ont, par exemple, montré que les mesures visant à limiter les émissions de NH_3 (qualité de l'air) pouvaient avoir un impact négatif sur la lixiviation de NO_3 (qualité des eaux), les émissions de N_2O (climat) ou encore les émissions de CH_4 dans le cas des couvertures de fosses à lisier.

Au-delà des mesures monothématiques, il est donc important d'approcher ces questions de manière intégrée et multi-échelle, en proposant des arbitrages entre les différents enjeux lorsque cela est nécessaire.

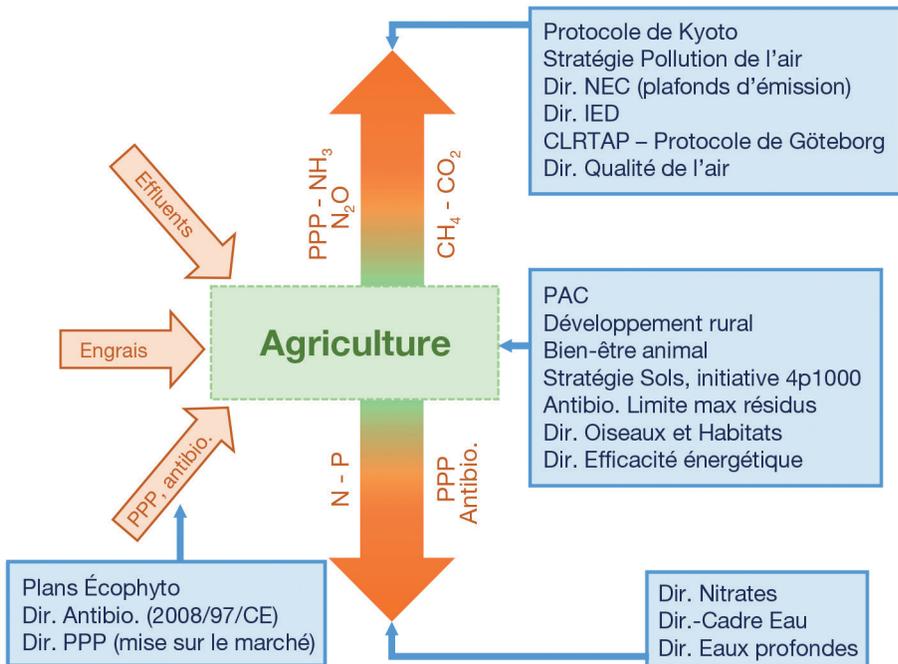


Figure 7.7. Schéma des interactions entre différentes politiques publiques (d'après Oenema *et al.*, 2009).

PPP : produits phytopharmaceutiques.

C'est, par exemple, le sens d'actions internationales conduites depuis quelques années dans le cadre de la Convention de Genève pour une approche intégrée multi-impact sur l'azote⁷⁴, ou l'initiative Climate and Clean Air Coalition (Lode, 2014). Au niveau national, le projet agroécologique pour la France (2012) ambitionne d'accompagner l'essor de systèmes de production performants sur les plans économiques et environnementaux, en favorisant notamment un meilleur bouclage des cycles (eau, azote, carbone...) et la préservation de la biodiversité. Les PRAD permettent également à l'État et aux régions de définir des orientations intégrant les différents enjeux de l'agriculture, alors même que les régions sont aujourd'hui les autorités de gestion du Fonds européen agricole pour le développement rural (Feader) et sont chargées d'organiser, en qualité de chefs de file, les modalités de l'action publique sur les questions relatives à la qualité de l'air, au climat, à l'énergie et à la protection de la biodiversité (loi n° 2014-58 du 27 janvier 2014)... L'élaboration de scénarios prospectifs à moyen et long terme pour l'agriculture coconstruits avec les différentes parties prenantes et leur évaluation sur les différents aspects environnementaux peuvent contribuer au partage des enjeux et à la définition d'orientations partagées. À titre d'exemple, les scénarios Afterres2050 produits par Solagro permettent d'ouvrir un débat pluridisciplinaire sur des bases chiffrées, pour relever de nombreux défis interdépendants, en fournissant des variantes afin de mieux appréhender l'impact des options prises en matière de modélisation⁷⁵ (rééquilibrage du régime alimentaire, artificialisation des sols, réduction des cheptels et extensification des systèmes par exemple).

74. <http://www.clrtap-tfrn.org/>.

75. La matrice de modélisation développée et utilisée par Solagro (MoSUT) a aussi été utilisée par l'Ademe pour définir les trajectoires 2030-2050 mises en débat lors de la préparation de la loi sur la transition énergétique.

Pour conclure

Au cours des dernières décennies, on a pu observer des évolutions très sensibles et rapides des méthodologies employées pour évaluer les émissions de polluants atmosphériques dans le domaine de l'agriculture, quantifier les divers impacts sanitaires et environnementaux de la pollution de l'air, proposer des solutions de réduction des émissions en appui aux politiques publiques et évaluer en retour l'efficacité de leurs mises en œuvre. Ceci a été rendu possible par le progrès technologique (mesure, calcul), l'amélioration des connaissances sur les processus (émission, dépôt, dispersion, transformations chimiques d'un nombre de composés gazeux et particulaires croissant) et leur utilisation conjointe dans des modèles intégratifs ou pour développer des indicateurs. La tendance pour l'évaluation des émissions et des impacts est de passer d'approches empiriques à des approches plus explicites et déterministes, d'approches axées sur un polluant à des approches multipolluants, de faire le lien entre les échelles globales, régionales, nationales, territoriales, et celles de l'exploitation. Ces approches, fondées sur des connaissances académiques et des connaissances expertes des acteurs de l'agriculture et de l'environnement, ont cherché en même temps à maintenir des représentations réalistes avec un degré de finesse élevé et sans perdre de vue l'opérationnalité. Les modèles les plus fins peuvent en effet servir à dériver des lois de variations, à mettre au point ou caler des modèles plus simples, voire à évaluer des connaissances empiriques ou des méthodes de réduction des émissions. Mais aussi, l'intérêt de passer à ces approches à base plus mécaniste n'est pas tant d'améliorer les évaluations des émissions (par exemple pour les inventaires) que de permettre de mieux représenter la variabilité spatiale et temporelle, ainsi que de faire des projections en considérant différents scénarios de changement de pratiques, du climat ou de politiques publiques. Ces évolutions peuvent bénéficier aujourd'hui de la disponibilité de plus en plus large de données et de leur intégration dans des systèmes d'information sur l'environnement (sols, climat, occupation des sols, cartes de végétation). Leur exploitation devrait être largement favorisée par les directives sur l'ouverture des données publiques (loi pour une République numérique du 7 octobre 2016) et par l'application des principes FAIR (*findable, accessible, interoperable, reusable*), qui visent à favoriser l'identification, l'accès, l'interopérabilité et la réutilisation des données.

Les travaux de recherche en cours, le déploiement de réseaux de surveillance de mesure et de systèmes d'information sur les pratiques agricoles visent à réduire les incertitudes qui restent élevées, induites d'un côté par la complexité et la variabilité du vivant très spécifique à ce secteur d'activité qu'est l'agriculture, et de l'autre par la variabilité spatiale et temporelle liée à la diversité des pratiques agricoles et des conditions environnementales. Les bases de données contenant ces informations pourront être plus largement utilisées pour construire et évaluer les cadastres

d'émission. En ce qui concerne les activités agricoles, il serait également souhaitable que les réseaux de surveillance des Aasqa comprennent plus de sites d'observations dans les espaces ruraux et que de nouveaux composés tels que l'ammoniac ou certains PPP soient intégrés dans ces réseaux opérationnels dans un proche avenir.

Cependant, un point d'achoppement important pour ces diverses évaluations et modélisations reste l'accessibilité des données décrivant les pratiques agricoles, les systèmes de culture et d'élevage et leurs changements en réponse aux évolutions des contraintes environnementales et réglementaires. Seuls un investissement collectif des instituts de recherche, des instituts techniques, des professions para-agricoles, et une mise en commun des informations détenues par de nombreux acteurs pour les mettre à la disposition de tous, accompagnés et soutenus activement par les pouvoirs publics, permettront de faire tomber cet obstacle.

Le champ d'action du déploiement de pratiques moins émettrices est relativement large. De nombreuses méthodes sont aujourd'hui disponibles, et les capacités d'innovation du secteur agricole sont très prometteuses. Il faut toutefois se projeter sur un temps plus long dans ce secteur d'activité que dans d'autres : les capacités d'investissement des agriculteurs ne sont pas toujours compatibles avec les besoins et souvent en décalage dans le temps avec les gains potentiels escomptés, s'il y en a. De plus, la forte dépendance des activités agricoles aux conditions environnementales rend les applications des mesures environnementales et agricoles souvent délicates et incertaines en termes de résultats. L'évaluation doit donc se faire sur des temps longs et considérer, si possible, le contexte territorial dans lequel se situe l'exploitation agricole. Des pistes d'action à des échelles plus intégratives (paysage, filière...) commencent à voir le jour et à être intégrées dans les raisonnements des acteurs agricoles, mais elles ne pourront être implémentées qu'avec une vision à long terme, en situant les activités agricoles dans le contexte plus large de la gestion des territoires, intégrant à la fois leur environnement naturel et leurs liens avec les autres activités anthropiques et leurs acteurs, notamment dans les zones urbaines et périurbaines. Les politiques incitatives doivent en tenir compte, tout en s'articulant avec ce qui est une autre caractéristique de l'agriculture : la multiplicité des politiques publiques et réglementations qui la concernent.

De plus, l'évolution vers des pratiques moins polluantes ne pourra se faire uniquement par le biais de contraintes réglementaires. Elle ne sera effective qu'en faisant des évaluations économiques précises et régulièrement actualisées des coûts des pratiques de réduction des émissions, qui montrent à la fois les investissements nécessaires, les coûts de fonctionnement, mais aussi les gains susceptibles d'être obtenus en réduisant les pertes d'intrants ou en adoptant des pratiques alternatives (voir par exemple Martin et Mathias, 2013, pour le cas de l'ammoniac).

Enfin, les approches menées jusqu'ici pour limiter les émissions sont essentiellement fondées sur la mise au point et la mise en œuvre de pratiques de limitation des émissions, par exemple l'alimentation multiphase, l'injection des lisiers, la couverture de fosses de stockage des effluents, l'utilisation d'engrais à faible pouvoir d'émission. Dans un contexte de transition agroécologique, énergétique et climatique, et d'approches conjointes santé-alimentation-environnement, les acteurs agricoles et en particulier la recherche sont amenés à explorer de nouveaux modes de production agricole, incluant l'élevage. Cela passe souvent par une moindre utilisation des

intrants (engrais et PPP), avec toute l'adaptation nécessaire dans les pratiques et la conception de nouveaux systèmes de culture, pouvant aller de la diversification des cultures, d'exploitations menées selon différents modes alternatifs, par exemple en agriculture raisonnée, de conservation ou biologique, jusqu'à la mise en œuvre de nouvelles technologies visant à réduire l'usage d'intrants. Cela demande de resituer et de développer les travaux antérieurs dans le contexte plus large de la conception et de l'évaluation de systèmes de culture plus respectueux de l'environnement vis-à-vis de la qualité de l'air, mais en considérant également d'autres impacts possibles (climat, qualité des eaux, biodiversité), par le biais d'approches multicritères. Ces nouveaux systèmes ou nouvelles techniques ouvrent la voie à de nouveaux travaux de recherche et de partenariat dans le domaine des relations entre agriculture et qualité de l'air.

Fiches synthétiques sur les composés

► Grille de lecture

Ligne d'identité			
Description		État	Primaire/secondaire
Nom et/ou liste des composés dans le cas d'une famille		Gaz ou particule	Polluant primaire ou secondaire (après réaction(s) dans l'atmosphère)

Sources primaires				
Agriculture % contribution du secteur « Agriculture » au total anthropique (Citepa, 2019) Par défaut, les cultures incluent les cultures annuelles et pérennes		Total France (secteurs anthropiques) (Citepa, 2019)	Autres principaux secteurs anthropiques émetteurs	Sources naturelles
Sous-secteurs agricoles contributifs. Pour plus de détails, se référer au chapitre 1 , à la première section décrivant « Les principaux polluants concernés » N.B. : la gamme de l'amplitude des émissions est détaillée dans le chapitre 4 dans le tableau 4.1 .	% Pour plus de détails, se référer au chapitre 6 à la première section sur les « Inventaires »	kt · an ⁻¹	Les principaux autres secteurs émetteurs sont listés dans l'ordre décroissant de contribution selon les données du Citepa (2019)	Principales sources naturelles contribuant aux émissions. Ces sources ne sont pas comptabilisées dans le total national du Citepa (2019)

Impacts					
<p>Principaux impacts connus : pour plus de détails, se référer au chapitre 1, décrivant dans les différentes sections « Les principaux impacts sur l'agriculture », « Les impacts sur les écosystèmes et la biodiversité », « Les effets des polluants d'origine agricole sur la santé » ainsi que « Les conséquences pour le climat ».</p> <p>N.B. : pour les composés précurseurs de composés secondaires pour lesquels une fiche existe dans cet ouvrage, les impacts ne sont pas repris en détail dans la fiche du composé précurseur, mais dans celle du composé secondaire. En conséquence, pour les précurseurs de l'ozone, se référer en outre aux impacts de l'ozone et pour les précurseurs de particules secondaires, se référer en outre aux impacts des particules abiotiques.</p>					
Chimie atmosphérique	Climat	Santé humaine	Vie animale	Végétation	Sols
Pour chaque catégorie d'impacts : échelle d'intensité de l'impact de * à ***					
Pour chaque catégorie d'impacts : quelques précisions succinctes					

Réglementation
<p>Les grandes lignes des réglementations en cours à l'heure de l'édition de l'ouvrage sont rapportées ici. Pour plus de détails, se référer au chapitre 7 « Réduire l'impact de l'agriculture sur la qualité de l'air », à la dernière section « Réglementation et politiques publiques ». Pour une information synthétique, un tableau des normes Qualité de l'air est disponible sur le site internet du ministère de l'Environnement : https://www.ecologique-solidaire.gouv.fr/sites/default/files/01_Tableau-Normes-Seuils_réglementaires.pdf</p>
<p>Sont distinguées les réglementations concernant les émissions et celles concernant les concentrations dans l'atmosphère</p> <p>N.B. : concernant les concentrations dans l'atmosphère, ne sont pas explicitées les modalités de la surveillance des niveaux de concentration de certains composés par les Associations agréées de surveillance de la qualité de l'air (Aasqa) ou des particules biotiques par le Réseau national de surveillance aérobiologique (RNSA)</p>

» Ammoniac

Ligne d'identité					
Description			État	Primaire/ secondaire	
Ammoniac		NH ₃	Gaz	Primaire	
Sources primaires					
Agriculture % contribution du secteur « Agriculture » au total anthropique (Citepa, 2019)		Total France (secteurs anthropiques) (Citepa, 2019)	Autres principaux secteurs anthropiques émetteurs		Sources naturelles
Élevage (pâturage, bâtiment, stockage des déjections) Fertilisation des cultures (épandage des déjections et autres PRO et engrais de synthèse) Résidus de culture		94 % 606 kt NH ₃ · an ⁻¹	Transport routier		Animaux Cycle interne de l'azote
Impacts					
Chimie atmosphérique	Climat	Santé humaine	Vie animale	Végétation	Sols
**	*	**	*	**	*
Précurseur de particules secondaires	Émissions secondaires de N ₂ O après transfert et dépôt Formation de particules secondaires Les dépôts favorisent le stockage de carbone	Particules fines pour la population générale Irritant à haute concentration dans les bâtiments pour les professionnels	Irritant à haute concentration dans les bâtiments d'élevage pour les animaux Conséquences de l'eutrophisation après transfert et dépôt	Après transfert et dépôt : – à proximité des zones d'émission : dégâts foliaires ; production de biomasse (augmentation) – à plus longue distance : eutrophisation, acidification et perte de biodiversité (local à continental) ; moindre résistance au stress	Après transfert et dépôt : eutrophisation, acidification, perte de biodiversité ; favorise lixiviation d'éléments-traces métalliques
Réglementation					
Concernant les concentrations dans l'atmosphère : pas de réglementation					
Concernant les émissions : Directive (EU) 2016/2284 : réduction des émissions de 4 % pour n'importe quelle année de 2020 à 2029 et de 13 % après l'année 2030 par rapport à l'année de référence 2005					

► Composés non agricoles acidifiants

Ligne d'identité		
Description	État	Primaire/secondaire
Ammoniac, oxydes d'azote et oxydes de soufre (seuls ces derniers sont traités ici) Oxydes de soufre : tous les composés soufrés exprimés en dioxyde de soufre (SO ₂), y compris le trioxyde de soufre (SO ₃), l'acide sulfurique (H ₂ SO ₄) et les composés soufrés réduits, tels que l'hydrogène sulfuré (H ₂ S), les mercaptans et le sulfure de diméthyle	Gaz	Primaire

Sources primaires			
Agriculture % contribution du secteur « Agriculture » au total anthropique (Citepa, 2019)	Total France (secteurs anthropiques) (Citepa, 2019)	Principaux secteurs anthropiques émetteurs	Sources naturelles
0 %	143 kt SO ₂ · an ⁻¹	Industrie manufacturière Production d'énergie Transport maritime (problème largement résolu en dehors du transport maritime)	Volcans

Impacts					
Chimie atmosphérique	Climat	Santé humaine	Vie animale	Végétation	Sols
**	*	*	*	*	*
Acidification de l'air Précurseur de particules secondaires Smog	Précurseur de particules secondaires	Problèmes respiratoires (particules fines, smog)	Idem santé humaine	Rendements (effet positif) Dégâts foliaires (très près des sources)	Après dépôt : acidification

Réglementation

Concernant les concentrations dans l'atmosphère :

- existence de valeurs limites : pour la santé humaine et pour la végétation
- existence de seuils d'information et de recommandation ou d'alerte

Concernant les émissions :

Directive (EU) 2016/2284 : réduction des émissions de 55 % pour n'importe quelle année de 2020 à 2029 et de 77 % après l'année 2030 par rapport à l'année de référence 2005

►► Composés organiques volatils non méthaniques

Ligne d'identité			
Description	État	Primaire/secondaire	
Composés contenant plus d'un atome de carbone associé à des atomes d'hydrogène, d'oxygène, d'azote, de soufre, d'halogènes, de phosphore, de silicium. N'inclut pas le méthane.	COVNM Gaz	Biogéniques : primaires Non biogéniques : primaires et secondaires	

Sources				
Agriculture % contribution du secteur « Agriculture » au total anthropique (Citepa, 2019)	Total France (secteurs anthropiques) (Citepa, 2019)	Autres principaux secteurs anthropiques émetteurs		Sources naturelles
Combustion (brûlage résidus agricoles, moteurs)	2 % 612 kt COVNM · an ⁻¹	Transformation/énergie Transport Résidentiel/tertiaire		Forêts Végétation naturelle
+ cultures en végétation, élevage	15 % 2 338 kt COVNM · an ⁻¹	Industries manufacturières		
Sylviculture				

Impacts					
Chimie atmosphérique	Climat	Santé humaine	Vie animale	Végétation	Sols

Précurseurs de l'ozone Précurseur d'aérosols organiques secondaires	Augmentation de la durée de vie du CH ₄ Précurseurs de l'ozone Précurseur d'aérosols organiques secondaires	Effets nocifs sur les êtres humains : troubles cardiaques, digestifs, certains COV anthropogéniques sont cancérigènes, mutagènes Précurseurs de l'ozone Précurseur d'aérosols organiques secondaires	Effets nocifs sur les animaux (irritants, respiratoires, mutagènes) Précurseurs de l'ozone Précurseur d'aérosols organiques secondaires	Précurseurs de l'ozone Précurseur d'aérosols organiques secondaires	

Réglementation
Concernant les émissions : Directive (EU) 2016/2284 : réduction des émissions de 43 % pour n'importe quelle année de 2020 à 2029 et de 52 % après l'année 2030 par rapport à l'année de référence 2005
Concernant les concentrations dans l'atmosphère : COV anthropogéniques réglementation renforcée, notamment dans le code du travail (article R.4412-59 et suivants), mais pas de réglementation pour l'air ambiant

►► Composés oxydants

Ligne d'identité			
Description		État	Primaire/secondaire
Ozone (mais aussi OH, HO ₂ , NO ₃ , Cl...)	O ₃	Gaz	Secondaire Précurseurs : les oxydes d'azote, les composés organiques volatils non méthaniques, le méthane et le monoxyde de carbone

Sources primaires : sans objet car l'ozone n'est pas un polluant primaire

Agriculture % contribution du secteur « Agriculture » au total anthropique (Citepa, 2019)	Total France (secteurs anthropiques) (Citepa, 2019)	Principaux secteurs anthropiques émetteurs	Sources naturelles

Impacts de l'ozone

Chimie atmosphérique	Climat	Santé humaine	Vie animale	Végétation	Sols
***	**	**	**	**	
Pollution oxydante	3 ^e gaz à effet de serre en termes de PRG après le CO ₂ et le CH ₄ selon le 4 ^e rapport d'évaluation du GIEC (GIEC, 2007)	Irritation des voies respiratoires et des yeux, baisse des performances physiques, détérioration de la fonction pulmonaire	Idem santé humaine	Dégâts foliaires sur les cultures et les couverts naturels Baisse des rendements Accentuation des dégâts dus au pouvoir acidifiant des oxydes de soufre et d'azote Perte de biodiversité	

Réglementation

Concernant les concentrations dans l'atmosphère :

- existence de valeurs cibles : pour la santé humaine et pour la végétation
- existence de seuils d'information et de recommandation ou d'alerte

Concernant les émissions : sans objet car l'ozone n'est pas un polluant primaire

» Méthane

Ligne d'identité			
Description		État	Primaire/secondaire
Méthane Fait partie de la famille des composés organiques volatils	CH ₄	Gaz	Primaire

Sources primaires				
Agriculture % contribution du secteur « Agriculture » au total anthropique (Citepa, 2019)	Total France (secteurs anthropiques) (Citepa, 2019)	Autres principaux secteurs anthropiques émetteurs		Sources naturelles
Élevage : élevage de ruminants et stockage des déjections ; sols des cultures inondées : rizières	70 % 2 195 kt CH ₄ · an ⁻¹	Industrie manufacturière	Activité minière	Zones marécageuses
		Décharges d'ordures ménagères		

Impacts					
Chimie atmosphérique	Climat	Santé humaine	Vie animale	Végétation	Sols
*	***				
Précurseur de l'ozone	Gaz à effet de serre, PRG = 25 2 ^e gaz à effet de serre après le CO ₂ selon le 4 ^e rapport d'évaluation du GIEC (GIEC, 2007)	Précurseur de l'ozone	Précurseur de l'ozone	Précurseur de l'ozone	

Réglementation
Concernant les concentrations dans l'atmosphère et les émissions : pas de réglementation du point de vue de la qualité de l'air, mais des réglementations du point de vue du changement climatique

►► Oxydes d'azote

Ligne d'identité					
Description			État	Primaire/secondaire	
Oxydes d'azote Généralement notés NO_x , ce qui inclut NO (oxyde nitrique ou monoxyde d'azote) et NO_2 (dioxyde d'azote), mais en réalité incluant tous les autres composés azotés oxydés réactifs, en particulier HNO_3 (acide nitrique) et HONO (acide nitreux), et donc apparentés aux NO_y			$\text{NO}_x = \text{NO} + \text{NO}_2$ $\text{NO}_y = \text{NO} + \text{NO}_2 + \text{HNO}_3 + \text{HONO} + \dots$	Gaz	Polluants primaires (NO et HONO) et secondaires (tous)
Sources primaires					
Agriculture % contribution du secteur « Agriculture » au total anthropique (Citepa, 2019)	Total France (secteurs anthropiques) (Citepa, 2019)	Autres principaux secteurs anthropiques émetteurs		Sources naturelles	
Combustion (brûlage résidus agricoles, moteurs)	6 % 807 kt $\text{NO}_2 \cdot \text{an}^{-1}$	Transport (combustion moteur) Industrie (combustion machine)		Foudre Cycle interne de l'azote	
+ sols + effluents d'élevage	11 % 1 074 kt $\text{NO}_2 \cdot \text{an}^{-1}$ (comprenant diverses autres sources)	Résidentiel (combustion chauffage) Énergie (combustion centrales thermiques)		Incendies (biomasse)	
Impacts					
Chimie atmosphérique	Climat	Santé humaine	Vie animale	Végétation	Sols
***	*	**	*	*	**
Pollution photo-oxydante Précurseur de l'ozone Précurseur de particules secondaires	Précurseur de l'ozone Précurseur de particules secondaires	Respiration (irritation) surtout dans les zones urbanisées Précurseur de l'ozone Précurseur de particules secondaires	Précurseur de l'ozone Précurseur de particules secondaires	Après dépôt : eutrophisation Précurseur de l'ozone Précurseur de particules secondaires	Après dépôt : acidification, eutrophisation
Réglementation					
Concernant les concentrations dans l'atmosphère :					
– existence de valeurs limites : pour la santé humaine et pour la végétation					
– existence de seuils d'information et de recommandation ou d'alerte					
Concernant les émissions :					
Directive (EU) 2016/2284 : réduction des émissions de 50 % pour n'importe quelle année de 2020 à 2029 et de 69 % après l'année 2030 par rapport à l'année de référence 2005					

» Particules abiotiques

Ligne d'identité		
Description	État	Primaire/secondaire
Particules abiotiques organiques ou minérales de composition chimique variable	Particule	Primaire et secondaire Principaux précurseurs : ammoniac, oxydes d'azote, composés organiques volatils, dioxyde de soufre

Sources primaires			
Agriculture % contribution du secteur « Agriculture » au total anthropique (Citepa, 2019)	Total France (secteurs anthropiques)	Autres principaux secteurs émetteurs	Naturelle
Moteurs des engins agricoles, pratiques culturales (travail du sol, moisson, fertilisation, traitement), érosion éolienne, activités d'élevage	TSP : 54 % PM ₁₀ : 20 % PM _{2,5} : 9 % 849 kt · an ⁻¹ 254 kt · an ⁻¹ 164 kt · an ⁻¹	Industrie (extraction) Résidentiel (chauffage) Trafic routier	Érosion éolienne Aérosols marins (embruns) Volcans Incendies

Impacts					
Chimie atmosphérique	Climat	Santé humaine	Vie animale	Végétation	Sols
**	*	**	**	*	*
Multiplés : noyaux de condensation, réactions chimiques hétérogènes	Participation à l'absorption (réchauffement) ou à la réflexion (refroidissement) du rayonnement solaire : avec un effet net de refroidissement en l'état actuel des connaissances	Développement des maladies cardiovasculaires, respiratoires et neurologiques, et des cancers Exposition de la population générale aux particules fines : – chronique – lors des pics de pollution Exposition de la population professionnelle : potentiellement élevée en milieu confiné (bâtiments d'élevage)	Exposition potentielle élevée en milieu confiné (bâtiments d'élevage) Accumulation d'éléments toxiques dans la chaîne alimentaire	Modification du rayonnement, modification des propriétés de surfaces (particules hygroscopiques), obstruction des stomates, modification de l'évapotranspiration, accroissement de la sensibilité aux maladies fongiques Inhibition de la germination du pollen	Après dépôt : apport d'éléments nutritifs, ou d'éléments toxiques

Réglementation
Concernant les concentrations dans l'atmosphère de PM₁₀ : – existence de valeurs limites : pour la santé humaine et pour la végétation – existence de seuils d'information et de recommandation ou d'alerte
Concernant les concentrations dans l'atmosphère de PM_{2,5} : objectif de réduction de l'exposition et obligation en matière de concentration
Concernant les émissions de PM_{2,5} uniquement : Directive (EU) 2016/2284 : réduction des émissions de 27 % pour n'importe quelle année de 2020 à 2029 et de 57 % après l'année 2030 par rapport à l'année de référence 2005

► Particules biotiques

Ligne d'identité		
Description	État	Primaire/secondaire
Pollens allergènes, spores, virus et bactéries	Particule	Primaire

Sources primaires			
Agriculture % contribution du secteur « Agriculture » au total anthropique (Citepa, 2019)	Total France (secteurs anthropiques) (Citepa, 2019)	Autres principaux secteurs anthropiques émetteurs	Sources naturelles
Élevage (virus...) Cultures, sylviculture : pollens allergisants Maladies des plantes (spores, virus)	Indisponible	Espaces verts	Végétation naturelle, forêts

Impacts					
Chimie atmosphérique	Climat	Santé humaine	Vie animale	Végétation	Sols
*		**	*		
Multiplés : noyaux de condensation, chimie hétérogène	Non identifié (<i>a priori</i> faible)	Population générale : allergies polliniques et fongiques (rhinite, conjonctivite, troubles respiratoires)	Élevage : possible transmission de maladies accrue en milieu confiné	Après dépôt : infections par des maladies fongiques ou bactériennes Pour les cultures : contamination pollinique flux de (trans)gènes Perte de biodiversité	

Réglementation
Existence d'une réglementation sur les plantes invasives

» Produits phytopharmaceutiques (PPP)

Ligne d'identité			
Description	État	Primaire/secondaire	
<p>Comprend plusieurs centaines de molécules actives. La plupart sont des composés organiques appartenant à diverses familles chimiques, certains sont des organométalliques, et quelques PPP sont des composés inorganiques</p> <p>NB : même si tous les pesticides sont susceptibles d'être présents dans l'atmosphère, cet ouvrage se concentre sur les PPP. Ces derniers couvrent les préparations destinées à protéger les végétaux et les produits de cultures (règlement CE n° 1107/2009). Ce sont les fongicides, herbicides, insecticides, etc., utilisés en agriculture. Les pesticides hors PPP sont par exemple les antibiotiques ou antiparasitaires à usage vétérinaire ou médical.</p>	PPP	Gaz et particule	Primaire

Sources primaires			
Agriculture % contribution du secteur « Agriculture » au total anthropique (Citepa, 2019)	Total France (secteurs anthropiques) (Citepa, 2019)	Autres principaux secteurs anthropiques émetteurs	Sources naturelles
Protection des cultures	Indisponible mais secteur largement majoritaire	Entretien des voiries (rail, route), aéroport, jardinage NB : usages interdits pour l'entretien des espaces publics depuis janvier 2017 et pour les jardins amateurs depuis janvier 2019 (loi Labbé et loi de la transition énergétique pour la croissance verte)	

Impacts					
Chimie atmosphérique	Climat	Santé humaine	Vie animale	Végétation	Sols
NB : l'intensité des impacts dépend des composés et de la proximité des traitements. La voie respiratoire n'est qu'une voie d'exposition parmi d'autres (alimentation, boisson, contact cutané...).					
Réactivité chimique ou photochimique directe (lumière) et indirecte (O ₃ , radicaux OH, NO ₃ , etc.) dans toutes les phases atmosphériques	Peu connu, sans doute faible	Exposition professionnelle et de la population (générale, riverains des zones d'application) Présomption d'effets cancérogènes, génotoxiques, neurodégénératifs, reprotoxiques ou sur le développement, et perturbation endocrinienne	Selon l'écotoxicité du composé, augmentation de la morbidité ou mortalité chez certaines espèces, perte de biodiversité	Selon les composés, perte de biodiversité, phytotoxicité	Contamination des sols de parcelles traitées, perte de biodiversité (microflore, mésofaune)

Réglementation

Autorisations de mise sur le marché (AMM)

Concernant les concentrations dans l'atmosphère et les émissions : pas de réglementation

Références bibliographiques

- Abis L., Loubet B., Ciuraru R. *et al.*, 2018. Profiles of volatile organic compound emissions from soils amended with organic waste products. *Sci. Total Environ.*, 636, 1333-1343.
- Ademe, 2015. Agriculture et environnement : des pratiques clefs pour la préservation du climat des sols et de l'air et les économies d'énergie. Fiche « Cultiver des légumineuses pour réduire l'utilisation d'intrants de synthèse ».
- Afsset, 2009. Pollution par les particules dans l'air ambiant. Synthèse des éléments sanitaires en vue d'un appui à l'élaboration de seuils d'information et d'alerte du public pour les particules dans l'air ambiant. Avis de l'Agence française de sécurité sanitaire de l'environnement et du travail. Rapport d'expertise collective n° 2009, Saisine Afsset n° 2007/006.
- Ahmed S., 2015. Air Pollution and its impacts on agricultural crops in developing countries. A review. *J. Anim. Plant Sci.*, 25, 297-302.
- Ainsworth E.A., Yendrek C.R., Sitch S. *et al.*, 2012. The effects of tropospheric ozone on net primary productivity and implications for climate change. *Ann. Rev. Plant Biol.*, 63, 637-661.
- Amiet E., 2018. *La riveraineté à l'épreuve des pesticides. Analyse exploratoire d'un risque diffus*, Marseille, Éditions la Discussion.
- Anses, 2014a. Avis de l'Anses relatif à une demande d'appui scientifique pour réévaluer le dispositif réglementaire destiné à protéger les riverains des zones traitées avec des produits phytosanitaires. Rapport n° 2013-SA-0206, Maisons-Alfort, Anses.
- Anses, 2014b. État des connaissances sur l'impact sanitaire lié à l'exposition de la population générale aux pollens présents dans l'air ambiant. Rapport n° 2011-SA-0151, Maisons-Alfort, Anses.
- Anses, 2016. Expositions professionnelles aux pesticides en agriculture. Volume 1. Volume central. Rapport n° 2011-SA-0192, Maisons-Alfort, Anses.
- Anses, 2017. Proposition de modalités pour une surveillance des pesticides dans l'air ambiant. Rapport n° 2014-SA-0200, Maisons-Alfort, Anses.
- Apel E., Brauers T. *et al.*, 2008. Intercomparison of oxygenated volatile organic compound measurements at the SAPHIR atmosphere simulation chamber. *J. Geophys. Res. Atmos.*, 113 (D20).
- Arts G.H.P., Velde G., Roelofs J.G.M. *et al.*, 1990. Successional changes in the soft-water macrophyte vegetation of (sub)atlantic sandy lowland regions during this century. *Freshwater Biol.*, 24, 287-294.
- Ashmore M., 2005. Assessing the future global impacts of ozone on vegetation. *Plant Cell Environ.*, 28, 949-964.
- Ashworth K., Chung S.H., Griffin R.J. *et al.*, 2015. Forest Canopy Atmosphere Transfer (FORCAsT) 1.0: a 1-D model of biosphere-atmosphere chemical exchange. *Geosci. Model Dev.*, 8, 3765-3784.
- Asman W.A.H., Hertel O., Berkowicz R. *et al.*, 1995. Atmospheric nitrogen input to the Kattegat. *Ophelia*, 42, 5-28.
- Asman W.A.H., Sutton M.S., Schjoerring J.K., 1998. Ammonia: emission, atmospheric transport, and deposition. *New Phytol.*, 139, 27-48.
- Atkinson R., Arey J., 2003. Atmospheric degradation of volatile organic compounds. *Chem. Rev.*, 103, 4605-4638.
- Aubinet M., Grelle A., Ibrom A. *et al.*, 2000. Estimates of the annual net carbon and water exchange of forests: the EUROFLUX methodology. *Adv. Ecol. Res.*, 30, 113-175.

- Aylor D.E., 2017. *Aerial Dispersal of Pollen and Spores*, 1st edition, American Phytopathological Society St. Paul MN.
- Azouz N. 2017. Modélisation des flux d'ammoniac aux échelles locale et régionale dans des paysages hétérogènes : application à l'évaluation des dépassements des charges critiques. Thèse de l'université Pierre et Marie Curie, Paris VI.
- Bachy A., Aubinet M., Amelynck C. *et al.*, 2018. Methanol exchange dynamics between a temperate cropland soil and the atmosphere. *Atmos. Environ.*, 176, 229-239.
- Backes A.M., Aulinger A., Bieser J. *et al.*, 2016. Ammonia emissions in Europe part II: How ammonia emission abatement strategies affect secondary aerosols. *Atmos. Environ.*, 126, 153-161.
- Baldini C., Borgonovo F., Gardoni D. *et al.*, 2016. Comparison among NH₃ and ghgs emissive patterns from different housing solutions of dairy farms. *Atmos. Environ.*, 141, 60-66.
- Baldocchi D.D., 2003. Assessing the eddy covariance technique for evaluating carbon dioxide exchange rates of ecosystems: past present and future. *Global Change Biol.*, 9, 479-492.
- Balsari P., Airoidi G., Dinuccio E. *et al.*, 2007. Ammonia emissions from farmyard manure heaps and slurry stores. Effect of environmental conditions and measuring methods. *Biosyst. Eng.*, 97 (4), 456-463.
- Barbault R., Weber J., 2010. *La vie quelle entreprise ! Pour une révolution écologique de l'économie*, Paris, Le Seuil.
- Barker Z., Venkatchalamb V., Martin A.N. *et al.*, 2010. Detecting trace pesticides in real time using single particle aerosol mass spectrometry. *Anal. Chim. Acta.*, 661, 188-194.
- Barles S., 2010. De l'hygiénisme à la santé environnementale : regards sur la ville. *Pollution atmosphérique*, n° spécial « Environnement et santé, question de société ».
- Barnes I., Rudziński K.J., 2013. *Disposal of Dangerous Chemicals in Urban Areas and Mega Cities: Role of Oxides and Acids of Nitrogen in Atmospheric Chemistry*, Springer.
- Baró F., Chaparro L., Gómez-Baggethun E. *et al.*, 2014. Contribution of ecosystem services to air quality and climate change mitigation policies: the case of urban forests in Barcelona, Spain. *AMBIO*, 43, 466-479.
- Barthlott W., Neinhuis C., Cutler D. *et al.*, 1998. Classification and terminology of plant epicuticular waxes. *Bot. J. Linnean. Soc.*, 126, 237-260.
- Bartomeus I., Potts S.G., Steffan-Dewenter I. *et al.*, 2014. Contribution of insect pollinators to crop yield and quality varies with agricultural intensification. *Peer J.*, 2:e328.
- Bash J.O., Cooter E.J., Dennis R.L. *et al.*, 2013. Evaluation of a regional air-quality model with bidirectional NH₃: exchange coupled to an agroecosystem model. *Biogeosciences*, 10, 1635-1645.
- Bealey W.J., Dore A.J., Dragosits U. *et al.*, 2016. The potential for tree planting strategies to reduce local and regional ecosystem impacts of agricultural ammonia emissions. *J. Environ. Manage.*, 165, 106-116.
- Bealey W.J., Loubet B., Braban C.F. *et al.*, 2014. Modelling agro-forestry scenarios for ammonia abatement in the landscape. *Environ. Res. Lett.*, 9, 125001.
- Beaujouan V., Durand P., Ruiz L. *et al.*, 2002. A hydrological model dedicated to topography-based simulation of nitrogen transfer and transformation: rationale and application to the geomorphology-denitrification relationship. *Hydrol. Processes.*, 16, 493-507.
- Becerra T.A., Wilhelm M., Olsen J. *et al.*, 2012. Ambient air pollution and autism in Los Angeles County California. *Environ. Health Perspect.*, 121, 380-386.
- Bedia J., Herrera S., Camia A. *et al.*, 2014. Forest fire danger projections in the Mediterranean using ENSEMBLES regional climate change scenarios. *Clim. Change*, 122, 185-199.
- Bedos C., Loubet B., Barriuso E., 2013. Gaseous deposition contributes to the contamination of surface waters by pesticides close to treated fields. A process-based model study. *Environ. Sci. Technol.*, 47, 14250-14257.
- Bedos C., Générumont S., Le Cadre E. *et al.*, 2009. Modelling pesticide volatilization after soil application using the mechanistic model Volt'Air. *Atmos. Environ.*, 43, 3630-3639.

- Bedos C., Loubet B., Decuq C. *et al.*, 2016. Contamination des eaux de surface par les pesticides : extension et évaluation d'un outil d'évaluation de la part des apports aériens. Rapport final de projet financé par l'Onema (Action n° 27), 74 p.
- Bedos C., Rousseau-Djabri M.F., Gabrielle B. *et al.*, 2006. Measurement of trifluralin volatilization in the field: relation to soil residue and effect of soil incorporation. *Environ. Poll.*, 144, 958-966.
- Belis C.A. *et al.*, 2014. *European Guide on Air Pollution Source Apportionment with Receptor Models*, Publications Office.
- Benoit P., Alletto L., Barriuso E. *et al.*, 2014. Travail du sol et risques de transfert de produits phytosanitaires. In : *Faut-il travailler le sol ? Acquis et innovations pour une agriculture durable* (J. Labreuche, F. Laurent, J. Roger-Estrade, eds), Versailles, Éditions Quæ, 127-141.
- Berger G., Graef F., Pfeffer H., 2013. Glyphosate applications on arable fields considerably coincide with migrating amphibians. *Sci. Rep.*, 2622.
- Bergstrom R., Hallquist M., Simpson D. *et al.*, 2014. Stress: a significant contributor to organic aerosol in Europe? *Atm. Chem. Phys.*, 14, 13643-13660.
- Berntsen J., Petersen B., Jacobsen B. *et al.*, 2003. Evaluating nitrogen taxation scenarios using the dynamic whole farm simulation model FASSET. *Agric. Syst.*, 76, 817-839.
- Bess M., 2003. *The Light-Green Society. Ecology and Technological Modernity in France, 1960-2000*, Chicago and London, The University of Chicago Press.
- Bessagnet B., Beauchamp M., Guerreiro C. *et al.*, 2014. Can further mitigation of ammonia emissions reduce exceedances of particulate matter air quality standards? *Environ. Sci. Pol.*, 44, 149-163.
- Beuning J.D., Pattey E., Edwards G. *et al.*, 2008. Improved temporal resolution in process-based modelling of agricultural soil ammonia emissions. *Atmos. Environ.*, 42, 3253-3265.
- Biesmeijer J.C., 2006. Parallel declines in pollinators and insect-pollinated plants in Britain and the Netherlands. *Science*, 313, 351-354.
- Bobbink R., Hettelingh J.P. (eds), 2011. *Review and Revision of Empirical Critical Loads and Dose-Response Relationships*, Coordination Centre for Effects National Institute for Public Health and the Environment (RIVM), www.rivm.nl/cc, 246 p.
- Bobbink R., Hornung M., Roelofs J.G.M., 1998. The effects of air-borne nitrogen pollutants on species diversity in natural and semi-natural European vegetation. *J. Ecol.*, 86, 717-738.
- Bockstaller C., Feschet P., Angevin F., 2015. Issues in evaluating sustainability of farming systems with indicators. *OCL*, 22, 12 p.
- Bockstaller C., Guichard L., Makowski D. *et al.*, 2008. Agri-environmental indicators to assess cropping and farming systems. A review. *Agron. Sustain. Dev.*, 28, 139-149.
- Bockstaller C., Vertès F., Aarts F. *et al.*, 2012. Méthodes d'évaluation environnementale et choix des indicateurs. In : *Les flux d'azote liés aux élevages réduire les pertes rétablir les équilibres* (J.-L. Peyraud, P. Cellier, coord.), expertise scientifique collective, rapport Inra, France, 335-412.
- Boge O., Miao Y., Plewka A. *et al.*, 2006. Formation of secondary organic particle phase compounds from isoprene gas-phase oxidation products: an aerosol chamber and field study. *Atmos. Environ.*, 40, 2501-2509.
- Boiffin J., Laurent F., Richard G., à paraître. *Réussir l'implantation des cultures. Enjeux agro-écologiques, itinéraires techniques*, Versailles, Éditions Quæ.
- Borrás E., Ródenas M., Vera T. *et al.*, 2015. Use of high-volume outdoor smog chamber photo-reactors for studying physical and chemical atmospheric aerosol formation and composition. IOP Conf. Ser: *Earth Environ. Sci.*, 28, 012004.
- Borrás E., Tortajada-Genaro L.A. *et al.*, 2016. Determination of reduced sulfur compounds in air samples for the monitoring of malodor caused by landfills. *Talanta*, 148, 472-477.
- Boserup E., 1965. *The Conditions of Cultural Growth. The Economics of Agrarian Change Under Population Pressure*, London, George Allen and Unwin Ltd.
- Bourgeois L., Demotes-Mainard M., 2000. Les cinquante ans qui ont changé l'agriculture française. *Économie rurale* (255-256), 14-20.

- Bousquet P., Ciais P., Miller J.B. *et al.*, 2006. Contribution of anthropogenic and natural sources to atmospheric methane variability. *Nature*, 443, 439-443.
- Bouvet T., Wilson J.D., 2006. An approximate analytical solution for the deposition of heavy particles released from an elevated line source. *Bound Layer Met.*, 119, 1-18.
- Bouvet T., Loubet B., Wilson J.D. *et al.*, 2007. Filtering of windborne particles by a natural wind-break. *Boundary-Layer Meteorology*, 123, 481-509.
- Bouvier F., Rahier A., Camara B., 2005. Biogenesis molecular regulation and function of plant isoprenoids. *Prog. Lipid. Res.*, 44, 357-429.
- Boy M., Sogachev A., Lauros J. *et al.*, 2011. SOSA. A new model to simulate the concentrations of organic vapours and sulphuric acid inside the ABL. Part 1: Model description and initial evaluation. *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 43-51.
- Brereton T., Roy D.B., Middlebrook I. *et al.*, 2011. The development of butterfly indicators in the United Kingdom and assessments in 2010. *J. Insect. Cons.*, 15, 139-151.
- Brilli L., Bechini L., Bindi M. *et al.*, 2017. Review and analysis of strengths and weaknesses of agroecosystem models for simulating C and N fluxes. *Sci. Total Environ.*, 598, 445-470.
- Brimblecombe P., 1987. *The Big Smoke. A History of Air Pollution in London since Medieval Times*, Metheuen & Co, London.
- Brinton W.F., 1998. Volatile organic acids in compost: production and odorant aspects. *Compost Sci. Util.*, 6, 75-82.
- Brisson N., Gary C., Justes E. *et al.*, 2003. An overview of the crop model Stics. *Eur. J. Agron.*, 18, 309-332.
- Broberg M.C., Uddling J., Mills G. *et al.*, 2017. Fertilizer efficiency in wheat is reduced by ozone pollution. *Sci. Total Environ.*, 607-608, 876-880.
- Bromilow R.H., Chamberlain K., 1991. Pathways and mechanisms of transport of herbicides in plants. In: *Target Sites for Herbicide Action* (Kirkwood R.C., ed.), Springer, Boston, 245-284.
- Brouwer E., Bobbink R., Meeuwsen F. *et al.*, 1997. Recovery from acidification in aquatic mesocosms after reducing ammonium and sulphate deposition. *Aquat. Bot.*, 56, 119-130.
- Brunekreef B., Harrison R.M., Künzli N. *et al.*, 2015. Reducing the health effect of particles from agriculture. *Lancet Resp. Med.*, 3, 831-832.
- Buis S., Piacentini A., Déclat D., the PALM Group, 2006. PALM: a computational framework for assembling high-performance computing applications. *Concurr. Comp-Pract. E*, 18, 231-245.
- Burkart M.R., James D.E., 1999. Agricultural-nitrogen contributions to hypoxia in the Gulf of Mexico. *J. Environ. Qual.*, 28, 850-859.
- Burkhardt J., Flechard C., Gresens F. *et al.*, 2009. Modeling the dynamic chemical interactions of atmospheric ammonia and other trace gases with measured leaf surface wetness in a managed grassland canopy. *Biogeosci.*, 6, 67-83.
- Burns S.P., Sun J., Lenschow D.H. *et al.*, 2011. Atmospheric stability effects on wind fields and scalar mixing within and just above a subalpine forest in sloping terrain. *Bound Layer Meteorol.*, 138, 231-262.
- Calderón-Garcidueñas L., Kulesza R.J., Doty R.L. *et al.*, 2015. Megacities air pollution problems: Mexico City Metropolitan Area critical issues on the central nervous system pediatric impact. *Environ. Res.*, 137, 157-169.
- Calfapietra C., Wiberley A.E., Falbel T.G. *et al.*, 2007. Isoprene synthase expression and protein levels are reduced under elevated O₃ but not under elevated CO₂ (FACE) in field-grown aspen trees. *Plant. Cell. Environ.*, 30, 654-661.
- Calvet R., 2013. *Le sol*, Paris, Éditions France agricole, 678 p.
- Calvet R., Barriuso E., Bedos C. *et al.*, 2005. *Les pesticides dans le sol. Conséquences agronomiques et environnementales*, Paris, Éditions France agricole, 637 p.
- Campiche S., Becker-Van Slooten K., Ridreau C. *et al.*, 2006. Effects of insect growth regulators on the nontarget soil arthropod *Folsomia candida* (Collembola). *Ecotox. Environ. Safety.*, 63, 216-225.

- Canagaratna M.R., Jayne J.T., Jimenez J.L., Allan J.D. *et al.*, 2007. Chemical and microphysical characterization of ambient aerosols with the aerodyne aerosol mass spectrometer. *Mass Spectrom Rev.*, 26, 185-222.
- Capillon A., Gabrielle B., Girardin P. *et al.*, 2005. *Méthodes d'évaluation des impacts environnementaux des pratiques agricoles*, Paris, France, Inra, département Environnement et Agronomie, 51 p.
- Carson R., 1962. *Silent Spring*, Houghton Mifflin Company, Boston.
- Carter W.P.L., 2010. Development of the SAPRC-07 chemical mechanism. *Atmos. Environ.*, 44, 5324-5335.
- Castell J.F., Le Thiec D., 2016. Impacts de l'ozone sur l'agriculture et les forêts et estimation des coûts économiques. *Pollution atmosphérique*, 229-230, 128-138.
- Castillo A.R., Kebreab E., Beever D.E., France J., 2000. A review of efficiency of nitrogen utilization in lactating dairy cows and its relationship with environmental pollution. *J. Anim. Feed Sci.*, 9, 1-32.
- Catoire V., Krysztofiak G., Robert C. *et al.*, 2015. An airborne infrared laser spectrometer for in-situ trace gas measurements: application to tropical convection case studies. *Atmos. Meas. Tech. Discuss.*, 8, 9165-6207.
- CEE-NU, 2014. Document d'orientation pour la prévention et la réduction des émissions d'ammoniac provenant des sources agricoles. ECE/EB.AIR/120, 110 p.
- CEH, 2009. *Countryside Survey: England Results from 2007* (No. CEH Project Number: C03259), NERC/Centre for Ecology & Hydrology Department for Environment Food and Rural Affairs Natural, England.
- Cellier P., 2017. Cycle biogéochimique du soufre. In : *Guide de la fertilisation raisonnée* (B. Colomb), Éditions France Agricole, coll. AgriProduction, 120-129.
- Cellier P., Générumont S., 2016. L'agriculture, entre pollution atmosphérique et changement climatique. *Pollution atmosphérique*, 229-230, 64-75.
- Ceschia E., Mary B., Ferlicoq M. *et al.*, 2017. Potentiel d'atténuation des changements climatiques par les couverts intermédiaires. *Innovations agronomiques*, 62, 43-58.
- Chacon-Madrid H.J., Donahue N.M., 2011. Fragmentation vs. functionalization: chemical aging and organic aerosol formation. *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 10553-10563.
- Channabasava A., Lakshman H.C., Jorquera M., 2015. Effect of fungicides on association of arbuscular mycorrhiza fungus *Rhizophagus fasciculatus* and growth. *J. Soil Sci. Plant Nut.*, version on-line ISSN 0718-9516.
- Charbonnier E., Ronceux A., Carpentier A.-S. *et al.*, 2015. *Pesticides. Des impacts aux changements de pratiques. Bilan de quinze années de recherche pour éclairer la décision publique*, Versailles, Éditions Quæ, 400 p.
- Charles L., 2014. Environnement santé : genèse d'un questionnaire. *Pollution atmosphérique*, (222).
- Charles L., 2016. Agriculture qualité de l'air environnement : une mise en perspective globale. *Pollution atmosphérique*, 229-230, 9-28.
- Charvolin F., Frioux S., Kamoun L., Méléard F., Roussel I., 2015. *Un air familier ? Sociohistoire des pollutions atmosphériques*, Paris, Presses des Mines.
- Chevrier F., 2016. Chauffage au bois et qualité de l'air en vallée de l'Arve : définition d'un système de surveillance et impact d'une politique de rénovation du parc des appareils anciens. Thèse, Université Grenoble-Alpes.
- Chuwah C., van Noije T., van Vuuren D.P. *et al.*, 2013. Implications of alternative assumptions regarding future air pollution control in scenarios similar to the Representative Concentration Pathways. *Atmos. Environ.*, 79, 787-801.
- CIRC, 2016. *Outdoor Air Pollution. IARC Monographs on the Evaluation of Carcinogenic Risks to Humans*, Centre international de recherche sur le cancer.
- Citepa, 2017. Inventaire EMEP spatialisé 2015.

- Citepa, 2018. www.citepa.org.
- Citepa, 2019a. Rapport national d'inventaire des émissions de polluants atmosphériques en France au titre de la Convention sur la pollution atmosphérique transfrontalière à longue distance et de la directive européenne concernant la réduction des émissions nationales de certains polluants atmosphériques (rapport CEE-NU).
- Citepa, 2019b. Rapport national d'inventaire pour la France au titre de la Convention-cadre des Nations unies sur les changements climatiques et du Protocole de Kyoto (rapport CCNUCC).
- Citepa, 2019c. Le guide des bonnes pratiques agricoles pour l'amélioration de la qualité de l'air. Étude réalisée pour le compte de l'Ademe, 56 p.
- Claeys M., Graham B., Vas G. *et al.*, 2004. Formation of secondary organic aerosols through photo-oxidation of isoprene. *Science*, 303 (5661), 1173-1176.
- Clarisse L., Coheur P.-F., Prata F. *et al.*, 2013. A unified approach to infrared aerosol remote sensing and type specification. *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 2195-2221.
- Clerbaux C., Boynard A., Clarisse L. *et al.*, 2009. Monitoring of atmospheric composition using the thermal infrared IASI/metop sounder *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 6041-6054.
- Clifford A., Lang L., Chen R. *et al.*, 2016. Exposure to air pollution and cognitive functioning across the life course. A systematic literature review. *Environ. Res.*, 147, 383-398.
- Coheur P.-F., Clarisse L., Turquety S. *et al.*, 2009. IASI measurements of reactive trace species in biomass burning plumes *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 5655-5667.
- Colomb V., Ait Amar S., Basset Mens C. *et al.*, 2015. Database for agricultural products: high quality data for producers and environmental labelling. *OCL*, 22.
- Comifer, 2013. *Calcul de la fertilisation azotée. Guide méthodologique pour l'établissement des prescriptions locales pour les cultures annuelles et les prairies*, Paris, Comifer, 159 p.
- Conway G., 1997. *The Doubly Green Revolution. Food for All in the Twenty-First Century*, London, Penguin Books.
- Conway G., Carsalade H., Griffon M. *et al.*, 1994. *Une agriculture durable pour la sécurité alimentaire mondiale*, Paris, Cirad-URPA/Ecopol.
- Corpen, 2001. *Les émissions d'ammoniac d'origine agricole dans l'atmosphère. État des connaissances et perspectives de réduction des émissions*, Paris, Ministère de l'Aménagement durable et de l'Environnement/Ministère de l'Agriculture et de la Pêche.
- Corpen, 2003. *Estimation des rejets d'azote phosphore potassium cuivre et zinc des porcs. Influence de la conduite alimentaire et du mode de logement des animaux sur la nature et la gestion des déjections produites*, Paris, Ministère de l'Agriculture et de la Pêche, 41 p.
- Corpen, 2006. *Des indicateurs AZOTE pour gérer des actions de maîtrise des pollutions à l'échelle de la parcelle de l'exploitation et du territoire*, Paris, Ministère de l'Écologie et du Développement durable.
- Corso M., Pascal M., Wagner V. *et al.*, 2015. Impact à court terme des particules en suspension (PM₁₀) sur la mortalité dans 17 villes françaises 2007-2010. *Bull. Epidemiol. Hebd.*, 14-20.
- Couvidat F., Sartelet K., 2015. The Secondary Organic Aerosol Processor (SOAP v1.0) model: a unified model with different ranges of complexity based on the molecular surrogate approach. *Geosci. Model Dev.*, 8, 1111-1138.
- Crawford I., Ruske S., Topping D.O., Gallagher M.W., 2015. Evaluation of hierarchical agglomerative cluster analysis methods for discrimination of primary biological aerosol. *Atmos. Meas. Tech.*, 8, 4979-4991.
- Cui X., Lengignon C., Tao W. *et al.*, 2012. Photonic sensing of the atmosphere by absorption spectroscopy. *J. Quant. Spect. Rad. Trans.*, 113, 1300-1316.
- Daguet F., 1996. La population de la France. Une croissance sans précédent depuis 1946. *Insee Première*, (444).
- Dambrine E., Party J.-P., Pollier B. *et al.*, 1999. Acidification des eaux de source et saturnisme dans le Massif vosgien. *Rev. Forest Franc.*, 2, 173-183.
- Deaton A., 2016. *La grande évasion. Santé richesse et origine des inégalités*, Paris, PUF.

- DeBach P., Huffaker C.B., 1971. Experimental techniques for evaluation of the effectiveness of natural enemies. In: *Biological Control* (C.B. Huffaker, ed.), Springer US Boston MA, 113-140.
- Delcour I., Spanoghe P., Uyttendaele M., 2015. Literature review: impact of climate change on pesticide use. *Food Research International*, 68, 7-15.
- Delmas R., Mégie G., Peuch V.-H. (eds), 2005. *Physique et chimie de l'atmosphère. Échelles*, Paris, Belin.
- Delon C., Serça D., Boissard C. *et al.*, 2007. Soil NO emissions modelling using artificial neural network. *Tellus B*, 59, 502-513.
- Desriens M., 2007. L'agriculture française depuis cinquante ans : des petites exploitations familiales aux droits à paiement unique. *Cahiers Agriste* (3).
- Devillers J., Farret R., Girardin P. *et al.*, 2005. *Indicateurs pour évaluer les risques liés à l'utilisation des pesticides*, Londres Paris New York, Lavoisier, 280 p.
- Diamond J., 1987. The worst mistake in the history of the human race. *Discover Magazine*.
- Diamond J., 1997. *De l'inégalité parmi les sociétés : essai sur l'homme et l'environnement dans l'histoire*, Paris, Gallimard.
- Doreau M., Ferlay A., 1995. Effect of dietary lipids on nitrogen metabolism in the rumen: a review. *Livestock Prod. Sci.*, 43, 97-110.
- Doreau M., Martin C., Eugène M. *et al.*, 2011. Leviers d'action pour réduire la production de méthane entérique par les ruminants. *Inra Productions animales* (J.M. Perez, ed), 24 (5), 461-474.
- Dourmad J.Y. (coord.), Levasseur P. (coord.), Daumer M. *et al.*, 2016. *Évaluation des rejets d'azote, phosphore, potassium, cuivre et zinc des porcs*, Paris, RMT Élevages et Environnement, 26 p.
- Dragosits U., Theobald M.R., Place *et al.*, 2006. The potential for spatial planning at the landscape level to mitigate the effects of atmospheric ammonia deposition. *Environ Sci. Pol.*, 9, 626-638.
- Drewnick F., Dall'Osto M., Harrison R.M., 2008. Characterization of aerosol particles from grass mowing by joint deployment of ToF-AMS and ATOFMS instruments. *Atmos. Environ.*, 42 (13), 3006-3017.
- Drouet J.-L., Duret S., Durand P. *et al.*, 2012. Modelling the contribution of short-range atmospheric and hydrological transfers to nitrogen fluxes budgets and indirect emissions in rural landscapes. *Biogeosci.*, 9, 1647-1660.
- Drylie M., Salali G.D., Chaudhary N., Page A., Smith D., Thompson J., Vinicius L., Mace R., Migliano A.B., 2015. Sex equality can explain the unique social structure of hunter-gatherer bands. *Science*, 348 (6236), 796-798.
- Duby G., 1975. Avant-propos. *Histoire de la France rurale. 1. Des origines à 1340* (G. Duby, A. Wallon), Paris, Le Seuil.
- Duby G., 1978. *Les trois ordres, ou l'imaginaire du féodalisme*, Paris, Gallimard.
- Dudareva N., Klempien A., Muhlemann J.K. *et al.*, 2013. Biosynthesis function and metabolic engineering of plant volatile organic compounds. *New Phytol*, 198, 16-32.
- Dufumier M., 2012. *Famine au Sud, malbouffe au Nord. Comment le bio peut nous sauver*, Paris, NiL Éditions, 196 p.
- Dungait J.A.J., Hopkins D.W., Gregory A.S. *et al.*, 2012. Soil organic matter turnover is governed by accessibility not recalcitrance. *Global Change Biol.*, 18, 1781-1796.
- Dupont S., Brunet Y., Jarosz N., 2006. Eulerian modelling of pollen dispersal over heterogeneous vegetation canopies. *Agric. Forest Meteorol.*, 141, 82-104.
- Duret S., Drouet J.L., Durand P. *et al.*, 2011. NitroScape: a model to integrate nitrogen transfers and transformations in rural landscapes. *Environ. Poll.*, 159, 3162-3170.
- EEA, 1999a. *EMEP/CORINAIR Atmospheric Emission Inventory Guidebook*, Second Edition 1999, Publication EEA, <http://www.eea.europa.eu/publications/EMEP/CORINAIR>.
- EEA, 1999b. Environmental indicators: typology and overview. Tech. Report 25, 19 p., <https://www.eea.europa.eu/publications/TEC25>.

- EEA, 2012. Air quality in Europe, 2012 Report, 104 p., <http://www.eea.europa.eu/publications/air-quality-in-europe-2012>.
- EFSA, 2014. Guidance on the assessment of exposure of operators workers residents and bystanders in risk assessment for plant protection products. *EFSA Journal*, Parma, EFSA.
- Elias N., 1985. *La société de cour*, Paris, Flammarion.
- Ellis A.M., Mayhew C.A., 2013. Front Matter. In: *Proton Transfer Reaction Mass Spectrometry* (A.M. Ellis, C.A. Mayhew, eds), Wiley Online Library, doi:10.1002/9781118682883.fmatter.
- Emberson L.D., Ashmore M.R., Cambridge H.M. *et al.*, 2000. Modelling stomatal ozone flux across Europe. *Environ. Pollut.*, 109, 403-413.
- Emberson L.D., Ashmore M.R., Murray F. *et al.*, 2001. Impacts of air pollutants on vegetation in developing countries. *Water Air Soil Poll.*, 130, 107-118.
- Emberson L.D., Pleijel H., Ainsworth E.A. *et al.*, 2018. Ozone effects on crops and consideration in crop models. *Eur. J. of Agron.*, 100, 19-34.
- Enami S., Hoffmann M.R., Colussi A.J., 2008. Acidity enhances the formation of a persistent ozonide at aqueous ascorbate/ozone gas interfaces. *PNAS*, 105, 7365-7369.
- EPA, 1994. Emission factor documentation for AP-42 section 9.2.2 Pesticide Application. Final Report, 75 p.
- Erismann J.W., Galloway J., Seitzinger S. *et al.*, 2011. Reactive nitrogen in the environment and its effect on climate change. *Curr. Op. Environ. Sustain.*, 3, 281-290.
- Erismann J.W., Sutton M.A., Galloway J.N. *et al.*, 2008. How a century of ammonia synthesis changed the world. *Nat. Geosci.*, 1, 636-639.
- Espagnol S., Guingand N., Générumont S. *et al.*, 2015. Efficacité sur les émissions gazeuses d'itinéraires techniques en élevage porcin intégrant des bonnes pratiques environnementales. Paper presented at the 47^{es} Journées de la Recherche porcine, Paris.
- Eugène M., Sauvant D., Nozière P. *et al.*, 2019. A new Tier 3 method to calculate methane emission inventory for ruminants. *J. Environ. Manag.*, 231, 982-988.
- Ewert F., Porter J.R., 2000. Ozone effects on wheat in relation to CO₂: modelling short-term and long-term responses of leaf photosynthesis and leaf duration. *Global Change Biol.*, 6, 735-750.
- Faburé J., Rogier S., Loubet B. *et al.*, 2011. Synthèse bibliographique sur la contribution de l'agriculture à l'émission de particules vers l'atmosphère : identification de facteurs d'émission. Rapport final projet de recherche Inra-Ademe, 164 p.
- Faiola C.L., VanderSchelden G.S., Wen M. *et al.*, 2014. SOA Formation potential of emissions from soil and leaf litter. *Environ. Sci. Technol.*, 48, 938-946.
- Faiola C.L., Wen M., VanReken T.M., 2015. Chemical characterization of biogenic secondary organic aerosol gassadenerated from plant emissions under baseline and stressed conditions: inter- and intra-species variability for six coniferous species. *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 3629-3646.
- Fangmeier A., Hadwiger-Fangmeier A., Van der Eerden L. *et al.*, 1994. Effects of atmospheric ammonia on vegetation. A review. *Environ. Poll.*, 86, 43-82.
- Feber R.E., Johnson P.J., Firbank L.G. *et al.*, 2007. A comparison of butterfly populations on organically and conventionally managed farmland. *J. Zool.*, 273, 30-39.
- Feilberg A., Bildsoe P., Nyord T., 2015. Application of PTR-MS for measuring odorant emissions from soil application of manure slurry. *Sensors*, 15, 1148-1167.
- Fenn M.E., Poth M.A., Aber J.D. *et al.*, 1998. Nitrogen excess in North American ecosystems: predisposing factors ecosystem responses and management strategies. *Ecol. Appl.*, 8, 706-733.
- Ferrara R.M. *et al.*, 2012. Eddy covariance measurement of ammonia fluxes: comparison of high frequency correction methodologies. *Agric. For Meteorol.*, 158, 30-42.
- Feyisa G.L., Dons K., Meilby H., 2014. Efficiency of parks in mitigating urban heat island effect: an example from Addis Ababa. *Landscape Urban Plan.*, 123, 87-95.
- Finco A., Coyle M., Nemitz E. *et al.*, 2018. Characterization of ozone deposition to a mixed oak-hornbeam forest-flux measurements at five levels above and inside the canopy and their interactions with nitric oxide. *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 17945-17961.

- Finlayson-Pitts B.J., Pitts J.N., 1997. Tropospheric air pollution: ozone airborne toxics polycyclic aromatic hydrocarbons and particles. *Science*, 276, 1045-1052.
- Flechar C.R., Fowler D., Sutton M.A. *et al.*, 1999. A dynamic chemical model of bi-directional ammonia exchange between semi-natural vegetation and the atmosphere. *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 125, 2611-2641.
- Flechar C.R., Massad R.-S., Loubet B. *et al.*, 2013. Advances in understanding models and parameterizations of biosphere-atmosphere ammonia exchange. In: *Review and Integration of Biosphere-Atmosphere Modelling of Reactive Trace Gases and Volatile Aerosols* (M. Raia-Silva, B. Loubet, eds), Springer Netherlands Dordrecht, 11-84.
- Flechar C.R., Nemitz E., Smith R.I. *et al.*, 2011. Dry deposition of reactive nitrogen to European ecosystems: a comparison of inferential models across the NitroEurope network. *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 2703-2728.
- Flesch T.K., Wilson J.D., Harper L.A., 2005. Deducing ground-to-air emissions from observed trace gas concentrations: a field trial with wind disturbance. *J. Appl. Meteorol.*, 44, 475-484.
- Flesch T.K., Wilson J.D., Harper L.A. *et al.*, 2007. Determining ammonia emissions from a cattle feedlot with an inverse dispersion technique. *Agric. For Meteorol.*, 144, 139-155.
- Forkel R., Knoche R., 2006. Regional climate change and its impact on photooxidant concentrations in southern Germany: simulations with a coupled regional climate-chemistry model. *J. Geophys. Res.*, 111, D12302.
- Fortems-Cheiney A., Dufour G., Hamaoui-Laguel L. *et al.*, 2016. Unaccounted variability in NH₃ agricultural sources detected by IASI contributing to European spring haze episode: agricultural NH₃ Detected by IASI. *Geophys. Res. Lett.*, 43, 5475-5482.
- Fowler D., Pilegaard K., Sutton M.A. *et al.*, 2009. Atmospheric composition change: ecosystems-atmosphere interactions. *Atmos. Environ.*, 43, 5193-5267.
- Fowler D., Pitcairn C.E.R., Sutton M.A. *et al.*, 1998. The mass budget of atmospheric ammonia in woodland within 1 km of livestock buildings. *Environ. Poll.*, 102, S1, 343-348.
- Fröhlich-Nowoisky J., Kampf C.J., Weber B. *et al.*, 2016. Bioaerosols in the Earth system: climate health and ecosystem interactions. *Atm. Res.*, 182, 346-376.
- Fuchs H.S., Ball M. *et al.*, 2010. Intercomparison of measurements of NO₂ concentrations in the atmosphere simulation chamber SAPHIR during the NO₃Comp campaign. *Atmos. Meas. Tech.*, 3, 21-37.
- Fuchs H., Dorn H.-P. *et al.*, 2012. Comparison of OH concentration measurements by DOAS and LIF during SAPHIR chamber experiments at high OH reactivity and low NO concentration. *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 1611-1626.
- Fuhrer J., 1994. The critical level for ozone to protect agricultural crops. An assessment of data from European open-top chamber experiments. *Schriftenreihe FAC*, 16, 42-57.
- Fumagalli I., Gimeno B.S., Velissariou D. *et al.*, 2001. Evidence of ozone-induced adverse effects on crops in the Mediterranean region. *Atmos. Environ.*, 35, 2583-2587.
- Fureix E., Jarrige F., 2015. *La modernité désenchantée. Relire l'histoire du XIX^e siècle français*, Paris, La Découverte.
- Gabrielle B., Gagnaire N., 2008. Life-cycle assessment of straw use in bio-ethanol production: a case-study based on deterministic modelling. *Biomass Bioenerg.*, 32, 431-441.
- Gabrielle B., Laville P., Duval O. *et al.*, 2006. Process-based modeling of nitrous oxide emissions from wheat-cropped soils at the subregional scale. *Global Biogeochem. Cycles*, 20, GB4018.
- Galloway J.N., Aber J.D., Erisman J.W. *et al.*, 2003. The nitrogen cascade. *BioScience*, 53, 341-356.
- Galloway J.N., Dentener F.J., Capone D.G. *et al.*, 2004. Nitrogen cycles: past present and future. *Biogeochemistry*, 70, 153-226.
- Ganzeveld L.N., Lelieveld J., Dentener F.J. *et al.*, 2002a. Atmosphere-biosphere trace gas exchanges simulated with a single-column model. *J. Geophys. Res.*, 107, D116, 4297.
- Ganzeveld L.N., Lelieveld J., Dentener F.J. *et al.*, 2002b. Global soil-biogenic NO_x emissions and the role of canopy processes. *J. Geophys. Res.*, 107, D116, 4298.

- Garcia L., Bedos C., Générumont S. *et al.*, 2011. Assessing the ability of mechanistic volatilization models to simulate soil surface conditions: a study with the Volt'Air model. *Sci. Total Environ.*, 409, 3980-3992.
- Garcia L., Bedos C., Générumont S. *et al.*, 2014. Modeling pesticide volatilization: testing the additional effect of gaseous adsorption on soil solid surfaces. *Environ. Sci. Technol.*, 48, 4991-4998.
- Garcia L., Générumont S., Bedos C. *et al.*, 2012. Accounting for surface cattle slurry in ammonia volatilization models: the case of Volt'Air. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 76, 2184-2194.
- Gelencsér A., Siszler K., Hlavay J., 1997. Toluene-benzene concentration ratio as a tool for characterizing the distance from vehicular emission sources. *Environ. Sci. Technol.*, 31, 2869-2872.
- Générumont S., Cellier P., 1997. A mechanistic model for estimating ammonia volatilization from slurry applied to bare soil. *Agric. For Meteorol.*, 88, 145-167.
- Générumont S., Ramanantenasoa M.M.J., Dufossé K. *et al.*, 2018. Data on spatio-temporal representation of mineral N fertilization and manure N application as well as ammonia volatilization in French regions for the crop year 2005/06. *Data in Brief*, 21, 1119-1124.
- Gentner D.R., Ormeño E., Fares S. *et al.*, 2014. Emissions of terpenoids benzenoids and other biogenic gas-phase organic compounds from agricultural crops and their potential implications for air quality. *Atm. Chem. Phys.*, 14, 5393-5413.
- Ghirardo A., Xie J., Zheng X. *et al.*, 2016. Urban stress-induced biogenic VOC emissions and SOA-forming potentials in Beijing. *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 2901-2920.
- Gilmour M.I., Daniels M., McCrillis R.C., 2001. Air pollutant-enhanced respiratory disease in experimental animals. *Environ. Health Persp.*, 109, 619-622.
- Girardin P., Bockstaller C., van der Werf H.M.G., 1999. Indicators: tools to evaluate the environmental impacts of farming systems. *J. Sustain Agric.*, 13, 5-21.
- Goldstein A.H., Galbally I.E., 2007. Known and unexplored organic constituents in the earth's atmosphere. *Environ. Sci. Technol.*, 41, 1514-1521.
- Goopy J.R., Woodgate *et al.*, 2011. Validation of a short-term methane measurement using portable static chambers to estimate daily methane production in sheep. *Animal Feed Sci. Technol.*, 166, 219-226.
- Goss K.-U., 2004. The air/surface adsorption equilibrium of organic compounds under ambient conditions. *Critical rev. Environ. Sci. Technol.*, 34, 339-389.
- Goss K.-U., Buschmann J., Schwarzenbach R.P., 2004. Adsorption of organic vapors to air-dry soils: model predictions and experimental validation. *Environ. Sci. Technol.*, 38, 3667-3673.
- Gouzy A., Farret R., Le Gal A.C., 2005. Détermination des pesticides à surveiller dans le compartiment aérien : approche par hiérarchisation. Rapport Ineris n° DRC/MECO-CGR-143/2005-AGo, 139 p.
- Grange D., Host S., Gremy I., 2007. Les composés organiques volatils (COV). État des lieux : définitions, sources d'émission, exposition, effets sur la santé. Rapport ORS Ile-de-France, <https://www.ors-idf.org/nos-travaux/publications/les-composes-organiques-volatils-cov.html>.
- Griffin D.W., 2007. Atmospheric movement of microorganisms in clouds of desert dust and implications for human health. *Clin. microbiol. Rev.*, 20, 459-477.
- Griffon M., 2006. *Nourrir la planète : pour une révolution doublement verte*, Paris, Odile Jacob.
- Griffon M., 2010. *Pour des agricultures écologiquement intensives*, Arles, Éditions de l'Aube.
- Griffon M., 2013. *Qu'est-ce que l'agriculture écologiquement intensive ?* Versailles, Éditions Quæ.
- Grinshpun S.A., Chang C.-W., Nevalainen A. *et al.*, 1994. Inlet characteristics of bioaerosol samplers. *J. Aerosol. Sci.*, 25, 1503-1522.
- Grøntoft T., 2004. Measurements and modelling of the ozone deposition velocity to concrete tiles including the effect of diffusion. *Atmos. Environ.*, 38, 49-58.
- Grote R., Mayrhofer S., Fischbach R.J. *et al.*, 2006. Process-based modelling of isoprenoid emissions from evergreen leaves of *Quercus ilex* (L.). *Atmos. Environ.*, 40, 152-165.
- Grote R., Morfopoulos C., Niinemets Ü. *et al.*, 2014. A fully integrated isoprenoid emissions model coupling emissions to photosynthetic characteristics: a fully integrated isoprenoid emissions model. *Plant. Cell. Environ.*, 37, 1965-1980.

- Grünhage L., Haenel H.-D., 1997. PLATIN (Plant-Atmosphere Interaction) I: a model of plant-atmosphere interaction for estimating absorbed doses of gaseous air pollutants. *Environ. Poll.*, 98, 37-50.
- Grünhage L., Pleijel H., Mills G. *et al.*, 2012. Updated stomatal flux and flux-effect models for wheat for quantifying effects of ozone on grain yield grain mass and protein yield. *Environ. Poll.*, 165, 147-157.
- Guenther A., Karl T., Harley P. *et al.*, 2006. Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature). *Atmos. Chem. Phys.*, 6 (11), 3181-3210.
- Guenther A.B., Jiang X., Heald C.L. *et al.*, 2012. The Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature version 2.1 (MEGAN2.1): an extended and updated framework for modeling biogenic emissions. *Geosci. Model Dev.*, 5, 1471-1492.
- Guilaine J., 2015. *La seconde naissance de l'homme. Le néolithique*, Paris, Odile Jacob.
- Guimbaud C.V., Catoire *et al.*, 2011. A portable infrared laser spectrometer for flux measurements of trace gases at the geosphere-atmosphere interface. *Meas. Sci. Technol.*, 22, 075601.
- Guingand N., 2000. Influence de la vidange des préfosse sur l'émission d'ammoniac et d'odeurs par les porcheries d'engraissement. Résultats préliminaires. In : *32^e Journée de la Recherche porcine en France*, 83-88.
- Guingand N., Aubert C., Dollé J.-B., 2010. *Guide des bonnes pratiques environnementales d'élevage*, RMT Élevages et environnement.
- Guiral C., Bedos C., Ruelle B. *et al.*, 2016. Les émissions de produits phytopharmaceutiques dans l'air. Facteurs d'émissions outils d'estimation des émissions évaluations environnementales et perspectives de recherche. Rapport final projet de recherche Inra-Ademe, 231 p.
- Gusten H., Heinrich G., Schmidt R.W.H. *et al.*, 1992. A novel ozone sensor for direct eddy flux measurements. *J. Atmos. Chem.*, 14, 73-84.
- Gut A., Scheibe M., Rottenberger S. *et al.*, 2002. Exchange fluxes of NO₂ and O₃ at soil and leaf surfaces in an Amazonian rain forest. *J. Geophys. Res.*, 107, D20, 8060.
- Guyomard H., Huyghe C., Peyraud J.-L. *et al.*, 2017. *Les pratiques agricoles à la loupe. Vers des agricultures multiperformantes*, Versailles, Éditions Quæ, 464 p.
- Guyot G., 1997. *Climatologie de l'environnement : de la plante aux écosystèmes*, Elsevier/Masson.
- Haase D., Frantzeskaki N., Elmquist T., 2014. Ecosystem services in urban landscapes: practical applications and governance implications. *AMBIO*, 43, 407-412.
- Haeussermann A., Costa A., Aerts J.-M. *et al.*, 2008. Development of a dynamic model to predict PM₁₀ emissions from swine houses. *J. Environ. Qual.*, 37, 557-564.
- Hafner S.D., Pacholski A., Bittman S. *et al.*, 2018. The ALFAM2 database on ammonia emission from field-applied manure: description and illustrative analysis. *Agric. Forest Meteorol.*, 258, 66-79.
- Hafner S.D., Pacholski A., Bittman S. *et al.*, 2019. A flexible semi-empirical model for estimating ammonia volatilization from field-applied slurry. *Atmos. Environ.*, 199, 474-484.
- Hallmann C.A., Foppen R.P.B., van Turnhout C.A.M. *et al.*, 2014. Declines in insectivorous birds are associated with high neonicotinoid concentrations. *Nature*, 511, 341.
- Hallquist M., Wenger J.C., Baltensperger U. *et al.*, 2009. The formation properties and impact of secondary organic aerosol: current and emerging issues. *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 5155-5236.
- Hamaker J.W., Thompson J.M., 1972. Adsorption. In: *Organic Chemicals in the Soil Environment* (C.A.I. Goring, J.W. Hamaker, eds), New York, Marcel Dekker.
- Hamaoui-Laguel L., Meleux F., Beekmann M. *et al.*, 2014. Improving ammonia emissions in air quality modelling for France. *Atmos. Environ.*, 92, 584-595.
- Hassouna M., Eglin T., Cellier P. *et al.*, 2015. *Mesurer les émissions gazeuses en élevage : gaz à effet de serre ammoniac et oxydes d'azote*, Inra-Ademe.
- Hauglustaine D.A., Hourdin F., Jourdain L. *et al.*, 2004. Interactive chemistry in the Laboratoire de météorologie dynamique general circulation model: description and background tropospheric chemistry evaluation. *J. Geophys. Res.*, 109, DO4314.

- Haupt S.E., Beyer-Lout A., Long K.J. *et al.*, 2009. Assimilating concentration observations for transport and dispersion modeling in a meandering wind field. *Atmos. Environ.*, 43, 1329-1338.
- Hayes T.B., Anderson L.L., Beasley V.R. *et al.*, 2011. Demasculinization and feminization of male gonads by atrazine: consistent effects across vertebrate classes. *J. Steroid Biochem.*, 127, 64-73.
- Hayes F., Mills G., Jones L. *et al.*, 2016. Consistent ozone-induced decreases in pasture forage quality across several grassland types and consequences for UK lamb production. *Sci. Total Environ.*, 543, 336-346.
- Heagle A.S., 1989. Ozone and Crop Yield. *Ann. Rev. Phytopathol.*, 27, 397-423.
- Helin A., Sietiö O.M., Heinonsalo J. *et al.*, 2017. Characterization of free amino acids bacteria and fungi in size-segregated atmospheric aerosols in boreal forest: seasonal patterns abundances and size distributions. *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 13089-13101.
- Heller R., 2004. *Physiologie végétale. Tome 1. Nutrition*, 6^e éd., Paris, Dunod, 320 p.
- Hellweg S., Milà i Canals L., 2014. Emerging approaches challenges and opportunities in life cycle assessment. *Science*, 344, 1109-1113.
- Hénault C., Bizouard F., Laville P. *et al.*, 2005. Predicting in situ soil N₂O emission using NOE algorithm and soil database. *Global Change Biol.*, 1, 115-127.
- Herrero M.J.A., Mendiola *et al.*, 2010. Supercritical fluid extraction: recent advances and applications. *J. Chromatography A*, 1217, 2495-2511.
- Hertel O., Skjøth C.A., Lofstrøm P. *et al.*, 2006. Modelling nitrogen deposition on a local scale. A review of the current state of the art. *Environ. Chem.*, 3, 317-337.
- Hicks W.K., Whitfield C.P., Bealey *et al.*, 2011. Nitrogen deposition and Natura 2000: science and practice in determining environmental impacts. COST729/ Nine/ESF/CCW/JNCC/SEI Workshop Proceedings published by COST.
- Hoffman S.W., Sułkowski *et al.*, 1995. The urban ozone monitoring by the DOAS technique application. *J. Mol. Struct.*, 348, 187-189.
- Houot S., Pons M.-N., Pradel M. *et al.*, 2014. Valorisation des matières fertilisantes d'origine résiduaire sur les sols à usage agricole ou forestier. Impacts agronomiques environnementaux socio-économiques. Expertise scientifique collective Inra-CNRS-Irstea, 100 p.
- Huang G., Zhou X. *et al.*, 2002. Measurements of atmospheric nitrous acid and nitric acid. *Atmos. Environ.*, 36 (13), 2225-2235.
- Huber L., Madden L.V., Fitt B.D.L., 2006. Environmental biophysics applied to the dispersal of fungal spores by rain-splash. In: *The Epidemiology of Plant Diseases* (B.M. Cooke, D.G. Gareth, B. Kaye, eds), Springer, 348-370.
- Hubert P., 2017. Spectres d'extinction de particules minérales et restitution des indices complexes de réfraction dans l'infrarouge et l'UV-visible. Thèse de doctorat de l'université de Lille 1.
- Hughes D.J., West J.S., Atkins S.D. *et al.*, 2011. Effects of disease control by fungicides on greenhouse gas emissions by UK arable crop production. *Pest. Manag. Sci.*, 67, 1082-1092.
- Huneus N., Boucher O., Chevallier F., 2013. Atmospheric inversion of SO₂ and primary aerosol emissions for the year 2010. *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 6555-6573.
- Husson J.-F., Aïchi L., 2015. Rapport sénatorial au nom de la commission d'enquête sur le coût économique et financier de la pollution de l'air, 306 p., <http://www.senat.fr/rap/r14-610-1/r14-610-11.pdf>.
- Husted S., Schjoerring J.K., 1996. Ammonia flux between oilseed rape plants and the atmosphere in response to changes in leaf temperature light intensity and air humidity (interactions with leaf conductance and apoplastic NH₄⁺ and H⁺ concentrations). *Plant. Physiol.*, 112, 67-74.
- Hutchings N., Webb J., Amon B., 2009. EMEP/EEA emission inventory guidebook: crop production and agricultural soils animal. Technical report No 9/2009.
- IAASTD, 2009. *Agriculture at a Crossroads. International assessment of Agricultural Knowledge Science and Technology for Development*. Global Report Washington DC 2009.
- Iinuma Y., Böge O., Kahnt A. *et al.*, 2009. Laboratory chamber studies on the formation of organosulfates from reactive uptake of monoterpene oxides. *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 11, 7985.

- Ineris, 2009. Ammoniac anhydre. Fiche de données toxicologiques et environnementales des substances chimiques.
- Inserm, 2013. Pesticides : effets sur la santé. Expertise collective n° 2013-XII, Paris, Inserm.
- International Agency for Research on Cancer/Organisation mondiale de la santé, 2013. La pollution atmosphérique, une des premières causes environnementales de décès par cancer selon le CIRC. Communiqué de presse n° 221, 17 octobre 2013.
- Itier B., Perrier A., 1976. Présentation d'une étude analytique de l'advection. I. Advection liée aux variations horizontales de concentration et de température. *Ann. Agron.*, 27, 111-140
- Janhäll S., 2015. Review on urban vegetation and particle air pollution deposition and dispersion. *Atmos. Environ.*, 105, 130-137.
- Jarrige F., Le Roux T., 2017. *La contamination du monde. Une histoire des pollutions à l'âge industriel*, Paris, Le Seuil.
- Jarvis P.G., 1976. The interpretation of the variations in leaf water potential and stomatal conductance found in canopies in the field. *Philos. Trans. R. Soc. Lond. B*, 273, 593-610.
- Jarvis N., 2016. Extended sorption partitioning models for pesticide leaching risk assessments: can we improve upon the koc concept? *Sci. Total Environ.*, 539, 294-303.
- Jayne J.T., Leard D.C., Zhang X.F. *et al.*, 2010. Development of an aerosol mass spectrometer for size and composition analysis of submicron particles. *Aerosol. Sci. Technol.*, 33, 49-70.
- Jenkin M.E., Saunders S.M., Wagner V. *et al.*, 2003. Protocol for the development of the Master Chemical Mechanism MCM v3 (Part B): tropospheric degradation of aromatic volatile organic compounds. *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 181-193.
- Jimenez J.L., Canagaratna M.R., Donahue N.M. *et al.*, 2009. Evolution of organic aerosols in the atmosphere. *Science*, 326, 1525-1529.
- Jöckel P., Tost H., Pozzer A. *et al.*, 2006. The atmospheric chemistry general circulation model ECHAM5/MESSy1: consistent simulation of ozone from the surface to the mesosphere. *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 5067-5104.
- Jones H.G., 2013. *Plants and Microclimate: A Quantitative Approach to Environmental Plant Physiology*, 3rd ed., Cambridge, Cambridge University Press.
- Jones M.R., Leith I.D., Raven J.A. *et al.*, 2007. Concentration-dependent NH₃ deposition processes for moorland plant species with and without stomata. *Atmos. Environ.*, 41, 8980-8994.
- Jorland G., 2010. *Une société à soigner. Hygiène et salubrité publiques en France au XIX^e siècle*, Paris, Gallimard.
- Joy K.W., 1988. Ammonia glutamine and asparagine: a carbon-nitrogen interface. *Can. J. Bot.*, 66, 2103-2109.
- Jung C.-R., Lin Y.-T., Hwang B.-F., 2013. Air pollution and newly diagnostic autism spectrum disorders: a population-based cohort study in Taiwan. *PLoS ONE*, 8 e75510.
- Jury W.A., Spencer W.F., Farmer W.J., 1983. Behavior assessment model for trace organics in soil: I. Model Description1. *J. Environ. Qual.*, 12, 558-564.
- Just N., Kirychuk S., Gilbert Y. *et al.*, 2011. Bacterial diversity characterization of bioaerosols from cage-housed and floor-housed poultry operations. *Environ. Res.*, 111, 492-498.
- Kammer J., Lamaud E., Bonnefond J. *et al.*, 2019. Ozone production in a maritime pine forest in water-stressed conditions. *Atmos. Environ.*, 197, 131-140.
- Kang S., Kim S. *et al.*, 2014. A study on N₂O measurement characteristics using photoacoustic spectroscopy (PAS). *Sensors*, 14, 14399-14410.
- Karl T., Harley P. *et al.*, 2005. The bi-directional exchange of oxygenated vocs between a loblolly pine (*Pinus taeda*) plantation and the atmosphere. *Atmos. Chem. Phys.*, 5 (11), 3015-3031.
- Karl T., Guenther A., Turnipseed A. *et al.*, 2009. Rapid formation of isoprene photo-oxidation products observed in Amazonia. *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 7753-7767.
- Karlsson P.E., Uddling J., Braun S. *et al.*, 2004. New critical levels for ozone effects on young trees based on AOT40 and simulated cumulative leaf uptake of ozone. *Atmos. Environ.*, 38, 2283-2294.

- Kelly F.J., Fussell J.C., 2012. Size source and chemical composition as determinants of toxicity attributable to ambient particulate matter. *Atmos. Environ.*, 60, 504-526.
- Keppler F., Hamilton J.T.G., Braß M. *et al.*, 2006. Methane emissions from terrestrial plants under aerobic conditions. *Nature*, 439, 187-191.
- Khan M.A.H., Percival C.J., Caravan R.L. *et al.*, 2018. Criegee intermediates and their impacts on the troposphere. *Environ. Sci. Proc. Imp.*, 20, 437-453.
- Kiendler-Scharr A., Zhang Q., Hohaus T. *et al.*, 2009. Aerosol mass spectrometric features of biogenic SOA: observations from a plant chamber and in rural atmospheric environments. *Environ. Sci. Technol.*, 43, 8166-8172.
- Klemm O., Mangold A., 2001. Ozone Deposition at a Forest Site in NE Bavaria. *Water Air Soil Poll.*, 1 (5-6), 223-232.
- Klein C. de, Harvey M.J., 2012. *Nitrous Oxide Chamber Methodology Guidelines. Version 1*, Ministry for Primary Industries, 146 p.
- Kljun N., Calanca P., Rotach M.W. *et al.*, 2015. A simple two-dimensional parameterisation for Flux Footprint Prediction (FFP). *Geosci. Model Dev.*, 8, 3695-3713.
- Koch K., Bhushan B., Barthlott W., 2008. Diversity of structure morphology and wetting of plant surfaces. *Soft Matter.*, 4, 1943-1963.
- Krinner G., Viovy N., De Noblet-Ducoudré N. *et al.*, 2005. A dynamic global vegetation model for studies of the coupled atmosphere-biosphere system. *Global Biogeochem. Cycles*, 19, GB1015.
- Kristensen K., Watne A.K., Hammes J. *et al.*, 2016. High-molecular weight dimer esters are major products in aerosols from alpha-Pinene Ozonolysis and the boreal forest. *Environ. Sci. Technol. Lett.*, 3, 280-285.
- Kroll J.H., Seinfeld J.H., 2008. Chemistry of secondary organic aerosol: formation and evolution of low-volatility organics in the atmosphere. *Atmos. Environ.*, 42, 3593-3624.
- Krupa S.V., 2002. Sampling and physico-chemical analysis of precipitation: a review. *Environ. Pollut.*, 120, 565-594.
- Krupa S.V., 2003. Effects of atmospheric ammonia (NH₃) on terrestrial vegetation: a review. *Environ. Pollut.*, 124, 179-221.
- Kuenen J.H., Denier van der Gon A., Visschedijk H. *et al.*, 2011. High resolution European emission inventory for the years 2003-2007. TNO report TNO-060-UT-2011-00588, Utrecht.
- Kuenen J.J.P., Visschedijk A.J.H., Jozwicka M., Denier van der Gon H.A.C., 2014. TNO-MACC_II emission inventory; a multi-year (2003-2009) consistent high-resolution European emission inventory for air quality modelling. *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 10963-10976.
- Kürten A., Li C., Bianchi F. *et al.*, 2018. New particle formation in the sulfuric acid-dimethylamine-water system: reevaluation of CLOUD chamber measurements and comparison to an aerosol nucleation and growth model. *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 845-863.
- Kürten A., Rondo L. *et al.*, 2011. Performance of a corona ion source for measurement of sulfuric acid by chemical ionization mass spectrometry. *Atmos. Meas. Tech.*, 4, 437-443.
- Lafore J.P., Stein J., Asencio N. *et al.*, 1997. The Meso-NH Atmospheric Simulation System. Part I: adiabatic formulation and control simulations. *Ann. Geophysicae.*, 16, 90-109.
- Lagadec S., Roy H., Landrain P. *et al.*, 2016. Effet d'une alimentation multiphase à bas taux protéique sur les performances les rejets et les émissions gazeuses chez le porc à l'engraisement. *Journées Recherche porcine*, 48, 165-170.
- Lai L.-W., Cheng W.-L., 2009. Air quality influenced by urban heat island coupled with synoptic weather patterns. *Sci. Total Environ.*, 407, 2724-2733.
- Lairez J., Feschet P., Aubin J. *et al.*, 2015. *Évaluer la durabilité en agriculture. Guide pour l'analyse multicritère en productions animales et végétales*, Versailles, Éditions Quæ.
- Lamaud E., Labatut A., Fontan J. *et al.*, 1994. Biosphere atmosphere exchanges: ozone and aerosol dry deposition velocities over a pine forest. *Environ. Monit. Assess.*, 31, 175-181.

- Lamaud E., Loubet B., Irvine M. *et al.*, 2009. Partitioning of ozone deposition over a developed maize crop between stomatal and non-stomatal uptakes using eddy-covariance flux measurements and modelling. *Agric. For Meteorol.*, 149, 1385-1396.
- Lambe A.T., Ahern A.T., Williams L.R. *et al.*, 2011. Characterization of aerosol photooxidation flow reactors: heterogeneous oxidation secondary organic aerosol formation and cloud condensation nuclei activity measurements. *Atmos. Meas. Tech.*, 4, 445-461.
- Lamine C., 2017. *La fabrique sociale de l'écologisation de l'agriculture*, Marseille, Les Éditions La Discussion.
- Landrigan P.J. *et al.*, 2017. The Lancet Commission on Pollution and Health, en ligne : [http://dx.doi.org/10.1016/S0140-6736\(17\)32345-0](http://dx.doi.org/10.1016/S0140-6736(17)32345-0).
- Lange H., Meier L., 2009. *The New Middle Classes: Globalizing Lifestyles Consumerism and Environmental Concern*, Dordrecht/Heidelberg/London/New York, Springer.
- Langevin B., Générumont S., Basset-Mens C., Lardon L., 2015. Simulation of field NH₃ and N₂O emissions from slurry spreading. *Agron. Sustain. Develop.*, 35, 347-358.
- Laskin J., Laskin A., Nizkorodov S.A., 2018. Mass spectrometry analysis in atmospheric chemistry. *Anal. Chem.*, 90, 166-189.
- Lassar W.K., Pierce R., Sarda-Estève *et al.*, 2014. *BIODETECT 2014: ambient observations by a comprehensive suite of light-induced fluorescence techniques during summer near Paris France*, AAAR Orlando, USA.
- Laufs S., Cazaunau M., Stella P. *et al.*, 2016. Diurnal fluxes of HONO above a crop rotation. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 1-28.
- Lazzaro L., Otto S., Zanin G., 2008. Role of hedgerows in intercepting spray drift: evaluation and modelling of the effects. *Agric. Ecosys. Environ.*, 123 (4), 317-327.
- Le Breton M., Bacak A. *et al.*, 2014. Simultaneous airborne nitric acid and formic acid measurements using a chemical ionization mass spectrometer around the UK: analysis of primary and secondary production pathways. *Atmos. Environ.*, 83, 166-175.
- Le Cadre E., 2004. Modélisation de la volatilisation d'ammoniac en interaction avec les processus chimiques et biologiques du sol. Le modèle Volt'Air. Thèse de doctorat de l'Institut national agronomique Paris-Grignon, Sciences du sol et du bioclimat, Inra EGC Grignon, 211 p.
- Le Roux T., 2011. *Le laboratoire des pollutions industrielles. Paris, 1770-1830*, Paris, Albin Michel.
- Lee C., Beauchemin K.A., 2014. A review of feeding supplementary nitrate to ruminant animals: nitrate toxicity methane emissions and production performance. *Can J. Anim. Sci.*, 94, 557-570.
- Leegood R.C., Lea P.J., Adcock M.D. *et al.*, 1995. The regulation and control of photorespiration. *J. Exp. Bot.*, 46, 1397-1414.
- Leelőssy Á., Molnár F., Izsák F. *et al.*, 2014. Dispersion modeling of air pollutants in the atmosphere: a review. *Open Geosci.*, 6.
- Legge A.H., Krupa S.V., 2002. Effects of sulphur dioxide. In: *Air Pollution and Plant Life* (J.N.B. Bell, M. Treshow, eds) New York, John Wiley and Sons, 135-162.
- Leistra M., 2005. Estimating input data for computations on the volatilisation of pesticides from plant canopies and competing processes. Wageningen, Alterra-rapport, 79 p.
- Leistra M., Wolters A., 2004. Computations on the volatilisation of the fungicide fenpropimorph from plants in a wind tunnel. *Water Air Soil Poll.*, 157, 133-148.
- Lelieveld J., Evans J.S., Fnais M. *et al.*, 2015. The contribution of outdoor air pollution sources to premature mortality on a global scale. *Nature*, 525, 367-371.
- Lepage C., 1998. *On ne peut rien faire Madame le ministre...*, Paris, Albin Michel, 302 p.
- Lepage C., 2017. Éditorial. *Pollution atmosphérique*, 233.
- Leriche M., Pinty J.-P., Mari C. *et al.*, 2013. A cloud chemistry module for the 3-D cloud-resolving mesoscale model Meso-NH with application to idealized cases. *Geosci. Mod. Dev.*, 6, 1275-1298.
- Lévy J., Lussault M., 2003. *Dictionnaire de la géographie et de l'espace des sociétés*, Paris, Belin, 1033 p.

- Lévy M., 2016. Developing new adsorbents for the passive sampling of organic pollutants in the atmosphere: comparison with existing systems. Université de Strasbourg, 186 p.
- Li C., Meng J., Guo L. *et al.*, 2016. Effects of ozone pollution on yield and quality of winter wheat under flaxweed competition. *Environ. Exp. Bot.*, 129, 77-84.
- Li C.S., 2000. Modeling trace gas emissions from agricultural ecosystems. *Nutr. Cycl. Agroecosys.*, 58, 259-276.
- Lichiheb N., Bedos C., Personne E. *et al.*, 2015. Measuring leaf penetration and volatilization of chlorothalonil and epoxiconazole applied on wheat leaves in a laboratory-scale experiment. *J. Environ. Qual.*, 44, 1782-1790.
- Lichiheb N., Personne E., Bedos C. *et al.*, 2016. Implementation of the effects of physicochemical properties on the foliar penetration of pesticides and its potential for estimating pesticide volatilization from plants. *Sci. Total Environ.*, 550, 1022-1031.
- Liu Y., Daum P.H., 2000. The effect of refractive index on size distributions and light scattering coefficients derived from optical particle counters. *J. Aerosol. Sci.*, 31 (8), 945-957.
- Lode B., 2014. Increasing Integration in Global Climate Governance – The Climate and Clean Air Coalition. IASS Working Paper, 12 p., http://www.iass-potsdam.de/sites/default/files/files/working_paper_ccac.pdf.
- Longley M., Sotherton N.W., 1997. Factors determining the effects of pesticides upon butterflies inhabiting arable farmland. *Agric. Ecosys. Environ.*, 61, 1-12.
- Loubet B., Cellier P., 2001. Experimental assessment of atmospheric ammonia dispersion and short range dry deposition in a maize canopy. *Water Air Soil Poll. Focus*, 1, 157-166.
- Loubet B., Asman W.A.H., Theobald M.R. *et al.*, 2009. Ammonia deposition near hot spots: processes models and monitoring methods. In: *Atmospheric Ammonia* (M.A. Sutton, S. Reis, S.M.H. Baker, eds), Springer, Netherlands Dordrecht, 205-267.
- Loubet B., Decuq C. *et al.*, 2012. Investigating the stomatal cuticular and soil ammonia fluxes over a growing triticale crop under high acidic loads. *Biogeosci.*, 9, 1537-1552.
- Loubet B., Carozzi M., Voytkov P. *et al.*, 2018. Evaluation of a new inference method for estimating ammonia volatilisation from multiple agronomic plots. *Biogeosci.*, 15, 3439-3460.
- Loubet B., Feiz A.A., Durand B. *et al.*, 2011. Pollutions de proximité transport et agriculture (PPTA). Colloque de présentation des travaux : *La qualité de l'air dans nos environnements de proximité*, janvier 2011, Lyon, France, Primequal-Predit, 39-45.
- Loubet B., Générumont S., Ferrara R. *et al.*, 2010. An inverse model to estimate ammonia emissions from fields. *Eur. J. Soil Sci.*, 61, 793-805.
- Loubet B., Jarosz N., Saint-Jean S., Huber L., 2007. A method for measuring the settling velocity distribution of large biotic particles. *Aerobiologia*, 23, 159-169.
- Loubet B., Milford C., Sutton M.A. *et al.*, 2001. Investigation of the interaction between sources and sinks of atmospheric ammonia in an upland landscape using a simplified dispersion-exchange model. *J. Geophys. Res.*, 106, 183-195.
- Lu F., Xu D., Cheng Y. *et al.*, 2015. Systematic review and meta-analysis of the adverse health effects of ambient PM_{2.5} and PM₁₀ pollution in the Chinese population. *Environ. Res.*, 136, 196-204.
- Luhar A.K., Hurley P.J., 2012. Application of a coupled prognostic model to turbulence and dispersion in light-wind stable conditions with an analytical correction to vertically resolve concentrations near the surface. *Atmos. Environ.*, 51, 56-66.
- Lusebrink I., Girling R.D., Farthing E. *et al.*, 2015. The effects of diesel exhaust pollution on floral volatiles and the consequences for honey bee olfaction. *J. Chem. Ecol.*, 41, 904-912.
- MAAF/SCE/Inra, 2016. Recensement et analyse des outils de raisonnement dynamique et de pilotage de la fertilisation azotée. Rapport, Ministère de l'Agriculture de l'Agroalimentaire et de la Forêt, Aménagement et Environnement, Institut national de la recherche agronomique, 81 p., https://comifer.asso.fr/images/bilan-azote/outils-de-pilotage/2016_Rapport_OAD_Pilotage_Ferti_SCE.pdf.

- Maffei M.E., 2010. Sites of synthesis biochemistry and functional role of plant volatiles. *S. A. J. Bot. Chem. Div. Biol. Funct. Plant Volat.*, 76, 612-631.
- Mahrt L., 2010. Computing turbulent fluxes near the surface: needed improvements. *Agric. For Meteorol.*, 150 (4), 501-509.
- Mailler S., Menut L., Khvorostyanov D. *et al.*, 2017. CHIMERE-2017: from urban to hemispheric chemistry-transport modeling. *Geosci. Model Dev.*, 10, 2397-2423.
- Malassis L., 2001. *La longue marche des paysans français*, Paris, Fayard.
- Malassis L., 2004. *L'épopée inachevée des paysans du monde*, Paris, Fayard.
- Mallet V., Quélo D., Sportisse B. *et al.*, 2007. Technical note: the air quality modeling system Polyphemus. *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 5479-5487.
- Mancebo S.E., Wang S.Q., 2015. Recognizing the impact of ambient air pollution on skin health. *J. Eur. Acad. Derm. Vener.*, 29, 2326-2332.
- Manders A.M.M., Buitjes P.J.H., Curier L. *et al.*, 2017. Curriculum vitae of the LOTOS-EUROS (v2.0) chemistry transport model. *Geosci. Mod. Dev.*, 10, 4145-4173.
- Marano F., Barouki R., Zmirou D., 2015. *Toxique ? Santé et environnement : de l'alerte à la décision*, Paris, Buchet/Chastel.
- Marshall E.J.P., Smith B.D., 1987. Field margin flora and fauna. Interaction with agriculture. *In: Field Margins BCPC Monographies*, British Crop Protection Council, 23-33.
- Martin E., Mathias E., 2013. *Analyse du potentiel de 10 actions de réduction des émissions d'ammoniac des élevages français aux horizons 2020 et 2030*, Paris, Citepa/Ademe, 240 p.
- Marx O., Bruemmer C., Ammann C. *et al.*, 2012. TRANC. A novel fast-response converter to measure total reactive atmospheric nitrogen. *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 1045-1057.
- Mary B., Cohan J.P., Dimassi B. *et al.*, 2014. Effet du travail du sol sur les cycles biogéochimiques de l'azote et du carbone : compréhension des mécanismes et conséquences pour la gestion des pratiques agricoles. *In: Faut-il travailler le sol ? Acquis et innovations pour une agriculture durable* (J. Labreuche, F. Laurent, J. Roger-Estrade, eds), Versailles, Quæ, 63-85.
- Massad R.S., Lathière J., Strada S. *et al.*, 2019. Reviews and syntheses: influences of landscape structure and land uses on local to regional climate and air quality. *Biogeosciences*, 16, 2369-2408.
- Massad R.S., Loubet B., Tuzet A. *et al.*, 2008. Relationship between ammonia stomatal compensation point and nitrogen metabolism in arable crops: current status of knowledge and potential modelling approaches. *Environ. Poll.*, 154, 390-403.
- Massad R.-S., Nemitz E., Sutton M.A., 2010a. Review and parameterisation of bi-directional ammonia exchange between vegetation and the atmosphere. *Atmos. Chem Phys.*, 10, 10359-10386.
- Massad R.-S., Tuzet A., Loubet B. *et al.*, 2010b. Model of stomatal ammonia compensation point (STAMP) in relation to the plant nitrogen and carbon metabolisms and environmental conditions. *Ecol. Mod.*, 22, 479-494.
- Massard-Guilbaud G., 2010. *Histoire de la pollution industrielle. France 1789-1914*, Paris, Éditions de l'École des hautes études en sciences sociales.
- Massman W.J., 2000. A simple method for estimating frequency response corrections for eddy covariance systems. *Agric. For. Meteorol.*, 104, 185-198.
- Masson V., Le Moigne P., Martin E. *et al.*, 2013. The SURFEXv7.2 land and ocean surface platform for coupled or offline simulation of earth surface variables and fluxes. *Geosci. Mod. Dev.*, 6, 929-960.
- May N.W., Olson N.E., Panas M. *et al.*, 2018. Aerosol emissions from great lakes harmful algal blooms. *Environ. Sci. Technol.*, 52, 397-405.
- Mazoyer M., Roudart L., 1997. *Histoire des agricultures du monde. Du néolithique à la crise contemporaine*, Paris, Le Seuil.
- McGinn S.M., Janzen H.H., Coates T.W. *et al.*, 2016. Ammonia emission from a beef cattle feedlot and its local dry deposition and re-emission. *J. Environ. Qual.*, 45, 1178-1185.
- McMurry P.H., 2000. The history of condensation nucleus counters. *Aerosol Sci. Technol.*, 33, 297-322.

- McPherson E.A., Lawson G.H.K., Murphy J.R. *et al.*, 1979. Chronic Obstructive Pulmonary Disease (COPD) in horses: aetiological studies: responses to intradermal and inhalation antigenic challenge. *Equine Vet. J.*, 11, 159-166.
- Mead *et al.*, 2013. The use of electrochemical sensors for monitoring urban air quality in low-cost high-density networks. *Atmos. Env.*, 70, 186-203.
- Mellouki A., Collin P., Lafargue P.-E., 2007. Pesticides dans l'atmosphère : études des cinétiques et mécanismes de dégradation en laboratoire et mesures dans l'atmosphère. Rapport final, programme Pesticides (APR 2002), 118 p.
- Mendras H., 1967. *La fin des paysans*, Paris, SEDEIS (réédition 1992, Arles, Actes Sud, coll. Babel).
- Menut L., Bessagnet B., Khvorostyanov D. *et al.*, 2013. CHIMERE 2013: a model for regional atmospheric composition modelling. *Geosci. Model Dev.*, 6, 981-1028.
- Menzi H., Katz P.E., Fahrni M. *et al.*, 1998. A simple empirical model based on regression analysis to estimate ammonia emissions after manure application. *Atmos. Environ.*, 32, 301-307.
- Mijling B., van der A.R.J., Zhang Q., 2013. Regional nitrogen oxides emission trends in East Asia observed from space. *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 12003-12012.
- Miller J.B., 2004. The carbon isotopic composition of atmospheric methane and its constraint on the global methane budget. *Stable Isotopes and Biosphere-Atmosphere Interactions: Processes and Biological Controls*, 288-306.
- Millner P.D., 2009. Bioaerosols associated with animal production operations. *Biores. Technol.*, 100, 5379-5385.
- Mills G., Harmens H., 2011. Ozone pollution: a hidden threat for food security. Rapport par le PIC Vegetation de la CLRTAP, 116 p., ICP Vegetation Coordination Center, CEH, Bangor.
- Mills G., Wagg S., Harmens H., 2013. *Ozone Pollution: Impacts on Ecosystem Services and Biodiversity*, ICP Vegetation Coordination Center, CEH, Bangor.
- Mills G., Buse A., Gimeno B.S. *et al.*, 2007. A synthesis of AOT40-based response functions and critical levels of ozone for agricultural and horticultural crops. *Atmos. Environ.*, 41, 2630-2643.
- Mills G., Harmens H., Wagg S. *et al.*, 2016. Ozone impacts on vegetation in a nitrogen enriched and changing climate. *Environ. Poll.*, 208, 898-908.
- Mills G., Pleijel H., Braun S. *et al.*, 2011. New Stomatal flux-based critical levels for ozone effects on vegetation. *Atmos. Environ.*, 45, 5064-5068.
- Mishchenko M., Cairns B., Hansen J. *et al.*, 2004. Monitoring of aerosol forcing of climate from space: analysis of measurement requirements. *J. Quant. Spect. Rad. Transf.*, 88, 149-161.
- Misselbrook T.H., Scholefield D., Sutton M.A., 2004. A simple process based model for estimating ammonia emissions from agricultural land after fertilizer applications. *Soil Use Manage.*, 20, 365-372.
- Miyazaki K., Eskes H., Sudo K. *et al.*, 2017. Decadal changes in global surface nox emissions from multi-constituent satellite data assimilation. *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 807-837.
- Moeng C.-H., 1984. A large-eddy-simulation model for the study of planetary boundary-layer turbulence. *J. Atmos. Sci.*, 41, 2052-2062.
- Mohr K., Dämmgen U., 2013. Belastung von Wäldern in Nordwest-Niedersachsen durch Ammoniak und Ammonium in der Umgebung von Tierhaltungsanlagen: Teil 2 Wirkungen auf Böden und Vegetation. *Landbauforschung – Appl. Agric. Forest. Res.*, 63, 129-142.
- Monga O., Bouso M., Garnier P. *et al.*, 2008. 3D geometric structures and biological activity: application to microbial soil organic matter decomposition in pore space. *Ecol. Mod.*, 216, 291-302.
- Monga O., Garnier P., Pot V. *et al.*, 2014. Simulating microbial degradation of organic matter in a simple porous system using the 3-D diffusion-based model MOSAIC. *Biogeosci.*, 11, 2201-2209.
- Monnier S., Thibaudon M., Besancenot J.-P. *et al.*, 2015. Pollution, pollen et pollinoses : retour sur l'épisode de pollution de mars 2014 en France. *Pollution atmosphérique*, n° spécial de mars 2015, 157-164.
- Montes F., Rotz C.A., Chaoui H., 2009. Process modelling of ammonia volatilization from ammonium solution and manure surfaces: a review with recommended models. *Trans ASABE*, 52, 1707-1719.

- Moosmüller H., Chakrabarty R. *et al.*, 2009. Aerosol light absorption and its measurement: a review. *J. Quant. Spectro. Rad. Transf.*, 110, 844-878.
- Móring A., Vieno M., Doherty R.M. *et al.*, 2016. A process-based model for ammonia emission from urine patches GAG (Generation of Ammonia from Grazing): description and sensitivity analysis. *Biogeosci.*, 13, 1837-1861.
- Mountford J.O., Lakhani K.H., Kirkham F.W., 1993. Experimental assessment of the effects of nitrogen addition under hay-cutting and aftermath grazing on the vegetation of meadows on a Somerset peat moor. *J. App. Ecol.*, 30, 321-331.
- Murphy D.M., 2007. The design of single particle laser mass spectrometers. *Mass. Spect. Rev.*, 26, 150-165.
- Murphy S.M., Sorooshian A., Kroll J.H. *et al.*, 2007. Secondary aerosol formation from atmospheric reactions of aliphatic amines. *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 2313-2337.
- Nakaema W.M., Hao Z.-Q., Rohwetter P. *et al.*, 2011. PCF-Based cavity enhanced spectroscopic sensors for simultaneous multicomponent trace gas analysis. *Sensors*, 11, 1620-1640.
- Nathan R., Katul G.G., Horn H.S. *et al.*, 2002. Mechanisms of long-distance dispersal of seeds by wind. *Nature*, 418, 409-413.
- Neirynek J., Ceulemans R., 2008. Bidirectional ammonia exchange above a mixed coniferous forest. *Environ. Poll.*, 154, 424-438.
- Nemitz E., Milford C., Sutton M.A., 2001. A two-layer canopy compensation point model for describing bi-directional biosphere-atmosphere exchange of ammonia. *Quart. J. Royal. Met. Soc.*, 127, 815-833.
- Nemitz E., Sutton M.A., Schjoerring J.K. *et al.*, 2000. Resistance modelling of ammonia exchange over oilseed rape. *Agric. For Meteorol.*, 105, 405-425.
- Nemitz E., Sutton M.A., Wyers G.P. *et al.*, 2004. Gas-particle interactions above a Dutch heathland: I. Surface exchange fluxes of NH₃ SO₂ HNO₃ and HCl. *Atmos. Chem. Phys.*, 4, 989-1005.
- Nenes A., Pandis S.N., Pilinis C., 1998. ISORROPIA: a new thermodynamic equilibrium model for multiphase multicomponent inorganic aerosols. *Aquatic Geochemistry*, 4, 123-152.
- Ng N.L., Kroll J.H., Keywood M.D. *et al.*, 2006. Contribution of first- versus second-generation products to secondary organic aerosols formed in the oxidation of biogenic hydrocarbons. *Environ. Sci. Technol.*, 40, 2283-2297.
- Nho-Kim E.-Y., Michou M., Peuch V.H., 2002. Parameterization of size dependent particle dry deposition velocities in a global chemistry and transport model. Presented at the *EGS XXVII General Assembly*, Nice, p. abstract no 2502.
- Niinemets Ü., Loreto F., Reichstein M., 2004. Physiological and physicochemical controls on foliar volatile organic compound emissions. *Trends Plant. Sci.*, 9, 180-186.
- Nisbet R.E.R., Fisher R., Nimmo R.H. *et al.*, 2009. Emission of methane from plants. *Proc. Royal Soc. B: Biol. Sci.*, 276, 1347-1354.
- Nölscher A. C., Yanez-Serrano A.M., Wolff S. *et al.*, 2016. Unexpected seasonality in quantity and composition of Amazon air forest reactivity. *Nature Communications*, 7, 10383.
- O'Keefe A., 1998. Integrated cavity output analysis of ultra-weak absorption. *Chem. Phys. Lett.*, 293, 331-336.
- O'Keefe A., Scherer J.J., Paul J.B., 1999. Cw Integrated cavity output spectroscopy. *Chem. Phys. Lett.*, 307, 343-349, Doi: 10.1016/S0009-2614(99)00547-3.
- Oenema O., Witzke H.P., Klimont *et al.*, 2009. Integrated assessment of promising measures to decrease nitrogen losses from agriculture in EU-27. *Agric. Ecos. Environ.*, 133, 280-288.
- Oltmans S.J., Lefohn A.S., Shadwick D. *et al.*, 2013. Recent tropospheric ozone changes. A pattern dominated by slow or no growth. *Atmos. Environ.*, 67, 331-335.
- OMS, 2013. Review of evidence on health aspects of air pollution. REVIHAAP" X, Technical Report. WHO Regional Office for Europe, OMS Copenhagen, 309 p.
- Oudart D., 2013. Modélisation de la stabilisation de la matière organique et des émissions gazeuses au cours du compostage d'effluents d'élevage. Université de Toulouse/Institut national des sciences appliquées, Toulouse.

- Paatero P., Tapper U., 1993. Analysis of different modes of factor analysis as least squares fit problems. *Chemometr. Intell. Lab.*, 18 (2), 183-194.
- Paillard S., Treyer S., Dorin B. (dir.), 2010. *Agrimonde. Scénarios et défis pour nourrir le monde en 2050*, Versailles, Éditions Quæ.
- Palmer P.I., Abbot D.S., Fu T.-M. *et al.*, 2006. Quantifying the seasonal and interannual variability of North American isoprene emissions using satellite observations of the formaldehyde column. *J. Geophys. Res.*, 111.
- Pandis S.N., Paulson S.E., Seinfeld J.H. *et al.*, 1991. Aerosol formation in the photooxidation of isoprene and β -pinene. *Atmospheric Environment. Part A. General Topics*, 25, 997-1008.
- Parcevaux S. de, Huber L., 2007. *Bioclimatologie : concepts et applications*, Éditions Quæ.
- Park J.-H., Goldstein A.H., Timkovsky J. *et al.*, 2013. Active atmosphere-ecosystem exchange of the vast majority of detected volatile organic compounds. *Science*, 341.
- Parnaudeau V., Reau R., Dubrulle P., 2012. Un outil d'évaluation des fuites d'azote vers l'environnement à l'échelle du système de culture : le logiciel Syst'N. *Innov. Agron.*, 21, 59-70.
- Parton W.J., Hartman M., Ojima D. *et al.*, 1998. DAYCENT and its land surface submodel: description and testing. *Global Planet. Change*, 19, 35-48.
- Party J.P., Probst A., Dambrine E. *et al.*, 1995. Critical loads of acidity to surface waters in the Vosges massif (North-East of France). *Water Air Soil Poll.*, 85, 2407-2412.
- Pascal M., de Crouy Chanel P., Wagner V. *et al.*, 2016. The mortality impacts of fine particles in France. *Sci. Total Environ.*, 571, 416-425.
- Passig J., Schade J., Oster M. *et al.*, 2017. Aerosol mass spectrometer for simultaneous detection of polyaromatic hydrocarbons and inorganic components from individual particles. *Anal. Chem.*, 89, 6341-6345.
- Paulot F., Jacob D.J., Pinder R.W. *et al.*, 2014. Ammonia emissions in the United States European Union and China derived by high-resolution inversion of ammonium wet deposition data: Interpretation with a new agricultural emissions inventory (MASAGE_NH3). *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 119, 4343-4364.
- Paulson S.E., Chung M.Y., Hasson A.S., 1999. OH Radical formation from the gas-phase reaction of ozone with terminal alkenes and the relationship between structure and mechanism. *J. Phys. Chem. A.*, 103, 8125-8138.
- Pecenka J.R., Lundgren J.G., 2015. Non-target effects of clothianidin on monarch butterflies. *Science of Nature*, 102, 1-4.
- Pellerin S., Pardon L., Bamière L., 2015. *Agriculture et gaz à effet de serre : dix actions pour réduire les émissions*, Versailles, Éditions Quæ.
- Pellerin S., Bamière L., Angers D. *et al.*, 2013. Quelle contribution de l'agriculture française à la réduction des émissions de gaz à effet de serre ? Potentiel d'atténuation et coût de dix actions techniques. Synthèse du rapport d'étude Inra, 92 p.
- Pelosi C., Barot S., Capowicz Y. *et al.*, 2014a. Pesticides and earthworms. A review. *Agron. Sustain. Dev.*, 34, 199-228.
- Pelosi C., Pey B., Hedde M. *et al.*, 2014b. Reducing tillage in cultivated fields increases earthworm functional diversity. *Appl. Soil. Ecol.*, 83, 79-87.
- Personne E., Loubet B., Herrmann B. *et al.*, 2009. SURFATM-NH3: a model combining the surface energy balance and bi-directional exchanges of ammonia applied at the field scale. *Biogeosci.*, 6, 1371-1388.
- Personne E., Tardy F., Générumont S. *et al.*, 2015. Investigating sources and sinks for ammonia exchanges between the atmosphere and a wheat canopy following slurry application with trailing hose. *Agric. For Meteorol.*, 207, 11-23.
- Perugini L., Caporaso L., Marconi S. *et al.*, 2017. Biophysical effects on temperature and precipitation due to land cover change. *Environ. Res. Lett.*, 12, 053002.
- Petetin H., Sciare J., Bressi M. *et al.*, 2016. Assessing the ammonium nitrate formation regime in the Paris megacity and its representation in the CHIMERE model. *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 10419-10440.

- Petit C., Rémy E., Aubry C., 2009. Trafic routier et distances de sécurité : le dilemme de l'agriculture en Île-de-France. *VertigO-la revue électronique en sciences de l'environnement*.
- Petit C., Loubet B., Rémy E. *et al.*, 2013. Dépôt de polluants sur les espaces agricoles à proximité des voies de transport en Île-de-France. Quantification perception et adaptation des acteurs. *VertigO-la revue électronique en sciences de l'environnement*, hors-série n° 15.
- Peyraud J.-L., Cellier P., Donnars C. *et al.* (coord.), 2014. *Réduire les pertes d'azote dans l'élevage*, Versailles, Éditions Quæ, 166 p.
- Peyraud J.-L., Vertès F., Delaby L. *et al.*, 2012. Bilans des flux d'azote au niveau des systèmes de production animale. In : *Les flux d'azote liés aux élevages. Réduire les pertes rétablir les équilibres* (J.-L. Peyraud, P. Cellier, F. Aarts *et al.*, eds), Inra, 295-331.
- Pfliieger M., Monod A., Wortham H., 2009. Kinetic study of heterogeneous ozonolysis ofalachlor trifluralin and terbuthylazine adsorbed on silica particles under atmospheric conditions. *Atmos. Environ.*, 43, 5597-5603.
- Pierlot F. *et al.*, 2016. Projet EQUIPE. Évaluation de la qualité prédictive de 26 indicateurs de risque de transfert de pesticides dans les eaux et du modèle MACROitile. In : *AFPP, 23^e Conférence du COLUMA. Journées internationales sur la lutte contre les mauvaises herbes*, Dijon, 6-8 décembre 2016, 1-10.
- Pillar-Little E.A., Guzzar M.I., 2018. An overview of dynamic heterogeneous oxidations in the troposphere. *Environments*, 5, 104.
- Pimentel D., Edwards C.A., 1982. Pesticides and ecosystems. *BioScience*, 32, 595-600.
- Pistre P., 2012. Renouveaux des campagnes françaises. Thèse soutenue devant l'université de Paris-Diderot, 420 p.
- Pitcairn C.E.R., Leith I.D., Sheppard L.J. *et al.*, 1998. The relationship between nitrogen deposition, species composition and foliar nitrogen concentrations in woodland flora in the vicinity of livestock farms. *Environ. Poll.*, 102 (S1), 41-48.
- Pitt J.R., Le Breton M., Allen G. *et al.*, 2016. The development and evaluation of airborne in situ N₂O and CH₄ sampling using a quantum cascade laser absorption spectrometer (QCLAS). *Atmos. Meas. Tech.*, 9, 63-77.
- Ponisio L.C., M'Gonigle L.K., Mace K.C. *et al.*, 2015. Diversification practices reduce organic to conventional yield gap. *Proc. Royal. Soc. B.*, 282, 20141396.
- Pöschl U., 2005. Atmospheric aerosols: composition, transformation, climate and health effects. *Angewandte Chemie*, International Edition, 44, 7520-7540.
- Pot V., Peth S., Monga O. *et al.*, 2015. Three-dimensional distribution of water and air in soil pores: comparison of two-phase two-relaxation-times lattice-Boltzmann and morphological model outputs with synchrotron X-ray computed tomography data. *Adv. Water Res.*, 84, 87-102.
- Potard K., Monard C., Le Garrec J.-L. *et al.*, 2017. Organic amendment practices as possible drivers of biogenic Volatile Organic Compounds emitted by soils in agrosystems. *Agric. Ecos. Environ.*, 250, 25-36.
- Potera C., 2008. Air pollution: floral scents going off the air? *Environ. Health Perspect.*, 116, A334.
- Potier D., 2014. Pesticides et agroécologie : les champs du possible. Rapport au Premier ministre, 252 p., <https://agriculture.gouv.fr/rapport-de-dominique-potier-pesticides-et-agro-ecologie-les-champs-du-possible>.
- Potier E., Loubet B., Durand B. *et al.*, 2017. Chemical reaction rates of ozone in water infusions of wheat beech oak and pine leaves of different ages. *Atmos. Environ.*, 151, 176-187.
- Potier E., Ogée J., Jouanguy J. *et al.*, 2015. Multilayer modelling of ozone fluxes on winter wheat reveals large deposition on wet senescing leaves. *Agric. For Meteorol.*, (211-212), 58-71.
- Poux X., Aubert P.-M., 2018. Une Europe agroécologique en 2050 : une agriculture multifonctionnelle pour une alimentation saine. Enseignements d'une modélisation du système alimentaire européen Iddri-AScA Study n° 09/18, Paris.
- Pozzer A., Tsimpidi A.P., Karydis V.A. *et al.*, 2017. Impact of agricultural emission reductions on fine-particulate matter and public health. *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 12813-12826.

- Pratt K.A., Prather K.A., 2009. Real-time single-particle volatility size and chemical composition measurements of aged urban aerosols. *Environ. Sci. Technol.*, 43, 8276-8282.
- Preston C.D., Telfer M.G., Roy D.B. *et al.*, 2003. The changing distribution of the flora of the United Kingdom: Technical Report No. C01093. Natural Environment Research Council-CEH.
- Pye K., 1987. *Aeolian Dust and Dust Deposits*, Academic Press, London-Orlando.
- Quinn A., Wilson M., Reynolds A. *et al.*, 2001. Modelling the dispersion of aerial pollutants from agricultural buildings. An evaluation of computational fluid dynamics (CFD). *Comput. Electron. Agr.*, 30, 219-235.
- Raivonen M., Vesala T., Pirjola L. *et al.*, 2009. Compensation point of NO_x exchange: net result of NO_x consumption and production. *Agric. For Meteorol.*, 149, 1073-1081.
- Ramanantenasoa M.M.J., Gilliot J.-M., Mignolet C. *et al.*, 2018. A new framework to estimate spatio-temporal ammonia emissions due to nitrogen fertilization in France. *Science Total Environ.*, 645, 205-219.
- Rands M.R.W., 1985. Pesticide use on cereals and the survival of grey partridge chicks: a field experiment. *J. Appl. Ecol.*, 22, 49-54.
- Rapson T.D., Dacres H., 2014. Analytical techniques for measuring nitrous oxide. *Trends Analyt. Chem.*, 54, 65-74.
- Rather P.A., Wanganeo A., Mushtaq B. *et al.*, 2014. Air quality monitoring and effects of air pollution on animal health in Bhopal, India. *Int. J. Modern Biol. Med.*, 5, 100-111.
- Raupach M.R., Woods N., Dorr G. *et al.*, 2001. The entrainment of particles by windbreaks. *Atmos. Environ.*, 35, 3373-3383.
- Réchauchère O., Schmidely P., Doré T., 2008. *Les clés des champs. L'agriculture en question*, Versailles, Éditions Quæ, 192 p.
- Reche C. *et al.*, 2014. Outdoor and indoor UFP in primary schools around Barcelona. *Sci. Total Environ.*, 493, 943-953.
- Relyea R.A., 2005. The lethal impact of roundup on aquatic and terrestrial amphibians. *Ecol. Appl.*, 15, 1118-1124.
- Renaud-Gentié C., Dijkman T.J., Bjørn A., Birkved M., 2015. Pesticide emission modelling and freshwater ecotoxicity assessment for Grapevine LCA: adaptation of PestLCI 2.0 to viticulture. *Int. J. Life Cycle Ass.*, 20, 1528-1543.
- Reynolds W.C., Kassinos S.C., 1995. One-point modelling of rapidly deformed homogeneous turbulence. *Proc. Math. Phys. Sci.*, 451, 87-104.
- Richard C., Ter Halle A., de Sainte-Claire P. *et al.*, 2015. La photolyse des pesticides sur les feuilles. Comprendre les réactions afin d'améliorer l'efficacité des traitements phytosanitaires. *L'actualité chimique*, 75-77.
- Richard G., Stengel P., Lemaire G. *et al.*, 2019. *Une agronomie pour le XXI^e siècle*, Versailles, Éditions Quæ, 304 p.
- Richardson G.M., Walklate P.J., Baker D.E., 2004. Spray drift from apple orchards with deciduous windbreaks. *Aspects of Applied Biology*, 71, 149-156.
- Riedo M., Grub A., Rosset M., Fuhrer J., 1998. A pasture simulation model for dry matter production and fluxes of carbon nitrogen water and energy. *Ecol. Mod.*, 105, 141-183.
- Riedo M., Milford C., Schmid M. *et al.*, 2002. Coupling soil-plant-atmosphere exchange of ammonia with ecosystem functioning in grasslands. *Ecol. Mod.*, 158, 83-110.
- Robin P., Amand G., Aubert C. *et al.*, 2010. Procédures de référence pour la mesure des émissions de polluants gazeux des bâtiments d'élevage et stockages d'effluents d'élevage. Rapport final.
- Rodean H.C., 1996. *Stochastic Lagrangian Models of Turbulent Diffusion*, American Meteorological Society, Boston, MA.
- Rodríguez-Concepción M., Boronat A., 2015. Breaking new ground in the regulation of the early steps of plant isoprenoid biosynthesis. *Curr. Opinion Plant Biol.*, 25, 17-22.
- Roger M., Bruen M., 1998. Choosing realistic values of indifference preference and veto thresholds for use with environmental criteria within ELECTRE. *Eur. J. Operat. Res.*, 107, 542-551.

- Rolland M.-N., Gabrielle B., Laville P. *et al.*, 2010. High-resolution inventory of NO emissions from agricultural soils over the Île-de-France region. *Environ. Poll.*, 158, 711-722.
- Roqueplo P., 1988. *Pluies acides, menace pour l'Europe*, Paris, Economica.
- Rosenbaum R. *et al.*, 2008. USEtox-the UNEP-SETAC toxicity model: recommended characterisation factors for human toxicity and freshwater ecotoxicity in life cycle impact assessment. *Int. J. Life. Cycle Assess.*, 13, 532.
- Rotstayn L.D., Cai W., Dix M.R. *et al.*, 2007. Have Australian rainfall and cloudiness increased due to the remote effects of Asian anthropogenic aerosols? *J. Geophys. Res.*, 112.
- Rouil L., Bessagnet B., Favez O., Leoz-Garziandia E., Meleux F., 2015. Épisodes de pollution particulière en France : quels enseignements tirer des récents épisodes ? *Pollution atmosphérique*, n° spécial Les épisodes de forte pollution des années 2013 et 2014 : un retour d'expérience.
- Roussel I., 2016. Les habitants de l'espace rural : quelle exposition à la pollution atmosphérique ? *Pollution atmosphérique*, 229-230, 91-115.
- Roussel I., Charles L., 2007. L'impossible territorialisation de la qualité de l'air. In : *Environnement et gouvernance des territoires. Enjeux expériences et perspectives en région Nord-Pas-de-Calais* (H. Scarwell, C. Kergomard, R. Laganier, dir.), Lille, Presses universitaires du Septentrion.
- Roy B., 1985. *Méthodologie multicritère d'aide à la décision*, Paris, Economica.
- Sander R., 2015. Compilation of Henry's law constants (version 4.0) for water as solvent. *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 4399-4981.
- Sandrock C., Tanadini L.G., Pettis J.S. *et al.*, 2014. Sublethal neonicotinoid insecticide exposure reduces solitary bee reproductive success: loss of pollinator fitness. *Agric. For Entomol.*, 16, 119-128.
- Santé-Canada, 2016. Évaluation des risques pour la santé humaine du dioxyde d'azote ambiant. Monographie Santé-Canada.
- Santonja G.G., Georgitzikis K., Scalet B.M. *et al.*, 2017. Best Available Techniques (BAT) Reference Document for the Intensive Rearing of Poultry or Pigs, EUR 28674 EN., <https://ec.europa.eu/jrc/en/publication/eur-scientific-and-technical-research-reports/best-available-techniques-bat-reference-document-intensive-rearing-poultry-or-pigs>.
- Sarda-Estève R., Huffman M., Gallagher J. A. *et al.*, 2014. *BIODETECT 2014 Campaign in Paris Area: Overview of the Experimental Strategy and Preliminary Results*, AAAR Orlando, USA.
- Satchivi N.M., Stoller E.W., Wax L.M. *et al.*, 2001. A nonlinear dynamic simulation model for xenobiotic transport and whole plant allocation following foliar application. III. Influence of chemical properties plant characteristics and environmental parameters on xenobiotic absorption and translocation. *Pest. Biochem. Physiol.*, 71, 77-87.
- Sauvage S.H., Plaisance N., Locoge *et al.*, 2009. Long term measurement and source apportionment of non-methane hydrocarbons in three French rural areas. *Atmos. Environ.*, 43 (15), 2430-2441.
- Scarwell H.J., 2016. Agriculture et environnement : entre attermolements et régulations européennes. Cent fois donc sur le métier... *Pollution atmosphérique*, 229-230, 29-42.
- Schiffman S.S., Bennett J.L., Raymer J.H., 2001. Quantification of odors and odorants from swine operations in North Carolina. *Agric. For Meteorol.*, 108, 213-240.
- Schjoerring J.K., 1997. Plant-atmosphere ammonia exchange: quantification physiological regulation and interactions with environmental factors [*Deschampsia flexuosa* 20 affiliated papers], KVL.
- Schmitz J., Schafer K., Bruhl C.A., 2013. Agrochemicals in field margins. Assessing the impacts of herbicides insecticides and fertilizer on the common buttercup (*Ranunculus acris*). *Environ. Toxicol. Chem.*, 32, 1124-1131.
- Scholtz M.T., Voldner E., McMillan *et al.*, 2002. A pesticide emission model (PEM). Part I: model development. *Atmos. Environ.*, 36, 5005-5013.
- Schwarzenbach R., Gschwend P.M., Imboden D.M., 1993. *Environmental Organic Chemistry*, First Edition, New York, John Wiley & Sons.
- Scott J.C., 2019. *Homo domesticus. Une histoire profonde des premiers États*, Paris, La Découverte.
- Seidl R., Klöner G., Rammer W. *et al.*, 2018. Invasive alien pests threaten the carbon stored in Europe's forests. *Nature Communications*, 9, 1626.

- Seinfeld J.H., Pandis S.N., Noone K., 1998. Atmospheric chemistry and physics: from air pollution to climate change. *Physics Today*, 51, 88.
- Seinfeld J.H., Pandis S.N., 2016. *Atmospheric Chemistry and Physics: from Air Pollution to Climate Change*, Third Edition, New Jersey, John Wiley & Sons Inc Hoboken.
- Selmi W., Weber C., Rivière E. *et al.*, 2016. Air pollution removal by trees in public green spaces in Strasbourg city France. *Urban. For. Urban Gree.*, 17, 182-201.
- Shephard M.W., Worden H.M., Cady-Pereira *et al.*, 2008. Tropospheric Emission Spectrometer nadir spectral radiance comparisons. *J. Geophys. Res.*, 113, D15S05.
- Silva P.J., Erupe M.E., Price D. *et al.*, 2008. Trimethylamine as precursor to secondary organic aerosol formation via nitrate radical reaction in the atmosphere. *Environ. Sci. Technol.*, 42, 4689-4696.
- Simpson D., Tuovinen J.-P., 2014. ECLAIRE Ecosystem Surface Exchange model (ESX). In: *Transboundary Particulate Matter Photo-Oxidants Acidifying and Eutrophying Components*. EMEP Status Report 1/2014, Norwegian Meteorological Institute.
- Simpson D., Benedictow A., Berge H. *et al.*, 2012. The EMEP MSC-W chemical transport model technical description. *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 7825-7865.
- Sinha V., Williams J., Crowley J.N. *et al.*, 2008. The Comparative Reactivity Method. A new tool to measure total OH Reactivity in ambient air. *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 2213-2227.
- Sintermann J. *et al.*, 2011. Eddy covariance flux measurements of ammonia by high temperature chemical ionisation mass spectrometry. *Atmos. Meas. Tech.*, 4, 599-616.
- Sintermann J., Neftel A., Ammann C. *et al.*, 2012. Are ammonia emissions from field-applied slurry substantially over-estimated in European emission inventories? *Biogeosci.*, 9, 1611-1632.
- Sintermann J., Schallhart S., Kajos M. *et al.*, 2014. Trimethylamine emissions in animal husbandry. *Biogeosci.*, 11, 5073-5085.
- Sitch S., Cox P.M., Collins W.J. *et al.*, 2007. Indirect radiative forcing of climate change through ozone effects on the land-carbon sink. *Nature*, 448, 791-795.
- Skeffington R.A., Wilson E.J., 1988. Excess nitrogen deposition: issues for consideration. *Environ. Poll.*, 54, 159-184.
- Sleiman M., de Sainte-Claire P., Richard C., 2017. Heterogeneous photochemistry of agrochemicals at the leaf surface: a case study of plant activator acibenzolar-S-methyl. *J. Agr. Food Chem.*, 65 (35), 7653-7660.
- Sliggers J., Kakebeeke W., United Nations (eds), 2004. *Clearing the air: 25 years of the Convention on Long-range Transboundary Air Pollution*, New York, United Nations.
- Smith E., Gordon R., Bourque C. *et al.*, 2009. Simulated management effects on ammonia emissions from field applied manure. *J. Environ. Manage.*, 90, 2531-2536.
- Socorro J., 2015. Étude de la réactivité hétérogène de pesticides adsorbés sur des particules modèles atmosphériques : cinétiques et produits de dégradation. Thèse de l'université Aix-Marseille, École doctorale Science de l'environnement, 254 p.
- Socorro J., Durand A., Temime-Roussel B. *et al.*, 2016. The persistence of pesticides in atmospheric particulate phase: an emerging air quality issue. *Scientific Report*, 6, 33456.
- Socorro J., Gligorovski S., Wortham H. *et al.*, 2015. Heterogeneous reactions of ozone with commonly used pesticides adsorbed on silica particles. *Atmos. Environ.*, 100, 66-73.
- Socorro J., Lakey P.S.J., Han L. *et al.*, 2017. Heterogeneous OH oxidation shielding effects and implications for the atmospheric fate of terbuthylazine and other pesticides. *Environ. Sci. Technol.*, 51 (23), 13749-13754.
- Søgaard H., Sommer S., Hutchings N. *et al.*, 2002. Ammonia volatilization from field-applied animal slurry: the ALFAM model. *Atmos. Environ.*, 36, 3309-3319.
- Sommer S.G., Générmont S., Cellier P. *et al.*, 2003. Processes controlling ammonia emission from livestock slurry in the field. *Eur. J. Agron.*, 19, 465-486.
- Sommer S.G., Zhang G.Q., Bannink A. *et al.*, 2006. *Algorithms determining ammonia emission from buildings housing cattle and pigs and from manure stores*. *Advances in Agronomy*, Elsevier, 261-335.

- Spott A., Peters J., Davenport M. *et al.*, 2016. Heterogeneously integrated distributed feedback quantum cascade lasers on silicon. *Photonics*, 3, 35.
- Stathopoulou E., Mihalakakou G., Santamouris M. *et al.*, 2008. On the impact of temperature on tropospheric ozone concentration levels in urban environments. *J. Earth. Syst. Sci.*, 117, 227-236.
- Stavrakou T., Müller J.-F., Bauwens M. *et al.*, 2015. How consistent are top-down hydrocarbon emissions based on formaldehyde observations from GOME-2 and OMI? *Atmos. Chem. Phys.*, 15 (20), 11861-11884.
- Stella P. *et al.*, 2012. Comparison of methods for the determination of NO-O-3-NO₂ fluxes and chemical interactions over a bare soil. *Atmos. Meas. Tech.*, 5 (6), 1241-1257.
- Stella P., Loubet B., de Berranger C. *et al.*, 2019. Soil ozone deposition: dependence of soil resistance to soil texture. *Atmos. Environ.*, 199, 202-209.
- Stella P., Loubet B., Lamaud E. *et al.*, 2011. Ozone deposition onto bare soil: a new parameterisation. *Agric. for Meteorol.*, 151, 669-681.
- Stella P., Personne E., Loubet B. *et al.*, 2011. Predicting and partitioning ozone fluxes to maize crops from sowing to harvest: the Surfatzm-O-3 model. *Biogeosci.*, 8, 2869-2886.
- Stella P. *et al.*, 2016. Les espaces périurbains : entre pollution des villes et pollution des champs aux échelles régionale et locale. *Pollution atmosphérique. Climat, santé, société*, n° spécial « Agriculture et qualité de l'air entre villes et campagnes », 76-90.
- Stull R.B., 1988. *An Introduction to Boundary Layer Meteorology*, Dordrecht, Kluwer Academic Publishers.
- Super I., Vilà-Guerau de Arellano J., Krol M.C., 2015. Cumulative ozone effect on canopy stomatal resistance and the impact on boundary layer dynamics and CO₂ assimilation at the diurnal scale: a case study for grassland in the Netherlands. *J. Geophys. Res: Biogeosci.*, 120, 1348-1365.
- Surratt J.D., Kroll J.H., Kleindienst T.E. *et al.*, 2007. Evidence for organosulfates in secondary organic aerosol. *Environ. Sci. Technol.*, 41, 517-527.
- Sutton M.A., Burkhardt J.K., Guerin D. *et al.*, 1995. Measurement and modelling of ammonia exchange over arable croplands. *Stud. Environ. Sci., Acid Rain Research: Do We Have Enough Answers?*, 64, 71-80.
- Sutton M.A., Burkhardt J.K., Guerin D. *et al.*, 1998. Development of resistance models to describe measurements of bi-directional ammonia surface-atmosphere exchange. *Atmos. Environ.*, 32, 473-480.
- Sutton M.A., Howard C.M., Erisman J.W. *et al.* (eds), 2011. *The European Nitrogen Assessment: Sources Effects and Policy Perspectives*, Cambridge, Cambridge University Press, 620 p.
- Sutton M.A., Miners B., Tang Y.S. *et al.*, 2001. Comparison of low cost measurement techniques for long-term monitoring of atmospheric ammonia. *J. Environ. Monit.*, 3, 446-453.
- Tang Y.S., Cape J.N., Sutton M.A., 2001. Development and types of passive samplers for monitoring atmospheric NO₂ and NH₃ concentrations. *Sci. World. J.*, 1, 513-529.
- Tao F., Feng Z., Tang H. *et al.*, 2017. Effects of climate change CO₂ and O₃ on wheat productivity in Eastern China singly and in combination. *Atmos. Environ.*, 153, 182-193.
- Testart A., 1982. *Les chasseurs-cueilleurs ou l'origine des inégalités*, Paris, Société d'ethnographie.
- Thangarajan R., Bolan N.S., Tian G. *et al.*, 2013. Role of organic amendment application on greenhouse gas emission from soil. *Sci. Total. Environ.*, 465, 72-96.
- Theaker A., 1995. The effect of nitrogen fertiliser on the growth of *Bromus sterilis* in field boundary vegetation. *Agric. Ecosys. Environ.*, 53, 185-192.
- Theobald M.R., Crittenden P.D., Tang Y.S. *et al.*, 2013. The application of inverse-dispersion and gradient methods to estimate ammonia emissions from a penguin colony. *Atmos. Environ.*, 81, 320-329.
- Thibaudon M., Poilane S., Dupuy N., 2013. Prélèvement et analyse des moisissures dans l'air. *Salles propres*, 87.
- Thomas M., Gaultier C., 2009. Investigations of the March 2006 African dust storm using ground-based column-integrated high spectral resolution infrared (813 (m)) and visible aerosol optical thickness measurements: 2. Mineral aerosol mixture analyses. *J. Geophys. Res. Atmos.*, 114, D14209.

- Thorsheim P., 2006. *Inventing Pollution: Coal Smoke and Culture in Britain since 1800*, Athens, Ohio University Press.
- Tiktak A., Nie D.D., Van Der Linden T., Kruijne R., 2002. Modelling the leaching and drainage of pesticides in the Netherlands: the GeoPEARL model. *Agronomie*, 22, 373-387.
- Tørseth K., Aas W., Breivik K. *et al.*, 2012. Introduction to the European Monitoring and Evaluation Programme (EMEP) and observed atmospheric composition change during 1972-2009. *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 5447-5481.
- Trapp S., Matthies M., 1997. Modeling Volatilization of PCDD/F from Soil and Uptake into Vegetation. *Environ. Sci. Technol.*, 31, 71-74.
- Trapp S., Matthies M., McFarlane C., 1994. Model for uptake of xenobiotics into plants: validation with bromacil experiments. *Environ. Toxicol. Chem.*, 13, 413-422.
- Triplet J.P., Roche G., 1996. *Météorologie générale*, Météo-France Paris.
- Tuzet A., Perrier A., Loubet B. *et al.*, 2011. Modelling ozone deposition fluxes: the relative roles of deposition and detoxification processes. *Agric. For Meteorol.*, 151, 480-492.
- Tuzet A., Sanz C., Zurfluh O. *et al.*, 1995. Les échanges convectifs au sein du couvert. In : *De la plante au couvert végétal* (P. Cruiziat, P. Lagouarde, eds), École-Chercheurs Inra en bioclimatologie, Inra, Département de Bioclimatologie, Le Croisic, 425-440.
- Uekoetter F., 2009. *The Age of Smoke. Environmental Policy in Germany and the United States 1880-1970*, Pittsburgh, University of Pittsburgh Press.
- Ueyama M. *et al.*, 2012. Influences of various calculation options on heat water and carbon fluxes determined by open- and closed-path eddy covariance methods. *Tellus Series B-Chem. Phys. Meteorol.*, 64.
- US EPA, 2013. Integrated science assessment of ozone and related photochemical oxidants. Report No. EPA/600/R-10/076F, Washington DC.
- US EPA, 2016. Integrated science assessment for oxides of nitrogen. Health criteria. Report No. EPA/600/R-15/068, Washington DC.
- Van Damme M., Clarisse L., Whitburn S. *et al.*, 2018. Industrial and agricultural ammonia point sources exposed. *Nature*, 99, 103.
- Van Damme M., Whitburn S., Clarisse L. *et al.*, 2017. Version 2 of the IASI \chemNH_3 neural network retrieval algorithm: near-real-time and reanalysed datasets. *Atmos. Meas. Tech.*, 10, 4905-4914.
- Van den Berg F., van den Tiktak A., Boesten J.J.T.I. *et al.*, 2016. PEARL model for pesticide behaviour and emissions in soil-plant systems. Rapport Statutory Research Tasks Unit for Nature and the Environment, Wageningen.
- van der Molen J., Beljaars A.C.M., Chardon W.J. *et al.*, 1990. Ammonia volatilization from arable land after application of cattle slurry. 2. Derivation of a transfer model. *Netherlands J. Agric. Sci.*, 38, 239-254.
- van der Werf H.M., Zimmer C., 1998. An indicator of pesticide environmental impact based on a fuzzy expert system. *Chemosphere*, 36, 2225-2249.
- Van Hove L.W.A., Adema E.H., Vredenberg W.J. *et al.*, 1989. A study of the adsorption of NH₃ and SO₂ on leaf surfaces. *Atmos. Environ.*, 23, 1479-1486.
- van Jaarsveld J.A., de Leeuw F.A.A.M., 1993. OPS: an operational atmospheric transport model for priority substances. *Environ. Soft*, 8, 91-100.
- Veldkamp E., Keller M., 1997. Fertilizer-induced nitric oxide emissions from agricultural soils. *Nut. Cycl. Agroecosys.*, 48, 69-77.
- Vesin A., Bouchoux G., Quivet E. *et al.*, 2012. Use of the HS-PTR-MS for online measurements of pyrethroids during indoor insecticide treatments. *Analyt. Bioanalyt. Chem.*, 403, 1907-1921.
- Vezina A., Talbot P., 2011. Des haies brise-vent pour réduire la dérive des pesticides en vergers. Guide édité par Biopterre (www.biopterre.ca) et disponible sur https://producteursdepommes-quebec.ca/wp-content/uploads/2013/12/guide_pesticide.pdf, 8 p.
- Villena G., Bejan I., Kurtenbach R. *et al.*, 2012. Interferences of commercial NO₂ instruments in the urban atmosphere and in a smog chamber. *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 149-159.

- Villermé L.-R., 2008. *La mortalité dans les divers quartiers de Paris*, Paris, La Fabrique Éditions.
- Von Bobrutzki K., Braban C. *et al.*, 2010. Field inter-comparison of eleven atmospheric ammonia measurement techniques. *Atmos. Meas. Tech.*, 3, 91-112.
- von Hoffen L.P., Säumel I., 2014. Orchards for edible cities: Cadmium and lead content in nuts berries pome and stone fruits harvested within the inner city neighbourhoods in Berlin Germany. *Ecotox. Environ. Safety*, 101, 233-239.
- Vorne V., Ojanpera K., De Temmerman L., 2002. Effects of elevated carbon dioxide and ozone on potato tuber quality in the European multiple-site experiment "CHIP-project". *Eur. J. Agron.*, 17, 369-381.
- Vuolo R.M., Loubet B., Mascher N. *et al.*, 2017. Nitrogen oxides and ozone fluxes from an oilseed-rape management cycle: the influence of cattle slurry application. *Biogeosci.*, 14, 2225-2244.
- Walker J.T., Whittall D.R., Robarge W. *et al.*, 2004. Ambient ammonia and ammonium aerosol across a region of variable ammonia emission density. *Atmos. Environ.*, 38, 1235-1246.
- Wang Y., Yang B., Zhang P. *et al.*, 2012. Heterogeneous reactions of pirimiphos-methyl and pirimicarb with NO₃ radicals. *J. Phys. Chem. A.*, 116, 10802-10809.
- Weisskopf M.G., Kioumourtzoglou M.-A., Roberts A.L., 2015. Air pollution and autism spectrum disorders: causal or confounded? *Cur. Environ. Health Rep.*, 2, 430-439.
- Wenneker M., Heijne B., Van De Zande J.C., 2005. Effect of natural windbreaks on drift reduction in orchard spraying. *Communications in Agricultural and Applied Biological Sciences*, 70, 961-969.
- White J.D., Ferretti *et al.*, 2002. Stable isotope measurements of atmospheric CO₂. In: *Stable Isotope Measurement Techniques for Atmospheric Greenhouse Gases*, IAEA-TECDOC, 3-23.
- Whitehead J.D. *et al.*, 2008. Evaluation of laser absorption spectroscopic techniques for eddy covariance flux measurements of ammonia. *Environ. Sci. Technol.*, 42, 2041-2046.
- WHO, 2016. *Ambient Air Pollution: A Global Assessment of Exposure and Burden of Disease*, WHO.
- Wichink Kruit R.J., Schaap M., Sauter F.J. *et al.*, 2012. Modeling the distribution of ammonia across Europe including bi-directional surface-atmosphere exchange. *Biogeosci.*, 9, 5261-5277.
- Wichink Kruit R.J., van Pul W.A.J., Sauter F.J. *et al.*, 2010. Modeling the surface-atmosphere exchange of ammonia. *Atmos. Environ.*, 44, 945-957.
- Wiedinmyer C., Friedfeld S., Baugh W. *et al.*, 2001. Measurement and analysis of atmospheric concentrations of isoprene and its reaction products in central Texas. *Atmos. Environ.*, 35, 1001-1013.
- Wild O., Fiore A.M., Shindell D.T. *et al.*, 2012. Modelling future changes in surface ozone: a parameterized approach. *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 2037-2054.
- Williams E.J., Guenther A., Fehsenfeld F.C., 1992. An inventory of nitric oxide emissions from soils in the United States. *J. Geophys. Res. Atm.*, 97, 7511-7519.
- Wilson J.D., Sawford B.L., 1996. Review of Lagrangian stochastic models for trajectories in the turbulent atmosphere. *Bound. Layer Meteorol.*, 78, 191-210.
- Wojkiewicz J.-L., Redon N., Pud A.A. *et al.*, 2017. Hybrid and bio nanocomposites for ultrasensitive ammonia. *Sensors Proc.*, 407, 1-5.
- Wolfe G., Thornton J., 2011. The Chemistry of Atmosphere-Forest Exchange (CAFE) Model. Part 1: Model description and characterization. *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 77-101.
- Woodrow J.S.E., Sieber J.S.N., Baker L., 1997. Correlation techniques for estimating pesticide volatilization flux and downwind concentrations. *Environ. Sci. Technol.*, 31, 523-529.
- Wu Y., 2003. A multilayer biochemical dry deposition model. 1. Model formulation. *J. Geophys. Res.*, 108.
- Wu Y.H., Walker J., Schwede D. *et al.*, 2009. A new model of bi-directional ammonia exchange between the atmosphere and biosphere: Ammonia stomatal compensation point. *Agric. for Meteorol.*, 149, 263-280.
- Wu-Haan W., Powers W.J., Angel C.R. *et al.*, 2007. Effect of an acidifying diet combined with zeolite and slight protein reduction on air emissions from laying hens of different ages. *Poultry Sci.*, 86, 182-190.

- Yang Y., Wang X., Nölscher A.C. *et al.*, 2016. Towards a quantitative understanding of total OH reactivity: a review. *Atmos. Environ.*, 134, 147-161.
- Yee E., Flesch T.K., 2010. Inference of emission rates from multiple sources using Bayesian probability theory. *J. Environ. Monit.*, 12, 622-634.
- Yienger J.J., Levy H., 1995. Empirical model of global soil-biogenic NO_x emissions. *J. Geophys. Res: Atmos.*, 100, 11447-11464.
- Yuan B., Coggon M.M., Koss A.R. *et al.*, 2017. Emissions of volatile organic compounds (VOCs) from concentrated animal feeding operations (CAFOs): chemical compositions and separation of sources. *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 4945-4956.
- Zannoni N., Gros V., Lanza M. *et al.*, 2016. OH reactivity and concentrations of biogenic volatile organic compounds in a Mediterranean forest of downy oak trees. *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 1619-1636.
- Zbieranowski A.L., Aherne J., 2012. Ambient concentrations of atmospheric ammonia nitrogen dioxide and nitric acid across a rural-urban-agricultural transect in southern Ontario Canada. *Atmos. Environ.*, 62, 481-491.
- Zheng F., Wang X., Zhang W. *et al.*, 2013. Effects of elevated O₃ exposure on nutrient elements and quality of winter wheat and rice grain in Yangtze River Delta China. *Environ. Poll.*, 179, 19-26.
- Zhu L., Henze D.K., Bash J.O. *et al.*, 2015. Sources and impacts of atmospheric NH₃: current understanding and frontiers for modeling measurements and remote sensing in North America. *Curr. Pollution Rep.*, 1, 95-116.
- Zhu L., Henze D.K., Cady-Pereira K.E. *et al.*, 2013. Constraining US ammonia emissions using TES remote sensing observations and the GEOS-Chem adjoint model: inverse modeling of NH₃ emissions. *J. Geophys. Res: Atmos.*, 118, 3355-3368.
- Zimmer W., Brüggemann N., Emeis S. *et al.*, 2000. Process-based modelling of isoprene emission by oak leaves. *Plant. Cell. Environ.*, 23, 585-595.
- Zong C., Li H., Zhang G., 2015. Ammonia and greenhouse gas emissions from fattening pig house with two types of partial pit ventilation systems. *Agric. Ecosys. Environ.*, 208, 94-105.

Liste des composés chimiques

CH₄	Méthane	NH₄⁺	Ion ammonium
CO₂	Dioxyde de carbone	NO	Monoxyde d'azote
CO	Monoxyde de carbone	NO₂	Dioxyde d'azote
COV	Composés organiques volatils	NO₃	Radical nitrate
COVb	Composés organiques volatils biogéniques	NO₃⁻	Ion nitrate
COVNM	Composés organiques volatils non méthaniques	NO_x	Oxydes d'azote = NO + NO ₂
CS₂	Disulfure de carbone	NO_y	Oxydes d'azote = NO + NO ₂ + HNO ₃ + HONO + ...
DMAPP	Diméthylallyl diphosphate	N₂O₅	Pentoxyde d'azote
DMS	Sulfure de diméthyle	O₃	Ozone
DMDS	Disulfure de diméthyle	OC	Carbone organique
DDT	Dichlorodiphényltrichloroéthane	OCS	Sulfure de carbonyle
GOGAT	Glutamine oxoglutarate aminotransférase	OH	Radical hydroxyle
GS/GOGAT	Glutamine synthétase/ Glutamate synthétase	PAN	Peroxydes d'ester de nitrate dont le principal composé est le nitrate de peroxyacéthyle
H₂SO₄	Acide sulfurique	PM	Particule (<i>particulate matter</i>) = aérosol = poussière
HONO	Acide nitreux	PM₁₀	Particule de diamètre aérodynamique inférieur à 10 µm
HO₂	Radical hydroperoxyde	PM_{2,5}	Particule de diamètre aérodynamique inférieur à 2,5 µm
HNO₃	Acide nitrique	PM_{1,0}	Particule de diamètre aérodynamique inférieur à 1,0 µm
H₂S	Sulfure d'hydrogène	RO₂	Radical peroxyde
IPP	Isopentényl diphosphate	SO₂	Dioxyde de soufre
MEP	Méthylérythritol-4-phosphate	TC	Carbone total
MVA	Acide mévalonique	TMA	Triméthylamine
N₂O	Protoxyde d'azote/oxyde de diazote/oxyde nitreux	TSP	Ensemble des particules (<i>total suspended particules</i>)
NH₃	Ammoniac		

Liste des acronymes

Aasqa	Association agréée de surveillance de la qualité de l'air	CIRC	Centre international de recherche sur le cancer
Ademe	Agence de l'environnement et de la maîtrise de l'énergie	Citepa	Centre interprofessionnel technique d'études de la pollution atmosphérique
Agreste	La statistique, l'évaluation et la prospective agricole du ministère de l'Agriculture et de l'Alimentation	CLA	Couche limite atmosphérique
AMAP	Associations pour le maintien d'une agriculture paysanne	CLP	Classification Labelling Packaging
Anses	Agence nationale de sécurité sanitaire de l'alimentation, de l'environnement et du travail	CLRTAP	Convention on Long Range Transboundary Air Pollution (Convention sur la pollution atmosphérique transfrontière à longue distance, Convention de Genève, 1979)
AOEL	Acceptable Operator Exposure Level	CLS	Couche limite de surface
AOC	Appellation d'origine contrôlée	CNRS	Centre national de recherche scientifique
AOS	Aérosols organiques secondaires	Corinair	Core Inventory Air Emissions (de l'Agence européenne de l'environnement, European Environment Agency, EEA)
APPA	Association pour la prévention de la pollution atmosphérique	Corpen	Comité d'orientation pour des pratiques agricoles respectueuses de l'environnement
BREF	Best References Document	DJA	Dose journalière admissible
CEC	Capacité d'échange cationique	DPSIR	<i>Drivers</i> (forces motrices) – <i>pressions</i> – <i>state</i> (états) – <i>impacts</i> – <i>responses</i>
CEE-NU	Commission économique pour l'Europe des Nations unies (UNECE en anglais)	EEA	European Environmental Agency (Agence européenne de l'environnement)
CEPP	Certificats d'économie de produits phytopharmaceutiques		

EFSA	European Food Safety Authority		(GIEC, Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat)
Eionet	Réseau européen d'information et d'observation pour l'environnement	IPPC	Integrated Pollution Prevention and Control
EMEP	European Monitoring and Evaluation Program	Laure	Loi sur l'air et l'utilisation rationnelle de l'énergie
ETM	Élément-trace métallique	LCSQA	Laboratoire central de surveillance de la qualité de l'air
FAIR	<i>Findable, accessible, interoperable, reusable</i>	LNE	Laboratoire national de métrologie et d'essais
FE	Facteur d'émission	MAAF	Ministère de l'Agriculture, de l'Alimentation et des Forêts
GES	Gaz à effet de serre	MPO	Micropolluant organique
GIEC	Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat (Intergovernmental Panel on Climate Change, IPCC)	Mafor	Matière fertilisante d'origine résiduaire
ICPE	Installation classée pour la protection de l'environnement	MTD	Meilleures techniques disponibles
IED	Directive IED (Industrial Emissions Directive)	NEC	National Emission Ceilings
IMT	Lille Douai École Mines-Télécom, Institut Mines Télécom – Université de Lille	OMS	Organisation mondiale de la santé
Ineris	Institut national de l'environnement industriel et des risques	ONF	Office national des forêts
Inra	Institut national de recherche agronomique	ONU	Organisation des Nations unies
Insee	Institut national de la statistique et des études économiques	PCAE	Plan de compétitivité et d'adaptation des exploitations agricoles
Inserm	Institut national de la santé et de la recherche médicale	PCAET	Plans climat-air-énergie territoriaux
Irstea	Institut national de recherche en sciences et technologies pour l'environnement et l'agriculture	PDRR	Plan de développement rural régional
IPCC	Intergovernmental Panel on Climate Change	PDU	Plan de déplacement urbain
		PE	Perturbateur endocrinien
		PP	Plan Particules
		PPA	Plans de protection de l'atmosphère
		PPP	Produits phytopharmaceutiques

PRA	Petites régions agricoles	RMT	Réseau mixte technologique
PRAD	Plans régionaux d'agriculture durable	SpFrance	Santé publique France
Prepa	Plan national de réduction des polluants atmosphériques	SRCAE	Schémas régionaux climat-air-énergie
PRG	Pouvoir de réchauffement global	UNECE	United Nations Economic Commission for Europe
PRO	Produits résiduaire organiques	US EPA	Agence de protection de l'environnement (États-Unis)
QA	Qualité de l'air	VLE	Valeur limite d'exposition
		ZBE	Zone basse émission

Liste des auteurs

Agasse Sophie, APCA	sophie.agasse@apca.chambagri.fr
Baisnée Dominique, CEA, LSCE	dominique.baisnee@lsce.ipsl.fr
Bedos Carole, Inra, ÉcoSys	carole.bedos@inra.fr
Beekmann Matthias, CNRS, Lisa	matthias.beekmann@lisa.u-pec.fr
Bockstaller Christian, Inra, LAE	christian.bockstaller@inra.fr
Castell Jean-François, AgroParisTech, ÉcoSys	jean_francois.castell@agroparistech.fr
Cazaunau Mathieu, CNRS, Lisa	mathieu.cazaunau@lisa.u-pec.fr
Cellier Pierre, Inra, ÉcoSys	pierre.cellier@inra.fr
Charles Lionel, Fractal	lionelcharles75@gmail.com
Ciuraru Raluca, Inra, ÉcoSys	raluca.ciuraru@inra.fr
Clerbaux Cathy, CNRS, Latmos	cathy.clerbaux@latmos.ipsl.fr
Coll Isabelle, Université Paris-Est-Créteil, Lisa	isabelle.coll@lisa.u-pec.fr
Colomb Vincent, Ademe	vincent.colomb@ademe.fr
de Noblé-Ducoudré Nathalie, CEA, LSCE	nathalie.de-noblet@lsce.ipsl.fr
Doussin Jean-François, UPEC, Lisa	jean-francois.doussin@lisa.u-pec.fr
Drouet Jean-Louis, Inra, ÉcoSys	jean-louis.drouet@inra.fr
Dufour Gaëlle, CNRS, Lisa	gaelle.dufour@lisa.u-pec.fr
Edouard Nadège, Inra, Pegase	nadege.edouard@inra.fr
Eglin Thomas, Ademe	thomas.eglin@ademe.fr
Faburé Juliette, AgroParisTech, ÉcoSys	juliette.fabure@agroparistech.fr
Focsa Cristian, Université de Lille, PhLAM	cristian.focsa@univ-lille.fr
Fortems-Cheiney Audrey, CNRS, Lisa	audrey.cheiney@lisa.u-pec.fr
Gabrielle Benoit, AgroParisTech, ÉcoSys	benoit.gabrielle@agroparistech.fr
Galsomiès Laurence, Ademe	laurence.galsomies@ademe.fr
Génermont Sophie, Inra, ÉcoSys	sophie.genermont@inra.fr
George Christian, CNRS, Ircelyon	christian.george@ircelyon.univ-lyon1.fr
Gouzy Aurélien, Ineris	aurelien.gouzy@ineris.fr
Gros Valérie, CNRS, LSCE	valerie.gros@lsce.ipsl.fr
Guinand Nadine, IFIP	nadine.guingand@ifip.asso.fr
Hassouna Melynda, Inra, SAS	melynda.hassouna@inra.fr
Huber Laurent, Inra, ÉcoSys	laurent.huber@inra.fr
Jaffrezo Jean-Luc, CNRS, IGE	jean-luc.jaffrezo@univ-grenoble-alpes.fr
Kammer Julien, Inra, ÉcoSys	julien.kammer@gmail.com
Lathière Juliette, CNRS, LSCE	juliette.lathiere@lsce.ipsl.fr
Laville Patricia, Inra, ÉcoSys	patricia.laville@inra.fr
Loubet Benjamin, Inra, ÉcoSys	benjamin.loubet@inra.fr
Massad Raia Silvia, Inra, ÉcoSys	raia-silvia.massad@inra.fr
Mathias Etienne, Citepa	etienne.mathias@citepa.org

Mellouki Wahid, CNRS	mellouki@cnsr-orleans.fr
Millet Maurice, Université de Strasbourg, ICPEES	mmillet@unistra.fr
Pernelet-Joly , Valérie, Anses	valerie.pernelet@anses.fr
Personne Erwan, AgroParisTech, ÉcoSys	erwan.personne@agroparistech.fr
Petitprez Denis, Université de Lille, PC2A	denis.petitprez@univ-lille.fr
Pierart Antoine, Ademe	antoine.pierart@ademe.fr
Prémartin Marie-Christine, Ademe	marie-christine.premartin@ademe.fr
Quivet Etienne, Université d'Aix-Marseille, LCE	etienne.quivet@univ-amu.fr
Redon Nathalie, Imt Lille Douai, CERI EE	nathalie.redon@imt-lille-douai.fr
Robin Paul, Inra, SAS	paul.robin@inra.fr
Roussel Isabelle, APPA	appa.rou@icm.fr
Saint-Jean Sébastien, AgroParisTech, ÉcoSys	sebastien.saint-jean@agroparistech.fr
Sarda-Esteve Roland, CEA, LSCE	roland.sarda-estev@lsc.ipsl.fr
Sauvage Stéphane, IMT Lille Douai	stephane.sauvage@imt-lille-douai.fr
Stella Patrick, AgroParisTech, SAD-APT	patrick.stella@agroparistech.fr
Tuzet Andrée, Inra, ÉcoSys	andree.tuzet@inra.fr
Uzu Gaëlle, IRD, IGE	gaelle.uzu@ird.fr
Villenave Éric, Université Bordeaux, EPOC	eric.villenave@u-bordeaux.fr
Zannoni Nora, CNRS, LSCE	norazannoni@gmail.com

Édition
Juliette Blanchet
Mise en page
Graph'm

L'agriculture, *via* la conduite des cultures et de l'élevage, est source de polluants atmosphériques : ammoniac, produits phytopharmaceutiques, oxydes d'azote, composés organiques volatils biogéniques, particules primaires et secondaires... Elle est elle-même impactée par la pollution de l'air : ozone, contaminants-traces...

Cet ouvrage collectif contextualise les relations entre agriculture et qualité de l'air en lien avec les changements globaux et l'évolution de l'activité agricole, et y apporte un éclairage historique et social. Les impacts environnementaux et sanitaires des polluants agricoles sont répertoriés et un bilan des impacts de la pollution de l'air sur l'agriculture est dressé. Ce livre vise aussi à donner les bases et les connaissances requises pour appréhender la complexité des processus d'émission, de dépôt, de transport et de transformation dans l'atmosphère. Un état des lieux des méthodes de mesure et de modélisation des échanges de polluants entre l'atmosphère et les parcelles cultivées, les bâtiments d'élevage, les paysages agricoles, etc., brosse le panorama des outils disponibles pour mieux comprendre l'impact des activités agricoles sur la qualité de l'air et identifier des pistes d'action et de recherche. Les auteurs analysent les enjeux techniques et agronomiques à concilier dans un contexte d'évolution conjointe des conditions de la pratique agricole et du cadre réglementaire et donnent des clés pour définir les actions de réduction des émissions à mener.

L'ouvrage s'adresse aux étudiants, aux acteurs de la recherche et de l'agriculture ainsi qu'aux décideurs publics.

Carole Bedos, chercheuse à l'Inra, étudie les émissions de produits phytopharmaceutiques vers l'atmosphère par volatilisation, ainsi que l'exposition d'écosystèmes non-cibles par voie atmosphérique.

Sophie Générmont, chercheuse à l'Inra, s'intéresse à la volatilisation d'ammoniac au champ, et développe des outils à vocation de transfert tant du point de vue de la mesure que de la modélisation.

Jean-François Castell, maître de conférences à AgroParisTech, étudie les impacts des polluants atmosphériques (principalement l'ozone) sur la productivité des cultures et des écosystèmes, ainsi que leurs applications en biosurveillance de la qualité de l'air.

Pierre Cellier, chercheur à l'Inra, mène des recherches sur les émissions de polluants atmosphériques et de gaz à effet de serre dans les agroécosystèmes, ainsi que sur le dépôt d'ozone sur les cultures.

Couverture : © *Emilia Saint-Jean*



29 €

ISBN : 978-2-7592-3009-9

éditions
Quæ



Éditions Cirad, Ifremer, Inra, Irstea
www.quae.com

ISSN : 1777-4624
Réf. : 02697